

# Der Einfluss lokaler Verkehrsemissionen auf die Immissionssituation im Großraum Köln

– Episoden- und Szenariensimulationen mit  
einem genesteten Modellsystem –

I n a u g u r a l - D i s s e r t a t i o n

zur

Erlangung des Doktorgrades  
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Universität zu Köln

vorgelegt von

Florence-Nathalie Sentuc  
aus Gerolstein

Köln 2004

Berichterstatter: Prof. Dr. Michael J. Kerschgens  
Prof. Dr. Peter Speth

Tag der mündlichen Prüfung: 14. Juli 2004

# MITTEILUNGEN

aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie  
der Universität zu Köln

Herausgeber: M. Kerschgens, F. M. Neubauer, M. Pätzold, P. Speth, B. Tezkan

---

Heft 159

Florence-Nathalie Sentuc

Der Einfluss lokaler Verkehrsemissionen auf  
die Immissionssituation im Großraum Köln

– Episoden- und Szenariensimulationen mit  
einem genesteten Modellsystem –

Köln 2004

Hinweis: Eine Farbversion dieser Arbeit ist online im pdf-Format bei der Universitäts- und Stadtbibliothek Köln verfügbar unter <http://www.ub.uni-koeln.de/>.



---

# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>iii</b>
<b>Abstract</b>	<b>iv</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Hintergrund und Zielsetzung der Arbeit</b>	<b>3</b>
2.1 Entwicklung der Immissionsituation in NRW.....	3
2.2 Bildung von photochemischem Smog .....	5
2.3 Transport und Umwandlung von Schadstoffen.....	10
2.4 Skalenbetrachtung .....	12
2.5 Verbrennungsprozesse als Emissionsquelle.....	14
2.6 Maßnahmen zur Emissionsminderung bei PKW .....	16
2.7 Motivation und Zielsetzung der Arbeit.....	21
<b>3 Das Modellsystem CARLOS</b>	<b>23</b>
3.1 Meteorologische Strömungssimulation .....	25
3.1.1 Das meteorologische Modell MM5 .....	25
3.1.2 Das meteorologische Modell FOOT3DK.....	27
3.2 Chemietransportmodellierung .....	33
3.2.1 Das EURAD-Chemie-Transport-Modell CTM2 .....	33
3.2.2 Das Chemie-Transport-Modell CTM2F.....	38
3.3 Emissionsdaten.....	40
3.3.1 Das EURAD- Emissionsmodell EEM.....	43
3.3.2 Das Verkehrsmodell FASTLANE .....	44

---

<b>4</b>	<b>Episodensimulationen für den Großraum Köln</b>	<b>58</b>
4.1	Das Modellgebiet Kölner Bucht.....	58
4.2	Großskalige Strömungssituation im Episodenzeitraum.....	60
4.3	Modellnesting .....	64
4.4	Episodensimulationen zur Definition des Basisszenarios.....	68
4.4.1	Sensitivitätsstudien zur Wahl des Anfangsbodenwassergehalts .....	68
4.4.2	Validierung des Basisszenarios .....	80
4.4.3	Unsicherheiten des Basisszenarios und Einfluss der Verkehrsemissionen auf die Immissionsituation.....	83
4.5	Szenariensimulationen .....	92
4.5.1	Brückenszenario (lokal) .....	93
4.5.2	Erhöhtes Verkehrsaufkommen (regional und lokal) sowie Ausbau des Kölner Autobahnring.....	97
4.5.3	Variation der Zusammensetzung der Fahrzeugflotte (lokal).....	103
4.5.4	Reduziertes Verkehrsaufkommen (regional) .....	106
<b>5</b>	<b>Schlussbetrachtungen und Ausblick</b>	<b>112</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>114</b>
	<b>Anhang A: Symbole für Stoffe und Stoffgruppen</b>	<b>125</b>
	<b>Anhang B: Der RADM2-Gasphasenmechanismus</b>	<b>127</b>
	<b>Anhang C: Das Bodenmodell in FOOT3DK</b>	<b>133</b>

## Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit werden die Ergebnisse von Episoden- und Szenariensimulationen zur Bildung sekundärer Schadstoffe während einer Sommersmogperiode im Jahr 1997 vorgestellt. Zur Untersuchung des komplexen Zusammenhangs zwischen der Emission, dem Transport und der Umwandlung sowie der daraus resultierenden Verteilung der Schadstoffe in der Atmosphäre wird das Modellsystem CARLOS verwendet, das im Rahmen dieser Arbeit auf der lokalen Skala weiter entwickelt wird. Besonderes Interesse gilt in diesem Bereich den Emissionen des Straßenverkehrs, da Kraftfahrzeuge sämtliche an der Photosmogbildung beteiligten Schadstoffe emittieren.

Da verkehrsbedingte Emissionen einen räumlich und zeitlich stark variablen Charakter aufweisen, werden innerhalb der Modellkette die hochaufgelösten Daten eines dynamischen Verkehrsmodells für die Simulation luftchemischer Prozesse verwendet. Dieser erstmals für luftchemische Untersuchungen verwendete Ansatz bietet zudem die Möglichkeit, Veränderungen der Verkehrsstrukturen unmittelbar bezüglich ihrer Auswirkungen auf die Immissionssituation im Großraum Köln zu untersuchen. Dazu werden für das Stadtgebiet von Köln unterschiedliche Szenarien entwickelt, die verschiedene Planungsvorhaben oder Entwicklungsmöglichkeiten beschreiben.

Sowohl die Basissimulationen als auch die Szenarienrechnungen offenbaren eine hohe Sensitivität der Modellergebnisse auf emissionsseitige Variationen. Lokale Änderungen der Verkehrsemissionen wirken sich deutlich auf die Bildung sekundärer Schadstoffe aus. Es zeigt sich dabei eine leichte VOC-Limitierung des chemischen Regimes im Großraum Köln, so dass eine Reduktion der verkehrsbedingten  $\text{NO}_x$ -Emissionen eine erhöhte Ozonproduktion zur Folge hat. Maßnahmen zur Verbesserung des Verkehrsflusses durch den Ausbau des Kölner Autobahnringes bewirken ebenfalls keine Verbesserung der Immissionssituation, da der emissionsmindernde Effekt eines störungsfreien Flusses durch den induzierten Verkehr überkompensiert wird. Die Untersuchungen weisen ferner darauf hin, dass durch den stattfindenden Schadstofftransport lokale Szenarien zur Emissionsreduktion bei der Modellsimulation nicht losgelöst von der Umgebung betrachtet werden können. Die Vorgabe der Konzentrationen an den Modellrändern beeinflusst maßgeblich die im Innern stattfindenden Prozesse. Aufgrund der Anwendung eines Nestingverfahrens erweist sich das Modellsystem CARLOS daher gut geeignet zur Berücksichtigung dieser Aspekte luftchemischer Prozesse auf den verschiedenen Skalen, die bei der Bildung sekundärer Schadstoffe betrachtet werden müssen.

## Abstract

In this thesis, the results of episode and scenario simulations are presented calculating the formation of secondary pollutants during a photochemical smog period in 1997. In order to investigate the complex relationship between emission, transport and conversion as well as the resulting distribution of pollutants in the atmosphere, the model system CARLOS is applied, which is enhanced in the course of this work on the local scale. Special emphasis is given to the emissions of street traffic, because vehicles emit all pollutants involved in photochemical smog production.

Since traffic based emissions have a spatially and temporally highly variable character, highly resolved data of a dynamic traffic model are used within the model system to simulate chemical processes in the air. This approach is first applied to air pollution studies. It provides an opportunity of analyzing the impact of changes in emission structures on air quality in the metropolitan area of Cologne. For this purpose, different scenarios for the Cologne urban area are generated which describe various municipal plans or development potentialities.

Basis simulations as well as scenario calculations reveal a high sensitivity of model results to emission variation. Local changes in traffic based emissions have an obvious impact on chemical production of secondary pollutants. The chemical regime in the Cologne area turns out to be slightly VOC-limited so that a reduction of traffic based NO<sub>x</sub>-emissions gives rise to increased ozone formation. Provisions for an advanced traffic flow by the extension of the motorway ring around Cologne do not produce improved air quality. The effect of emission reduction caused by an undisturbed traffic flow is more than compensated by the induced traffic. The results show that local scenarios cannot be treated without taking into account the surrounding area due to the transport of air pollutants. The specification of concentrations at the boundaries significantly affects the processes within the inner model domain. As a result of the implemented nesting technique, the model system CARLOS is appropriate for the observance of these aspects of air chemistry on all scales that have to be considered while simulating the formation of secondary pollutants in the atmosphere.

# 1 Einleitung

Der negative Einfluss anthropogener Einträge in die Atmosphäre auf Mensch und Umwelt wird heute kaum noch bezweifelt. Durch gesetzliche Maßnahmen wurde in der Vergangenheit versucht, weltweit den Ausstoß an Luftschadstoffen zu verringern; allerdings steht ein wachsender Energiebedarf einer Verbesserung der Immissionsituation teilweise entgegen. Nicht nur junge Industrienationen und sogenannte Schwellenländer sehen in den Emissionsbeschränkungen zum Schutz der Umwelt in Anbetracht des zunehmenden Konkurrenzdrucks durch die Globalisierung Nachteile für die aufstrebende Industrie und damit Hemmnisse ihrer weiteren Entwicklungschancen. Infolgedessen steigen die Emissionen einiger Spurenstoffe und damit die Luftverschmutzung trotz fortschreitender Technik zum Teil weiter an, oder die Werte stagnieren seit mehreren Jahren auf meist hohem Niveau.

In Deutschland sind die Emissionen der meisten Schadstoffe aufgrund einer restriktiven Gesetzgebung – teilweise allerdings auch bedingt durch den Zusammenbruch der ostdeutschen Industrie nach der Wiedervereinigung – rückläufig, doch werden längst nicht alle Zielvorgaben der europäischen oder deutschen Richtlinien an allen Orten erreicht. Insbesondere in Städten und im Einflussbereich größerer Industrieansiedlungen ist die Belastung durch anthropogene Emissionen weiterhin hoch. Der Schadstoffgehalt der Luft und das damit verbundene gesundheitliche Schädigungspotential ist jedoch einer von mehreren Indikatoren für die Lebensqualität in urbanen Ballungsgebieten.

Viele primär emittierte Stoffe sind nicht stabil sondern unterliegen auf ihrem Transport durch die Atmosphäre chemischen Reaktionsprozessen und bilden somit zahlreiche Folgeprodukte. Einer dieser sekundären Schadstoffe, die oft schädlicher sein können als die direkt emittierten Substanzen, ist das dreiatomige Sauerstoffmolekül Ozon. In der Stratosphäre bildet die Ozonschicht bekanntermaßen einen wichtigen Schutzschild gegen den schädlichen Anteil der solaren Strahlung. Hohe bodennahe Ozonkonzentrationen hingegen sind ein Hinweis auf den sogenannten photochemischen Smog, dessen Substanzen sich für viele schädliche Einflüsse auf Lebewesen, Pflanzen und auch auf Gebäude verantwortlich zeigen. Dieses auch „Sommersmog“ genannte Phänomen tritt bei höheren Emissionen von Stickoxiden ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ), flüchtigen organischen Substanzen (‘Volatile Organic Compounds’, VOCs) und Kohlenmonoxid (CO) unter Einwirkung starker Sonneneinstrahlung auf. Insbesondere bei der Reduktion der Ozonvorläufersubstanzen  $\text{NO}_x$  und VOC besteht aufgrund ihres Potentials zur Bildung von photochemischem Smog noch Handlungsbedarf.

Ein herausragendes Problem in diesem Zusammenhang sind die Verkehrsemissionen, da Kraftfahrzeuge sämtliche an der Smogbildung beteiligten Schadstoffe emittieren. Vornehmlich der Individualverkehr entzieht sich vielen Minderungsmaßnahmen, da trotz steuerlicher Anreize in einem Großteil der Fahrzeugflotte nicht das technisch mögliche Reduktionspotential genutzt wird. Zusätzlich gehen Prognosen von einer erhöhten Mobilität der Bevölkerung und einer damit einhergehenden Zunahme des Verkehrsaufkommens aus, so dass vorerst nicht unbedingt mit einer deutlichen Reduktion der Verkehrsemissionen zu rechnen ist.

Durch den stark lokalen Charakter der verkehrsbedingten Emissionen ist eine Ursachenforschung durch Messkampagnen nur eingeschränkt durchführbar. Die Auswirkung der auch zeitlich sehr variablen Emissionen des Verkehrs auf die resultierenden Konzentrationsfelder und damit die Luftqualität kann daher flächendeckend nur mit einer Kombination von Modellen der Atmosphärendynamik und der Luftchemie erfasst werden.

Im Rahmen eines interdisziplinären Sonderforschungsbereiches (SFB 419) wurde in dem Teilprojekt B3 das Themengebiet „Herkunftsanalyse, Transport und Transformation von Luftschadstoffen – Untersuchung von Verminderungsstrategien durch Simulation“ behandelt. Ein Projektschwerpunkt lag dabei auf der hochaufgelösten Simulation des Straßenverkehrs, um den Einfluss zeitlich und räumlich stark variierender Emissionsquellen auf die Schadstoffverteilung im Großraum Köln zu untersuchen. Das Ziel dieser Arbeit ist die möglichst vollständige Betrachtung der komplexen Ursache-Wirkungsbeziehung zwischen Emissionen (insbesondere den verkehrsbedingten), meteorologischen Einflüssen und luftchemischen Prozessen auf der einen und der daraus resultierenden Schadstoffbelastung der Atmosphäre auf der anderen Seite. Zur Erreichung dieses Zieles wurde ein umfangreiches Modellsystem, das zur Untersuchung der Kausalkette Emission – Transmission – Immission Emissionsberechnungen eines dynamischen Verkehrsmodells verwendet, auf der lokalen Skala weiter entwickelt. Durch Episodensimulationen und Sensitivitätsstudien sollen mit Hilfe dieser Modellkette mögliche Modifikationen der Emissionsstrukturen durch ein verändertes Verkehrsaufkommen als Verkehrsszenarien auf ihre Auswirkungen hin untersucht werden.

Zur weiteren Einführung in dieses Thema werden im nächsten Kapitel Hintergrund und Ziele dieser Arbeit dargestellt. Es folgt die Beschreibung des Modellsystems und der verwendeten Eingangsdaten. Im vierten Kapitel werden die Ergebnisse einiger Anwendungen des Modellsystems für den Großraum Köln vorgestellt. Abschließend erfolgt die zusammenfassende Betrachtung der gewonnenen Erkenntnisse und ein Ausblick auf weitere Arbeiten.

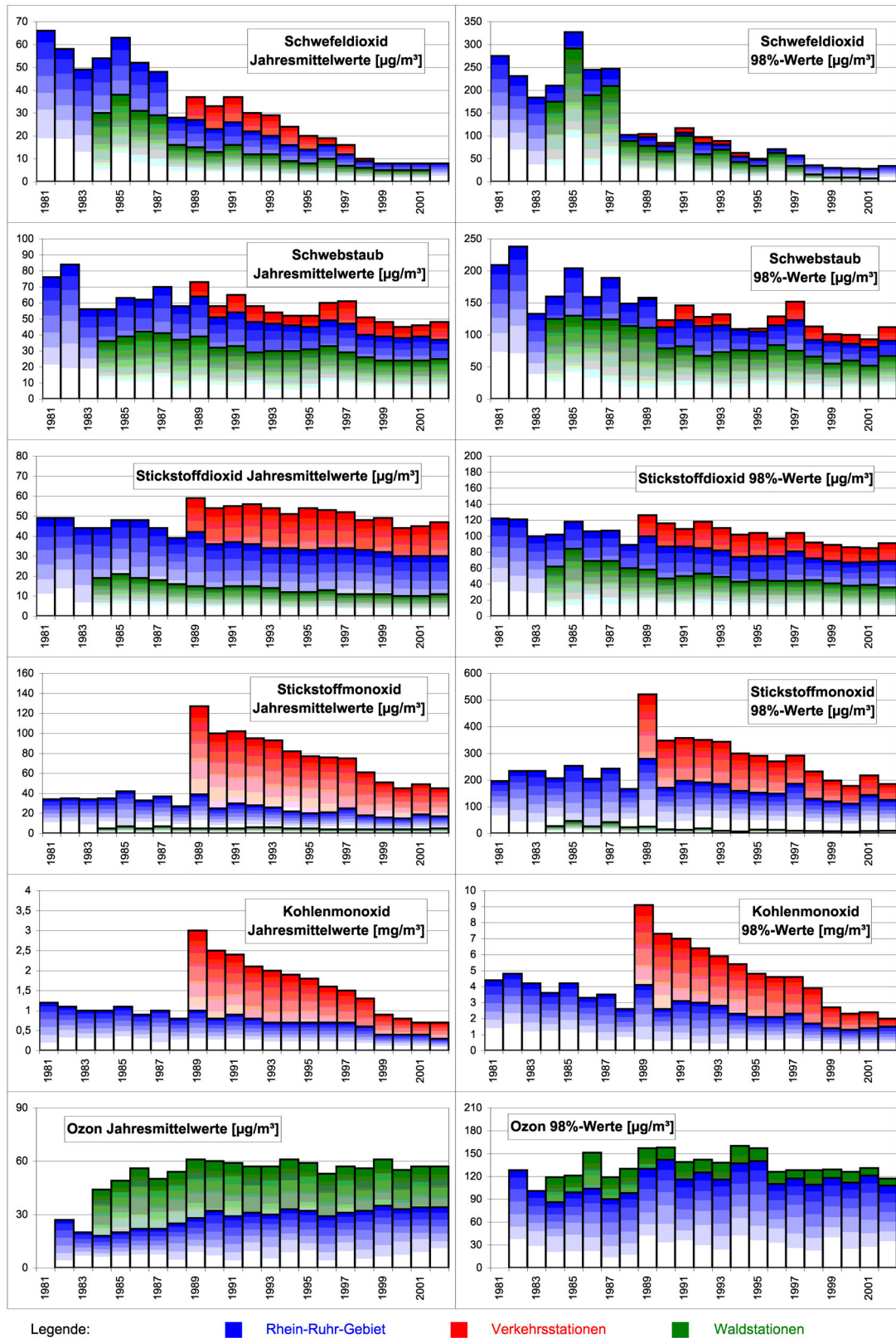
---

## 2 Hintergrund und Zielsetzung der Arbeit

Insbesondere die Emissionsminderung der klassischen Luftschadstoffe wie z.B. Schwefeldioxid (SO<sub>2</sub>) hat in den letzten zwei Jahrzehnten erheblich zur Verbesserung der Luftqualität in Deutschland und in weiten Teilen Westeuropas beigetragen. Jedoch geraten z.B. im Zusammenhang mit neuartigen Waldschäden und der Ertragsminderung bei Feldfrüchten andere Substanzen verstärkt in den Blickpunkt des Interesses (siehe z.B. BOUBEL *et al.* 1994). Besonders die im photochemischen Smog enthaltenen Oxidantien werden mit zahlreichen Schäden an Pflanzen und auch an Gebäuden in Verbindung gebracht, da viele der sekundär gebildeten Substanzen chemisch sehr reaktiv sind (siehe z.B. BRIMBLECOMBE 1996). Ozon gilt dabei als Leitsubstanz des Sommersmogs, denn es ist von der Konzentration und der Wirkung her dominierend. Die folgenden Ausführungen sollen zur Motivation einen Überblick bezüglich der Entwicklung der Luftqualität geben sowie die wichtigsten Prinzipien zur Entstehung von Sommersmog erläutern. Ferner werden einige Methoden zur numerischen Bestimmung der Immissionssituation vorgestellt. Angesichts der besonderen Rolle anthropogener Emissionen bei der Bildung von photochemischem Smog werden die Vorgänge bei der Verbrennung, die Entstehung und die Zusammensetzung der Abgase sowie Möglichkeiten zur Abgasreinigung am Beispiel von Kraftfahrzeugmotoren vorgestellt. Damit wird der komplexe Zusammenhang ausgehend von der gemessenen Schadstoffkonzentration in der Luft (Immission), über den Transport und die chemische Umwandlung (Transmission) bis hin zu den Verursachern der Emissionen skizziert.

### 2.1 Entwicklung der Immissionssituation in NRW

Insbesondere in dicht besiedelten Ballungsräumen ist örtlich die Belastung der Umwelt durch die Nähe zu den Emittenten vor allem aus Industrie und Verkehr relativ hoch. Aber auch in ländlichen Gebieten fernab größerer Emissionsquellen zeigen sich vor allem in den Sommermonaten hohe bodennahe Ozonkonzentrationen. Das Land Nordrhein-Westfalen mit seiner dicht besiedelten Rhein-Ruhr-Schiene ist exemplarisch für urbane Siedlungsstrukturen mit einer Agglomeration von Industrie, Handel und Handwerk. Das Landesumweltamt NRW (LUA NRW) überwacht seit über drei Jahrzehnten die Luftqualität in den Ballungsgebieten; aber auch abseits davon werden in den sogenannten Reinluftgebieten Messungen zu Vergleichszwecken durchgeführt (Waldstationen). Die Ergebnisse dieser Langzeitmessungen sind in *Abbildung 2.1* dargestellt.



**Abbildung 2.1:** Jahreskenngößen (Jahresmittel und 98%-Perzentil) verschiedener Luftbeimengungen im Rhein-Ruhr-Gebiet, an Waldstationen und an Verkehrsstationen von 1981 bis 2002 (Quelle: LUA NRW, Jahresbericht 2002).



In den letzten zwei Jahrzehnten ist ein deutlicher Rückgang sowohl der Mittelwerte als auch der 98%-Perzentilwerte beim Schadstoff  $\text{SO}_2$  zu verzeichnen, der u.a. zusammen mit Staub- und Rußpartikeln für den klassischen Smog verantwortlich ist. Bei Schwebstaub und  $\text{NO}_2$  ist dagegen dieser Trend weniger eindeutig ausgeprägt. Bei den Immissionswerten von  $\text{NO}$  und  $\text{CO}$  ist besonders an den Verkehrsstationen ein markanter Rückgang beider Kenngrößen zu erkennen. Im Gegensatz dazu zeigt der Mittelwert von Ozon in NRW einen Aufwärtstrend, wohingegen das 98%-Perzentil eher indifferent verläuft.

In Deutschland zeigen sich abnehmende Trends der Ozonkonzentration erst bei Messwerten über etwa  $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , obwohl die Emissionen von Stickoxiden und flüchtigen Kohlenwasserstoffen laut Umweltbundesamt (UBA 2003) zwischen 1990 und 2001 um 41% bzw. 50% zurückgegangen sind. Der Tendenz zur Abnahme der Spitzenkonzentrationen steht jedoch deutschlandweit eine Zunahme der Jahresmittelwerte (wie oben bereits für NRW gezeigt) entgegen. Dieser Trend ist sehr wahrscheinlich auf den wachsenden Beitrag aus dem nordhemisphärischen Hintergrund sowie auf die europaweite Minderung der  $\text{NO}_x$ -Emissionen durch die Einführung von Katalysatoren im Fahrzeugbereich und die Entstickung von Großfeuerungsanlagen zurückzuführen. Die Reduktion der Stickoxide führt nämlich aufgrund ihrer Doppelrolle im Ozonzyklus (*siehe Abschnitt 2.2*) nicht nur zu einer Absenkung der Spitzenwerte sondern durch den verminderten Titrationseffekt (Verbrauch von Ozon zur Oxidation von  $\text{NO}$  zu  $\text{NO}_2$ ) gleichzeitig zu einem Anstieg sehr niedriger Ozonkonzentrationen.

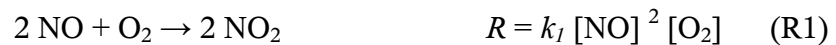
Trotz der weitgehenden Verbesserung der großräumigen Immissionssituation durch emissionsmindernde Maßnahmen stellen insbesondere die Verkehrsemissionen aufgrund ihrer Zusammensetzung (*siehe Abschnitt 2.5*) und der erwarteten Zunahme des Verkehrsaufkommens weiterhin ein Problem für die lokale Belastungssituation dar. Zum einen wird der angestrebte Grenzwert für  $\text{NO}_x$  von  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  im Jahresmittel zum Schutz der Vegetation bisher nur in den Reinluftgebieten erreicht, zum anderen emittiert der Verkehr alle bei der Bildung von photochemischem Smog beteiligten Substanzen.

## 2.2 Bildung von photochemischem Smog

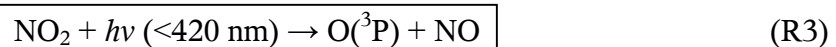
Unter den meist anthropogenen Schadstoffen innerhalb der planetaren Grenzschicht nimmt Ozon eine Sonderrolle ein. Bodennah als Folgeprodukt hauptsächlich durch anthropogene Emissionen verursacht ist es der einzige Schadstoff, dessen Konzentration mit der Höhe wieder erheblich ansteigt und in der stratosphärischen Ozonschicht zwischen 20 und 30 km Höhe seine natürliche Maximalkonzentration erreicht. Die natürliche Quelle des troposphä-

rischen Ozons ist daher die Stratosphäre. Die Höhe der bodennahen Ozonkonzentration wird somit nicht nur durch lokale meteorologische und luftchemische Einflussfaktoren sondern auch durch den Ferntransport und die Einmischung von Ozon aus höheren Schichten bestimmt.

Ozon in bodennahen Luftschichten entsteht im Zusammenhang mit der Bildung von photochemischem Smog. Dabei handelt es sich um ein Schadstoffgemisch, das in der unteren Atmosphäre aus einer Vielzahl von Vorläufersubstanzen unter dem Einfluss von Sonnenlicht entsteht. Bei intensiver Sonneneinstrahlung werden durch komplexe photochemische Reaktionen vor allem aus den Vorläufersubstanzen Stickoxide und den flüchtigen organischen Substanzen ohne Methan (NMVOC) photochemische Oxidantien wie Ozon, aber auch Stickstoffdioxid ( $\text{NO}_2$ ), organische Nitrate wie Peroxyacetylnitrat (PAN), Wasserstoffperoxid ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ), Aldehyde und organische Säuren gebildet. Die Quelle des Photo-smog-Problems sind dabei die Stickoxide. Die wesentliche Voraussetzung für die Bildung des Ozons, das als Leitsubstanz für photochemischen Smog gilt, ist die *Photolyse* von  $\text{NO}_2$  durch UV-Licht der Wellenlänge 290-420 nm. Das Stickstoffdioxid entsteht dabei seinerseits zunächst durch die Oxidation des primär emittierten  $\text{NO}$  über folgende Reaktionspfade:



Dabei bezeichnet  $R$  die jeweilige Reaktionsrate und  $k_i$  die entsprechende Ratenkonstante der Reaktion  $i$  mit den in eckigen Klammern angegebenen Stoffkonzentrationen. Die erste Reaktion verläuft bei typischen ländlichen und städtischen Konzentrationen der beteiligten Stoffe im Sommer sehr langsam, so dass sie vernachlässigbar ist. Bei der Kombination von sehr hohen Konzentrationen und tiefen Temperaturen wird diese Reaktion jedoch bedeutsam, da die Ratenkonstante  $k_1$  mit sinkender Temperatur zunimmt. Die Reaktion (R1) ist somit verantwortlich für eine moderne Art des Wintersmogs, die in Städten mit hohen Verkehrsemissionen (als  $\text{NO}$ -Quelle, siehe auch *Abschnitt 2.5*) bei winterlich kalten, stabilen Wetterlagen mit geringem Luftmassenaustausch auftreten kann. Der zweite Reaktionspfad ist aufgrund der relativ großen Ratenkonstante  $k_2$  die Hauptquelle zur Bildung von  $\text{NO}_2$  im Zusammenhang mit dem Auftreten von Sommersmog. Im weiteren Verlauf kommt es zu folgenden Reaktionsprozessen, die den *Ozonzyklus* beschreiben:



Der Photolyse von  $\text{NO}_2$  zu  $\text{NO}$  und einem Sauerstoffatom im Grundzustand (vgl. z.B. WARNECK 1988) folgt die Bildung von Ozon durch die Reaktion von atomarem mit molekularem Sauerstoff und einem Stoßpartner  $M$ , der in der Luft z.B. durch molekularen Stickstoff ( $\text{N}_2$ ) ausreichend vorhanden ist. Es folgt jedoch eine rasche Wiederausführung des  $\text{NO}_2$  durch die Reaktion (R5), so dass es nicht zu einem Nettogewinn von Ozon kommt. In der unbelasteten Atmosphäre stellt sich daher tagsüber bezüglich der Stickoxide  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  normalerweise eine Art *photochemisches Gleichgewicht* ein. Vernachlässigt man die Reaktion (R1), so lässt sich dieser photostationäre Zustand durch folgende Gleichung beschreiben:

$$k_2 [\text{NO}] [\text{O}_3] = J [\text{NO}_2] \quad (2.1)$$

Dabei ist  $J$  die effektive Photodissoziationskonstante erster Ordnung. Diese Ratenkonstante variiert im Tagesverlauf mit der solaren Einstrahlung und ist abhängig von der geographischen Breite und der Jahreszeit. Dennoch zeigen Simulationen in Smogkammern die generelle Gültigkeit dieser Beziehung.

In der belasteten Atmosphäre wird dieses Gleichgewicht durch die Anwesenheit anderer Spurenstoffe gestört, die neue Pfade zur Bildung von  $\text{NO}_2$  erschließen. Eine Hauptrolle spielt dabei das Hydroxylradikal ( $\text{OH}$ ), das eine Vielzahl von Luftbeimengungen der städtischen Atmosphäre attackiert.



Betrachtet man nun beispielsweise die organische Substanz Methan ( $\text{CH}_4$ ) als typischen Vertreter der Gruppe der Alkane innerhalb der Kohlenwasserstoffe (chemische Formel  $\text{C}_n\text{H}_m$ ), so führt das in der Reaktion (R6) gebildete Radikal  $\text{CH}_3$  über die folgenden Reaktionspfade zur Oxidation von  $\text{NO}$  zu  $\text{NO}_2$  bei gleichzeitiger Regeneration des  $\text{OH}$ -Radikals:



Das Hydroperoxyradikal  $\text{HO}_2$  kann ebenfalls photochemische Reaktionen mit  $\text{O}_3$ ,  $\text{H}$  oder  $\text{O}$  eingehen um das Hydroxylradikal wiederzugewinnen. Formaldehyd ( $\text{HCHO}$ ) kann

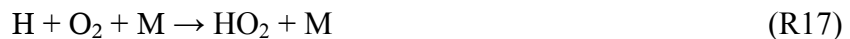
durch Photodissoziation H oder HCO produzieren sowie mit  $O_2$  zu  $HO_2$  und CO reagieren. Fasst man die Reaktionen (R6) und (R9)-(R12) zusammen, so wird die Rolle der Kohlenwasserstoffe bei der Bildung von  $NO_2$  in Zusammenhang mit photochemischem Smog deutlich:



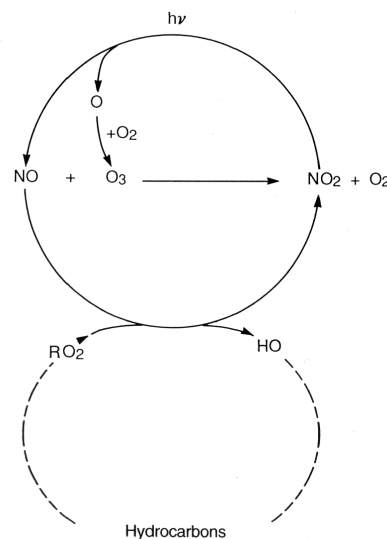
In der mit Kohlenwasserstoffen wie Alkanen belasteten Atmosphäre gibt es also Wege zur Produktion von  $NO_2$ , die entgegen der Gleichgewichtsbeziehung (2.1) kein Ozon verbrauchen. Das Radikal OH greift aber auch andere organische Substanzen wie z.B. höhere Aldehyde wie das Acetaldehyd ( $CH_3CHO$ ) aus der Reaktion (R7) an und führt dann über die folgende Reaktionskette wiederum zur Bildung von  $CH_3$ :



Der atomare Wasserstoff aus der Reaktion (R8) oder aus der Photodissoziation des Formaldehyds kann über die Reaktion



das Hydroperoxyradikal  $HO_2$  bilden oder mit ebendiesem reagieren, so dass zwei OH-Radikale entstehen, die wieder organische Substanzen angreifen können. Der Photochemische Zyklus zur Bildung von Ozon unter der Beteiligung von Radikalen und Kohlenwasserstoffen ist in *Abbildung 2.2* zusammenfassend dargestellt.

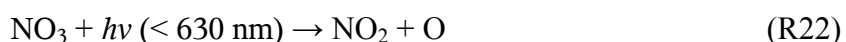


**Abbildung 2.2:** Photochemischer Zyklus von  $NO$ ,  $NO_2$ ,  $O_3$ , freien Radikalen und HC (Hydrocarbons).  $RO_2$  bezeichnet dabei Alkylperoxy-Radikale, mit  $R=C_nH_{2n+1}$ . Quelle: BAUMBACH (1996).

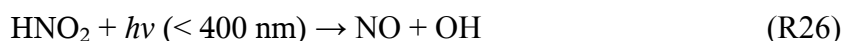
Im photochemischen Smog sind auch andere schädliche Substanzen außer dem toxischen Ozon enthalten. Der Hauptverursacher für das Auftreten von Augenreizungen bei Sommersmog ist das Peroxyacetylnitrat (PAN). Das Produkt aus Reaktion (R14) führt über die Reaktion mit  $\text{NO}_2$  zur Bildung von PAN:



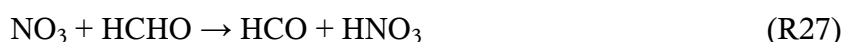
Ein Teil des  $\text{NO}_2$  in der belasteten Atmosphäre endet als Bestandteil von PAN und ähnlichen Substanzen durch Reaktionen der Art (R18). Aber auch weitere Reaktionen sind möglich:



Die Endprodukte dieser Reaktionen sind Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ) oder salpetrige Säure ( $\text{HONO}$  oder  $\text{HNO}_2$ ). Letztere unterliegt wiederum der Photodissoziation



und bildet somit ebenfalls eine Quelle für das in der Troposphärenchemie außerordentlich wichtige OH-Radikal. Aber auch das Nitratradikal  $\text{NO}_3$  erweist sich insbesondere mit abnehmender Strahlungsintensität als bedeutender Reaktionspartner. Während seine Konzentration tagsüber durch die Reaktionen (R21) und (R22) meist sehr effektiv reduziert wird, ist  $\text{NO}_3$  nachts z.B. über die Reaktion (R19) am Ozonabbau beteiligt. Außerdem bietet es über folgenden Reaktionspfad eine Möglichkeit zur Bildung des Hydroperoxyradikals ( $\text{HO}_2$ ):



Dagegen ist die Konzentration von OH nachts relativ gering, so dass man vereinfachend von einer Dominanz des Hydroxylradikals (OH) am Tag und des Nitratradikals ( $\text{NO}_3$ ) bei den Prozessen der Nachtchemie sprechen kann (BRIMBLECOMBE 1996).

Zu beachten ist darüber hinaus auch die Einwirkung anderer Spurengase bei der in diesem Abschnitt betrachteten *Gasphasenchemie* in der Atmosphäre. Die oben aufgeführten Reaktionen zeigen, dass insbesondere NO, NO<sub>2</sub>, CO, die Kohlenwasserstoffe (HC) sowie weitere flüchtige organische Substanzen (VOC) an vielen Prozessen in der Troposphäre beteiligt sind. Dabei werden die Begriffe HC und VOC fälschlicherweise auch in der Literatur häufig synonym gebraucht; tatsächlich sind jedoch die Kohlenwasserstoffe lediglich als Teilmenge der VOC zu betrachten (siehe z.B. GRAEDEL *et al.* 1986, KESSELMEIER & STAUDT 1999). Dementsprechend ist die Zuordnung z.B. von Emissionsangaben nicht immer eindeutig. Eine Übersicht der wichtigsten chemischen Substanzen und Stoffgruppen im Zusammenhang mit den Untersuchungen in dieser Arbeit findet sich in *Anhang A*.

Die hier aufgeführten Reaktionen können bei Weitem nicht den Anspruch der Vollständigkeit erheben. Sie dienen lediglich dazu, einen Einblick in die Komplexität des Themas „photochemischer Smog“ zu geben, um das Verständnis der in *Kapitel 4* vorgestellten Ergebnisse der Chemie-Transport-Simulationen zu fördern. Einführende Literatur (HOBBS 1995) sowie weitere Informationen zu luftchemischen Fragen und Schadstoffen in der Atmosphäre finden sich z.B. bei ATKINSON (2000), SEINFELD (1986) und WARNECK (1988). Einen Einblick in die Rolle der *Aerosole* und der *Nassphasenchemie* bieten z.B. BRIMBLECOMBE (1996) und HOBBS (1993). Auf diese Prozesse soll im Rahmen dieser Arbeit nicht eingegangen werden.

### 2.3 Transport und Umwandlung von Schadstoffen

Die räumliche und zeitliche Verteilung der Schadstoffe ist das Ergebnis zeitabhängiger regionaler und lokaler Emissionsquellen sowie meteorologischer und chemischer Abläufe. Punktuelle Messungen der Immissionssituation allein sind nur eine unzureichende Basis zur Beurteilung der Luftqualität, da sie keine flächendeckenden Informationen liefern. Insbesondere bei Planungs- oder Genehmigungsverfahren von Industrieanlagen muss die Vorbelastung der Luft sowie die zusätzliche Belastung durch die zukünftigen Emissionen im Vorfeld bestimmt werden. Zur Abschätzung der Gesamtbelastung der Luft werden daher diverse numerische Verfahren angewendet, um die Transmission als Bindeglied zwischen Emissionen und Immission zu berechnen.

Den einfachsten Ansatz bilden empirische Ausbreitungsmodelle wie z.B. das *Gauß-Fahnen-* oder das *Gauß-Puffmodell* (siehe z.B. ZENGER 1998). Bis vor kurzem war das erstgenannte noch das gängige Verfahren, welches in der technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft (TA-LUFT 1986) im Zusammenhang mit dem Bundesimmissionsschutz-

gesetz BImSchG (1990) als Standard zur Bestimmung der ortsabhängigen Immissionsbelastung vorgeschrieben war. Beiden Modellen liegen jedoch stark einschränkende Annahmen zugrunde; außerdem eignen sie sich lediglich zur Untersuchung der Schadstoffausbreitung. Nach der neuesten Fassung der TA-LUFT (2002) ist dagegen ein *Lagrange-Modell* (wie z.B. AUSTAL2000) erforderlich. Bei diesem auch *Partikel-* oder *Trajektorien-Modell* genannten Verfahren werden Konzentrationsverteilungen über den Transport von einzelnen Teilchenpaketen in einem vorgegebenen Windfeld mittels statistischer Methoden berechnet. Diese Modelle erlauben durch die Kopplung an ein Strömungsmodell im Gegensatz zu den Gauß-Verfahren auch bei komplizierten Windverhältnissen (z.B. durch eine stark gegliederte Orographie) eine zuverlässige Bestimmung der Schadstoffausbreitung. Ein weiterer Vorteil dieser Methode liegt darüber hinaus in ihrer Eignung zur Herkunftsanalyse von Schadstoffen. Eine Berücksichtigung der Umwandlung chemischer Substanzen ist jedoch u.a. aufgrund der dafür notwendigen Rechenzeit bisher wenig praktikabel. Luftchemische Prozesse werden daher oft mit *Boxmodellen* untersucht. In diesen Modellen wird die Atmosphäre als homogen durchmischtes Volumenelement angenommen, so dass aufgrund des geringen Rechenaufwands die Berücksichtigung aller gewünschten chemischen Reaktionen möglich ist. Zur Auswertung von Smogkammerexperimenten werden ausschließlich Boxmodelle verwendet. Meteorologische Einflüsse werden durch diese Modelle allerdings nur unzureichend einbezogen, obwohl die Meteorologie ein wichtiger Faktor bei luftchemischen Prozessen ist. So spielen z.B. Windfelder, Temperaturen und Strahlungswerte eine wichtige Rolle bei der Simulation des Sommersmogs. Die sogenannten *Euler-Modelle* hingegen erlauben es, sowohl den Transport durch Advektion und turbulente Diffusion als auch chemische Phänomene zu berücksichtigen, wenn sie mit den Daten eines meteorologischen Modells angetrieben werden (*siehe auch Kapitel 3.2*).

Euler-Modelle sind daher in der heutigen Zeit ein wichtiges Mittel, um die Ausbreitung und Umwandlung von Schadstoffen in der Atmosphäre zu beschreiben und um quantitative Aussagen über die Luftqualität und beeinflussende Faktoren treffen zu können. Zur Darstellung der komplexen Zusammenhänge in der Kausalkette Emission-Transmission-Immission und damit zur differenzierten Ursache-Wirkungs-Analyse hat sich der kombinierte Einsatz von atmosphärischen und luftchemischen Modellen als probates Mittel erwiesen (EBEL *et al.* 1996; MEMMESHEIMER *et al.* 1997). Dabei werden oft *prognostische* meteorologische Modelle verwendet, um die benötigten Strömungs- und Temperaturfelder zu erzeugen. Diese dienen dann dem nachfolgenden Chemie-Modell als Eingangsdaten für die Berechnung der chemischen Umwandlung und des Transports von Schadstoffen in der Atmosphäre. Allgemein werden numerische Modelle, die sowohl die Emission, den Transport und die Umwandlung durch chemische Reaktionen sowie die Entfernung der Stoffe

aus der Atmosphäre durch Deposition betrachten und durch externe Strömungsfelder angetrieben werden, als *Chemie-Transport-Modelle* bezeichnet.

## 2.4 Skalenbetrachtung

Die Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre umfasst einen weiten Bereich räumlicher und zeitlicher Skalen. Auf globaler Ebene werden insbesondere die Konzentrationen der Treibhausgase wie z.B. Kohlendioxid ( $\text{CO}_2$ ), Distickstoffoxid ( $\text{N}_2\text{O}$ ) und Methan ( $\text{CH}_4$ ) sowohl in der Troposphäre als auch in der Stratosphäre betrachtet. Im Gegensatz zu diesen langlebigen Treibhausgasen, die teilweise Jahrzehnte und länger in der Atmosphäre verbleiben und daher auch rund um den Globus eine gute Durchmischung aufweisen, beträgt z.B. die Lebensdauer des bodennahen Ozons nur wenige Tage. Seine Konzentration hängt von der Verteilung der Vorläufersubstanzen ab und variiert daher wie diese sowohl räumlich als auch zeitlich stark. Die Lebensdauer der primär emittierten Substanzen sowie der sekundär gebildeten Schadstoffe in der Troposphäre ist sehr unterschiedlich und reicht von wenigen Minuten bis zu Jahrzehnten. Der photochemische Smog ist somit ein Phänomen, das sich durch den Transport dieser Schadstoffe räumlich im Bereich von der lokalen bis hin zur kontinentalen Skala bewegt. Zur Prognose der lokalen Immissionssituation z.B. in einem Stadtgebiet innerhalb eines ausgedehnten Ballungsraumes ist daher die Berücksichtigung der in den betrachteten Bereich hineintransportierten Schadstoffe (die Hintergrundbelastung) ebenso wichtig wie die Kenntnis der Zusatzbelastung durch lokale Emissionen.

Eine räumlich möglichst umfassende Betrachtung der Ausbreitung von Schadstoffen bieten globale Modelle, die u.a. auf Basis von Beobachtungsdaten eines weltweiten Messnetzes die Konzentrationsverteilung insbesondere von langlebigen Schadstoffen bestimmen. Diese Modelle arbeiten jedoch meist mit grob vereinfachten luftchemischen Ansätzen, welche beispielsweise die Oxidantienbildung in der Atmosphäre nur unzureichend wiedergeben. Bei der groben horizontalen Maschenweite der globalen Modelle werden zudem die räumlich stark variierenden Emissionsquellen nur in aggregierter Form berücksichtigt. Bestehende Konzentrationsfluktuationen z.B. im Bereich von größeren Industrieansiedlungen können dadurch nicht erfasst werden.

Zur Beschreibung der regionalen und lokalen Immissionssituation reicht die räumliche Auflösung der globalen Modelle daher meist nicht aus. Infolgedessen werden auf dieser Skala sogenannte ‚limited area models‘ (LAM) verwendet, die sich räumlich auf das zu untersuchende Gebiet beschränken und dieses mit höherer Auflösung abdecken. Jedoch



sind die großskaligen Zirkulationsmuster und Emissionsverteilungen wichtige Eingangsgrößen für die Modellierung regionaler und mesoskaliger Strukturen (PIELKE & ULIASZ 1998). Diese Informationslücke kann durch Beobachtungsdaten (wie z.B. Radiosonden) aufgrund der mangelnden Flächenrepräsentanz oder dem großen zeitlichen Abstand der Messungen oftmals nur unzureichend geschlossen werden. Die Nutzung vorhandener Daten größerer Modelle für regionale Berechnungen erscheint vor diesem Hintergrund zweckmäßig. Daher wird oft das Verfahren des Modellnestings angewandt, um die Anbindung der lokalen und regionalen Modelle an jeweils übergeordnete Systeme zu gewährleisten (SOULHAC *et al.* 2003).

Beim Modellnesting wird zwischen passivem („one-way“) und interaktivem Nesting („two-way“) unterschieden. Beim passiven Nesting (z.B. SAITO 1991) übernimmt das untergeordnete Modell lediglich die Information der großskaligen Simulation als Anfangs- und Randbedingung. Dieses Verfahren wird oft angewendet, wenn die Daten des übergeordneten Modells in Form von abgeschlossenen operationellen Vorhersagen zur Verfügung stehen und daher die für das interaktive Nesting erforderliche simultane Berechnung nicht möglich ist. Beim interaktiven Nesting (z.B. GRELL *et al.* 1994) findet dagegen eine Rückkopplung zwischen den Ergebnissen des kleinerskaligen Modells mit dem übergeordneten Modell statt, es kommt also zur gegenseitigen Beeinflussung.

Auf dem Gebiet der lokalen und regionalen Modellierung existieren diverse Modelle, die u.a. auch für die Simulation einzelner Ozonepisoden genutzt wurden (siehe z.B. BAUER & LANGMANN 2002). Ein genereller Überblick findet sich z.B. bei NIXON *et al.* (1999). Die Güte dieser Modelle ist einerseits abhängig von der gewählten räumlichen und zeitlichen Auflösung, andererseits aber auch von den zur Verfügung stehenden Eingangsdaten. Bei der Simulation von chemischen Vorgängen in der Atmosphäre haben besonders die Emissionsdaten maßgeblichen Einfluss auf die Ergebnisqualität (SCHNEIDER *et al.* 1997, PLACET *et al.* 2000). Aber auch die verwendete Numerik und die Lösungsverfahren sowie der Chemiemechanismus (d.h. die implementierten Reaktionsgleichungen) mit seinen jeweiligen Einschränkungen beeinflussen die berechnete Konzentrationshöhe. Zudem ist auf die Gültigkeit der verwendeten Parametrisierungen bei den betrachteten Raum- und Zeitskalen z.B. bei der Berechnung der turbulenten Diffusion zu achten (siehe z.B. SEINFELD 1986).

Bei der numerischen Behandlung der chemischen Umwandlung ist außerdem zu berücksichtigen, dass sich die charakteristischen Reaktionszeiten der in der Atmosphäre ablaufenden Prozesse um einige Zehnerpotenzen voneinander unterscheiden können. In einem nichtlinearen Gleichungssystem müsste der Integrationszeitschritt zur numerischen Lösung

daher immer der schnellsten Reaktion angepasst werden. Die Folge davon wären sehr viele kleine Zeitschritte, die einen erheblichen Rechenaufwand bedeuten. Spezielle Algorithmen sind daher auch zur Minimierung der Rechenzeit erforderlich. In hochaufgelösten Chemie-Transport-Modellen wird oft die ‚pseudo-steady-state‘-Methode (siehe z.B. HASS 1991) verwendet, bei der die sehr schnell reagierenden Komponenten als pseudo-stationär angenommen werden, d.h. ihre Umwandlung quasi sofort stattfindet. Eine Fehlerquelle bei diesem Verfahren ist jedoch u.a. die Bestimmung derjenigen Zeitskala, bei der diese Annahme Gültigkeit besitzt.

Da die Bestimmung der bekannten chemischen Reaktionen mit sämtlichen dabei vorkommenden Stoffen bei der heutigen Rechnerkapazität für regionale Simulationen nicht zu leisten ist, wurden für verschiedene Fragestellungen unterschiedliche chemische Mechanismen entwickelt. Im Gegensatz z.B. zum MCM (‚Master Chemical Mechanism‘, DERWENT *et al.* 1998), der über 2400 Spezies und 7100 chemische Reaktionen für 120 der wichtigsten emittierten organischen Substanzen enthält, werden in den meisten Chemie-Transport-Modellen Stoffe mit ähnlicher Zusammensetzung und chemischem Reaktionsverhalten gruppiert und eine Reaktionsrate für die gesamte Stoffgruppe festgelegt. So existieren z.B. diverse Ansätze für die Aufteilung der VOC in unterschiedliche Klassen wie beispielsweise Alkane, Alkene, Aromaten und Aldehyde. Ein Überblick bezüglich einiger Mechanismen sowie ein Vergleich findet sich z.B. bei GROSS & STOCKWELL (2003).

## 2.5 Verbrennungsprozesse als Emissionsquelle

Die Hauptquelle für anthropogene Schadstoffe in der Atmosphäre ist die Verbrennung fossiler Brennstoffe. Die verwendeten Kraftstoffe bestehen hauptsächlich aus Kohlenstoff C, der die Basis für alle organischen Substanzen bildet, bzw. Kohlenwasserstoffen ( $C_nH_m$ ) mit variablem Verhältnis C/H. Mit Kraftstoffen aus elementarem Wasserstoff wird zwar seit langem experimentiert, jedoch ist seine Verwendung zur Zeit nicht verbreitet. Bei der Verbrennung der gebräuchlichen Kraftstoffe wie z.B. Kohle, Erdgas und Erdölprodukten entstehen in Abhängigkeit von der Zusammensetzung und dem Brennprozess neben der gewonnenen Energie verschiedene Substanzen, die direkt oder nach einer Abgasaufbereitung in die Atmosphäre abgegeben werden.

Der Idealfall ist die *vollständige Verbrennung*, bei der alle Bestandteile des Kraftstoffs gänzlich oxidiert werden (auch als *stöchiometrische* Verbrennung bezeichnet), z.B. von Kohlenwasserstoffen wie Methan:



Der bei diesem Prozess entstehende Wasserdampf ist von der globalen Skala aus betrachtet eher unbedeutend, da die natürlichen Feuchteflüsse weitaus größer sind als die vom Menschen verursachten Einträge. Problematischer ist der enorme Ausstoß von Kohlendioxid  $\text{CO}_2$ , der hoch genug ist um das natürliche Gleichgewicht der Atmosphäre empfindlich zu stören und auf diese Weise z.B. aufgrund seiner Absorptionseigenschaften zum Treibhauseffekt beiträgt. Lokal gesehen ist dieses Treibhausgas als Schadstoff jedoch unbedeutend, da es keine unmittelbar toxische Wirkung besitzt. Für die Schadstoffbelastung ausschlaggebend sind daher die Produkte der *unvollständigen Verbrennung eines Kraftstoff-Luft-Gemischs bei hohen Temperaturen*. Der Mangel an Sauerstoff bewirkt die unvollständige Oxidierung des Kohlenstoffes zu Kohlenmonoxid  $\text{CO}$ , das zwar farb- und geruchlos ist, aber wegen seiner hohen Affinität zum Hämoglobin stark toxisch wirkt. Wenn bei der Verbrennung die Kohlenwasserstoffe nicht vollständig oxidiert werden, können zusätzlich vielfältige Zwischenprodukte auftreten wie z.B. Alkohole, Aldehyde oder organische Säuren. Im Fall von Methan können folgende Substanzen gebildet und als Abgaskomponenten ebenso wie  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  emittiert werden:



Außerdem kann bei der unvollständigen Verbrennung oder bei ungenügender Durchmischung von Kraftstoff und Luft innerhalb der Flamme ein Teil des Kraftstoffs unverbrannt mit dem Abgas entweichen. Ein weiterer Bestandteil des Abgases ist in diesem Fall häufig auch Ruß, der hauptsächlich aus einer Agglomeration von elementarem Kohlenstoff (daher oft als ‚black carbon‘ bezeichnet) besteht. Zudem kommt es bei ungenügender Sauerstoffzufuhr zur thermischen Dekomposition (Pyrolyse) der Kraftstoffkomponenten ohne nachfolgende Oxidation der Pyrolyseprodukte. So findet man im Abgas Kohlenwasserstoffe, die ursprünglich nicht in dem verwendeten Kraftstoff enthalten sind. Auf diese Weise werden z.B. Aromaten wie Benzol, Toluol und Xylolisomere gebildet oder polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK oder PAH abgekürzt), von denen einige als kanzerogen gelten. Diese Stoffe zeichnen sich besonders durch einen strengen Geruch aus und finden sich als wahrnehmbares Zeichen von unvollständigen Verbrennungsprozessen nicht nur in Autoabgasen sondern z.B. auch in Zigarettenrauch (ILGEN *et al.* 2001).

Ein Hauptproblem für die Schadstoffbelastung durch Verbrennungsprozesse ist jedoch weder der verwendete Kraftstoff noch der technische Prozess, sondern liegt in der Zusammensetzung der Luft selbst begründet, die dem Kraftstoff stets als Oxidationsmittel zugeführt wird. Der in der Luft als Hauptbestandteil vorhandene molekulare Stickstoff  $\text{N}_2$  kann bei der Verbrennung in die Reaktionskette einbezogen werden. Die meist hohen Tempera-

turen ( $> 1300^{\circ}\text{C}$ ) während des Brennprozesses begünstigen die Bildung von atomarem Sauerstoff, der bei Sauerstoffüberschuss in der Brennkammer oder im Abstrom anschließend folgende Reaktionskette in Gang setzen kann:



Beide Reaktionen können auch in die andere Richtung erfolgen, doch hohe Temperaturen fördern die Bildung des sogenannten *thermischen NO* (SEINFELD 1986). In sauerstoffarmen Bereichen der Flamme kann sich über eine Reaktionskette von  $\text{N}_2$  mit Radikalen aus dem Kraftstoff (z.B.  $\text{CH}$ ) ebenfalls Stickstoffmonoxid bilden (*promptes NO*, BAUMBACH 1996). Zusätzlich kann  $\text{NO}$  aus stickstoffhaltigen Komponenten des Kraftstoffs wie z.B.  $\text{NH}_3$  (Ammoniak) gebildet werden, doch ist der Gesamtgehalt an Stickstoff (bei Kohle z.B. 0,8 – 1,5% ) sehr gering. Der überwiegende Anteil des  $\text{NO}$  in Verbrennungsabgasen entsteht durch die Reaktionen (R30) und (R31). Diese Tatsache bedeutet aber auch, dass  $\text{NO}$  bei sämtlichen Verbrennungsprozessen mit hohen Temperaturen entsteht, an denen Luft und nicht reiner Sauerstoff beteiligt ist. Selbst die Verbrennung von reinem Wasserstoff erzeugt  $\text{NO}$ -Emissionen, wenn auch in einer ganz anderen Größenordnung (BRIMBLECOMBE 1996). Das emittierte Stickstoffoxid wird fast unmittelbar im Abstrom oder in der Atmosphäre zu  $\text{NO}_2$  oxidiert, so dass Stickoxidemissionen meist als  $\text{NO}_x$  zusammengefasst werden, wobei sich die Massenangabe auf das Molekulargewicht von  $\text{NO}_2$  bezieht.

Weitere Schadstoffe können durch Verunreinigungen wie z.B. Metalle und Chlorkomponenten im verwendeten Kraftstoff mit dem Abgas in die Atmosphäre gelangen. Schwefel gilt als eine der Hauptverunreinigungen von Kraftstoffen, da es bei der Verbrennung rasch zu  $\text{SO}_2$  oxidiert wird. Es ruft u.a. Irritationen der Atemwege hervor und wird zusammen mit Ruß traditionell als Nachweis für den Einfluss menschlicher Aktivitäten angesehen.

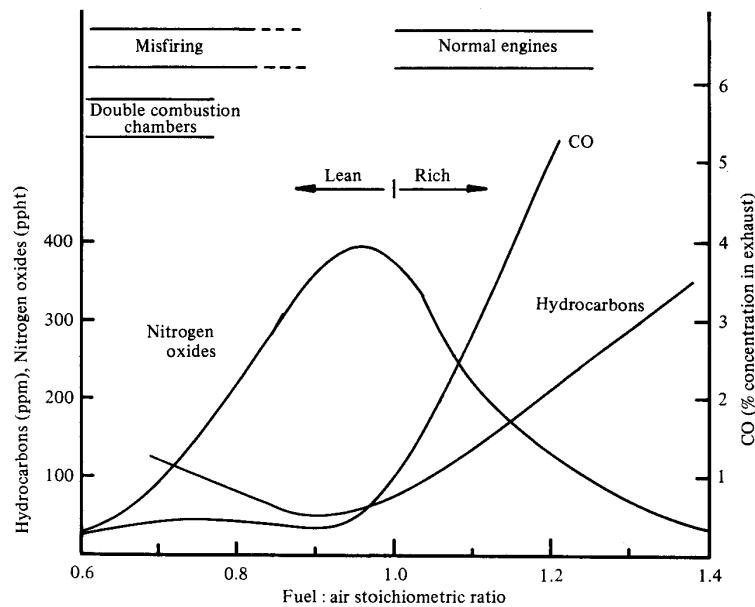
## 2.6 Maßnahmen zur Emissionsminderung bei PKW

Die Reduktion der Schadstoffe, die bei der meist unvollständigen Verbrennung fossiler Energieträger entstehen und in die Atmosphäre eingeleitet werden, ist aufgrund ihrer Wirkung auf Mensch und Umwelt verstärkt ein Ziel politischen Wirkens in Form regulativer Maßnahmen. Zusätzlich gilt dem Schutz der Umwelt erhöhte Aufmerksamkeit, da der schädliche Einfluss anthropogener Emissionen wie z.B. beim Sommersmog durch Atembeschwerden und Augenreizungen zunehmend in das Bewusstsein der breiten Öffentlich-

keit gelangt ist. Dieselmotoren und Schweröl haben z.B. einen verhältnismäßig hohen Schwefelgehalt, doch kann der Gehalt dieser Verunreinigungen bereits im Raffinationsprozess reduziert werden, wie es durch gesetzgeberische Maßnahmen in den letzten Jahren gefordert wurde. Darüber hinaus gibt es vielfältige Möglichkeiten die Emissionen durch technische Verbesserungen während (*primäre Maßnahmen*) oder nach dem Brennprozess z.B. durch Katalysatoren oder Filteranlagen zu minimieren (*sekundäre Maßnahmen*). Einen Überblick bezüglich der Technologien zur Emissionskontrolle sowie zu gesetzgeberischen Maßnahmen und Direktiven der letzten zwei Jahrzehnte bieten z.B. BAUMBACH (1996) bzw. das Umweltbundesamt (UBA 2004). Als sehr effektiv hat sich beispielsweise der Einbau von Filteranlagen zur Entstickung der Abgase in stationären Anlagen erwiesen, so dass ihr Anteil an den  $\text{NO}_x$ -Emissionen laut Umweltbundesamt relativ zu den verkehrsbedingten Emissionen abgenommen hat. Doch viele Maßnahmen lassen sich nur langsam durchsetzen, basieren auf wartungsanfälliger Technik, sind sehr kostenintensiv oder funktionieren nur unter bestimmten Bedingungen optimal. Ein Beispiel hierfür sind die Versuche zur Abgasminimierung und -reinigung bei Kraftfahrzeugen und die dabei auftretenden Probleme bei unterschiedlichen Fahrzeugzuständen, die es nahezu unmöglich machen, für jeden Lastbereich die bestmögliche Emissionsreduktion zu erreichen.

Die meisten Fahrzeuge werden heute mit Verbrennungsmotoren (Otto- oder Dieselmotoren) betrieben. Ein grundsätzliches Problem bei der Verbrennung von Kraftstoffen innerhalb von Fahrzeugmotoren ist der Umstand, dass Maßnahmen zur Emissionsminderung von  $\text{NO}$  zu erhöhtem Ausstoß von Kohlenwasserstoffen sowie  $\text{CO}$  führen und umgekehrt, so dass ein *Zielkonflikt* entsteht. Bei einem niedrigen Luftanteil des Kraftstoff-Luft-Gemisches (dem sogenannten *fetten Gemisch*) werden die  $\text{NO}_x$ -Emissionen durch die reduzierte Bildung von thermischem  $\text{NO}$  minimiert. Hingegen wird bei den *mageren Gemischen* mit niedrigem Kraftstoffanteil der Ausstoß an  $\text{CO}$  und  $\text{HC}$  durch die verbesserte Oxidation verringert. *Abbildung 2.3* zeigt beispielhaft den Verlauf der Konzentrationen von  $\text{NO}_x$ ,  $\text{CO}$  und  $\text{HC}$  im Autoabgas in Abhängigkeit vom Sauerstoffgehalt des Brenngemisches. Das stöchiometrische Verhältnis von Kraftstoff zu Luft gibt Auskunft darüber, ob theoretisch ausreichend Sauerstoff für eine vollständige Verbrennung vorhanden ist (bei Luftüberschuss ist das Verhältnis  $< 1$ ). Oft wird analog dazu auch das sogenannte  *$\lambda$ -Verhältnis* für den Verbrennungsprozess angegeben, das die aktuell vorhandene Luftmenge im Verhältnis zur stöchiometrisch mindestens erforderlichen Luftmenge beschreibt, wobei hier Luftüberschuss bei  $\lambda > 1$  gegeben ist. Die meisten *Ottomotoren* der in Deutschland hergestellten PKW sind aus Gründen der Betriebseigenschaften und darüber hinaus zur Reduktion der Stickoxidemissionen auf fette Gemische eingestellt. Dagegen sind die *Dieselmotoren* insbesondere von schweren Nutzfahrzeugen und Schiffen verbrauchsopti-

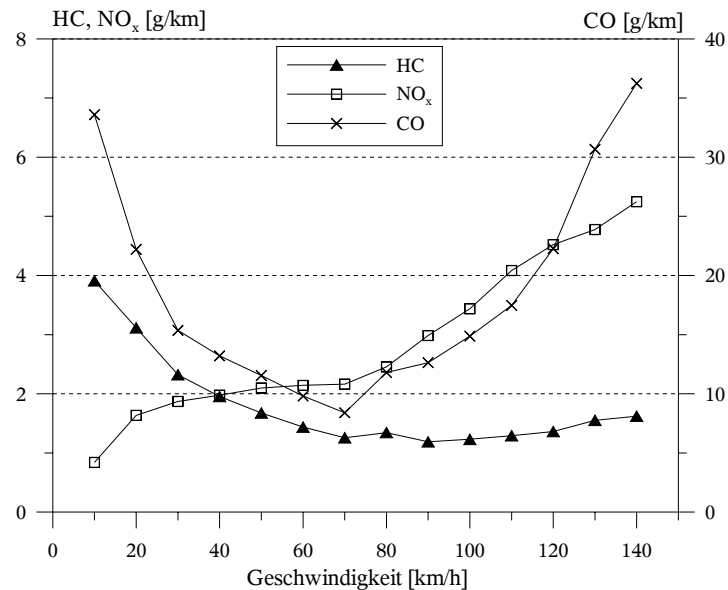
miert (magere Gemische), was zu relativ hohen Stickoxidemissionen führt. Dabei ist der Schadstoffausstoß von CO, HC und NO<sub>x</sub> dieselbetriebener Fahrzeuge im Vergleich zu den Ottomotoren (ohne Katalysator) generell wesentlich niedriger. Bei den Selbstzündern wird die Verbrennung und damit die Motorleistung durch die Menge des eingeleiteten Kraftstoffs reguliert, wobei das Angebot an zugeführter Luft gleich bleibt. Dieselfahrzeuge sind neben dem Ausstoß von Stickoxiden vor allem wegen der Emission von Rußpartikeln sowie oxidierten und nitrirten PAH problematisch.



**Abbildung 2.3:** Konzentration der Schadstoffe in Autoabgasen in Abhängigkeit von dem stöchiometrischen Verhältnis von Kraftstoff zu Luft; ppm = ‚parts per million‘, ppht = ‚parts per hundred thousand‘ (siehe auch Anhang A); Quelle: BRIMBLECOMBE 1996.

Ein weiteres Problem der Schadstoffminimierung besteht bei Kraftfahrzeugen darin, dass innerhalb der Motoren kein kontinuierlicher, gleichmäßiger Verbrennungsprozess unter stationären Verhältnissen stattfindet. Die gefahrene Last des Motors, die Drehzahl und die Motortemperatur haben ebenso Einfluss auf den Brennprozess wie z.B. die Gestaltung der Brennkammer, der Zündzeitpunkt (Ottomotor) bzw. die Kraftstoffeinspritzung und der Wartungszustand des Fahrzeugs. Bei sich ändernden Bedingungen wie z.B. Längsneigung der Fahrbahn oder Beschleunigungsprozessen variiert daher auch die Zusammensetzung des Abgases. Das Emissionsverhalten verschiedener Fahrzeuge wird mit standardisierten Fahrzyklen in Form von Emissionsfaktoren bestimmt, die in Abhängigkeit von der gefahrenen Geschwindigkeit den Ausstoß in g/km angeben (INFRAS 1999). Durch diese Standardverfahren lassen sich ebenfalls die vom Hersteller angegebenen Verbrauchswerte sowie die Einhaltung des gesetzlich zulässigen Schadstoffausstoßes kontrollieren. Oft werden auch mittlere Emissionsfaktoren für ein Fahrzeugkollektiv eines bestimmten Bezugsjahres

berechnet. So nimmt beispielsweise der Ausstoß von  $\text{NO}_x$  eines durchschnittlichen Kraftfahrzeugs im Bezugsjahr 1997 bei steigender Geschwindigkeit zu, während bei niedrigen Geschwindigkeiten wie z.B. im Stadtverkehr der Ausstoß von CO und HC erhöht ist (siehe *Abbildung 2.4*).  $\text{CO}_2$  (hier nicht gezeigt) zeigt einen sehr ähnlichen Verlauf wie CO mit einem Minimum im mittleren Geschwindigkeitsbereich, wobei die Größenordnung in etwa um den Faktor 10 höher ist.



**Abbildung 2.4:** Emissionsfaktoren einer durchschnittlichen Fahrzeugflotte für das Jahr 1997 nach HBEFA (*Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs, INFRAS 1999*). Angegeben ist jeweils der Schadstoffausstoß in g pro gefahrenen km in Abhängigkeit von der Fahrzeuggeschwindigkeit.

Ein entscheidender Einschnitt bei der Reduktion der Verkehrsemissionen in Deutschland war die Einführung des *Drei-Wege-Katalysators mit Lambda-Regelung* für PKW mit Ottomotor, die 1985 begann und insbesondere durch steuerliche Anreize gefördert wurde (UBA 2004). Der Begriff „Drei-Wege“ impliziert dabei, dass die drei Schadstoffkomponenten CO, HC und  $\text{NO}_x$  transformiert werden. Dieser Katalysator stellt die effektivste Form der Abgasreinigung dar, da er gleichzeitig reduzierend und oxidierend wirkt. Über die Lambda-Sonde wird der Sauerstoffgehalt im Abgas kontinuierlich gemessen und die Gemischbildung ( $\lambda$ -Verhältnis) entsprechend geregelt. Seit 1993 müssen alle neu zugelassenen PKW mit Ottomotor mit dieser Technik ausgestattet werden, um die Emissionsanforderungen der europäischen Richtlinie EURO I zu erfüllen. Nachfolgend wurden die Grenzwerte immer weiter verschärft und weitere Anforderungen definiert. Insgesamt werden mit den Stufen EURO II (ab 1996/97) bis EURO IV (ab 2005/2006) die Schadstoffemissionen neuer PKW mit Ottomotor gegenüber entsprechenden Fahrzeugen ohne Katalysator um 90 bis 95% reduziert.

Hinsichtlich des Schadstoffausstoßes liegt ein großer Vorteil des Dieselmotors in seinem Langzeitverhalten. Im Gegensatz zu den Katalysatoren, die bei höheren Laufleistungen der Ottomotoren und mangelnder Wartung ihre Umwandlungsraten um bis zu 40% einbüßen können, bleiben die Emissionen von Dieselmotoren nahezu konstant. Technische Modifikationen des Motors führten in der Vergangenheit zu einer erheblichen Reduzierung der NO<sub>x</sub>-Emissionen von Diesel-PKW, so dass bisher keine zusätzliche Abgasreinigung erforderlich war um die NO<sub>x</sub>-Grenzwerte einzuhalten. Doch die Emissionen von Ruß und NO<sub>x</sub> besonders von schweren Nutzfahrzeugen stellen weiterhin ein Problem dar. Die Charakteristik der dieselmotorischen Verbrennung besteht u.a. in dem gegenläufigen Verhalten der NO<sub>x</sub>- und Partikelemission. Mit steigender Temperatur im Brennraum sinken der Kraftstoffverbrauch und der Ausstoß von Partikeln, gleichzeitig steigt jedoch die Stickoxidemission an. In den letzten Jahren wurde die *SCR-Technik* („selective catalytic reduction“, BAUMBACH 1996) weiter entwickelt, die bereits erfolgreich zur Minderung der Stickoxidemissionen bei stationären Anlagen eingesetzt wurde und an Nutzfahrzeugen getestet wird (UBA 2004). Bei dieser Technik wird der Motor in einer verbrauchsoptimierten und partikelarmen Einstellung betrieben. Die dementsprechend relativ hohen NO<sub>x</sub>-Emissionen des Motors werden anschließend von der nachgeschalteten SCR-Anlage gemindert. Die nachgewiesenen Umsatzraten für Stickoxid liegen bei einem gesteuerten LKW-System bei ca. 80%. Für die Zukunft wird eine Umsatzrate von 90% mit geregelten Systemen angestrebt. Im PKW-Bereich wird geplant die Verwendung der seit 2003 erhältlichen, dauerhaft wirksamen *Partikelfilter* zur Reduktion krebserregender Rußemissionen durch steuerliche Anreize zu fördern. Weitere und ausführlichere Informationen zu den hier nur ansatzweise behandelten fahrzeugtechnischen Gesichtspunkten finden sich z.B. bei BAUMBACH (1996) und MOUSSIOPOULOS *et al.* (1989).

Durch sekundäre Maßnahmen beim Ottomotor sowie durch hauptsächlich primäre Maßnahmen auf Seiten der Dieselfahrzeuge konnten in den letzten 10 Jahren die Emissionen der einzelnen Fahrzeuge erheblich vermindert werden. Dennoch besteht auch bei den neuesten technischen Möglichkeiten zur Abgasreduktion teilweise das Problem, dass diese z.B. nur bei warmem Ottomotor, aber nicht unter Vollast ihre höchste Effektivität erreichen. Insgesamt sind die Maßnahmen zur Abgasminimierung bereits heute in modernen Fahrzeugen relativ weit ausgereizt. Eine weitere Reduktion der Abgase ist daher hauptsächlich durch die Verjüngung der Fahrzeugflotte (bei Betrachtung der Gesamtemission) sowie insbesondere durch die Absenkung des individuellen Verbrauchs der Fahrzeuge zu erwarten. Nur durch die letztere Maßnahme kann der Ausstoß des Treibhausgases CO<sub>2</sub> verringert werden, wenn nicht integrative Verkehrskonzepte Alternativen zum Individualverkehr bieten.



## 2.7 Motivation und Zielsetzung der Arbeit

Eine *Motivation der Arbeit* liegt in der zukünftigen Entwicklung der Verkehrsströme begründet. Der geforderten Reduktion insbesondere des CO<sub>2</sub>-Ausstoßes stehen Prognosen entgegen, die übereinstimmend von einer Zunahme des Verkehrs ausgehen. Gegenüber 1990 werden z.B. laut Analysen des IFEU-INSTITUTS die Fahrleistungen bis 2005 in etwa um 13%, bis 2010 um ca. 22% und bis 2020 um etwa 37% ansteigen. Nach Schätzung der PROGNO AG ist zu erwarten, dass die Verkehrsleistung im Personenverkehr bis zum Jahr 2020 um etwa 22% und im Güterverkehrsbereich um 53% gegenüber 1997 ansteigt. Große Unterschiede zeigen die einzelnen Prognosen in ihrer Beurteilung der Entwicklung der einzelnen Emissionen. Während bei den gesetzlich limitierten Schadstoffen NO<sub>x</sub>, CO, VOC, Benzol und Dieselpartikeln einhellig ein Trend zur weiteren Reduktion analysiert wird (wenn auch die Höhe in den einzelnen Szenarien differiert), besteht insbesondere bei der langfristigen Tendenz der CO<sub>2</sub>-Emissionen Uneinigkeit (alle Angaben aus BMVBW 2000).

Abweichend von den anderen Sektoren sind die vom Verkehr ausgehenden CO<sub>2</sub>-Emissionen zwischen 1990 und 2000 insgesamt um über 12% gestiegen (UBA 2004). Dabei beträgt in Deutschland der Anteil der Verkehrsemissionen inzwischen ca. 20% der anthropogenen CO<sub>2</sub>-Emissionen. Problematisch ist trotz der Emissionsreduktion auch die Einhaltung der Luftqualitätsziele, wie z.B. der von der WHO geforderte Jahresmittelwert für NO<sub>2</sub> von 40 µg/m<sup>3</sup> zum Schutz der Gesundheit. Denn eine Emissionsminderung der Stickoxide wirkt sich aufgrund luftchemischer Prozesse nicht in gleichem Umfang auf die Bildung von NO<sub>2</sub> in der Umgebungsluft aus. Im Straßengüterverkehr ist zusätzlich durch den erwarteten starken Anstieg des Transportaufkommens auch im Zuge der EU-Osterweiterung mit einer Zunahme vor allem der NO<sub>x</sub>-Emissionen von LKW zu rechnen. Es ist zur Zeit fragwürdig, ob dieser Anstieg durch Minderungsmaßnahmen im PKW-Bereich vollständig kompensiert werden kann. Weitere gesetzliche Regelungen insbesondere für schwere LKW und PKW mit Dieselmotor scheinen zur Absenkung der NO<sub>x</sub>-Emissionen notwendig zu sein (UBA 2001).

Die Verkehrsemissionen stellen demzufolge weiterhin ein Problem für die Umwelt dar, sowohl aufgrund des Ausstoßes von Treibhausgasen als auch wegen unmittelbar toxischer Abgaskomponenten sowie der Erhöhung des Krebsrisikos z.B. durch Benzol oder Dieselruß. Darüber hinaus ist die Belastung auf lokaler Ebene besonders in städtischen Gebieten weiterhin hoch. Ergebnisse einer Studie im Auftrag des UBA an der Universität Düsseldorf lassen außerdem darauf schließen, dass verkehrsbedingte Luftverunreinigungen bei Kin-

dem das Auftreten allergischer Sensibilisierungen, Symptome und Erkrankungen wie z.B. allergischer Rhinitis begünstigen (KRÄMER *et al.* 2000).

Die *Zielsetzung der vorliegenden Arbeit* liegt daher in der Untersuchung des Zusammenhangs zwischen den lokalen Emissionen des Straßenverkehrs und der Luftqualität im Großraum Köln. Besondere Aufmerksamkeit gilt dabei dem Ozon – als Indikator für die Bildung sekundärer Schadstoffe im photochemischen Smog – und seinen Vorläufersubstanzen. Das stark skalenabhängige VOC/NO<sub>x</sub>-Verhältnis der Schadstoffemissionen, das in urbanen Ballungsräumen je nach Verkehrsdichte stark variieren kann, muss aufgrund seiner Bedeutung für die Oxidantienproduktion in der Atmosphäre mit hoher Auflösung erfasst werden. Zur Simulation von primären und sekundären Schadstoffen wird daher ein *genestetes Modellsystem* verwendet, um sowohl regionale als auch lokale Einflüsse zu berücksichtigen. Zur realitätsnahen Erfassung der raumzeitlich variablen Struktur verkehrsbedingter Emissionen gehen räumlich und zeitlich hochaufgelöste Emissionsdaten eines *dynamischen Verkehrsmodells* in die *Episodensimulationen* ein. Dabei soll die in den Vorarbeiten zum SFB 419 durchgeführte Kopplung von Daten aus der dynamischen Verkehrssimulation mit einem Chemie-Transport-Modell erstmals für *Szenarienrechnungen* genutzt werden.

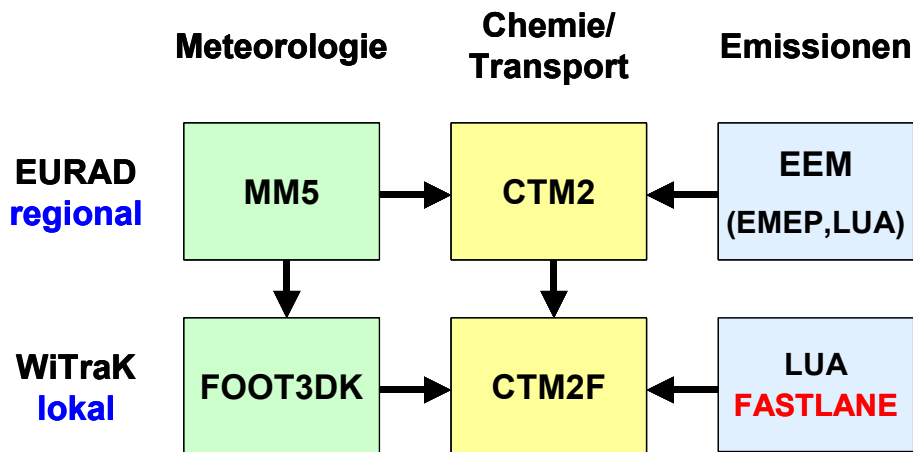
Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt daher auf der Simulation und Auswertung von Szenarien, die im Gegensatz zu sonst üblichen Ansätzen (siehe z.B. KESSLER *et al.* 1999) nicht primär regionale Emissionsminderungen ins Auge fassen, sondern auf lokaler Ebene die Auswirkungen veränderter Emissionsstrukturen durch geänderte Verkehrsströme betrachten. Auf diese Weise soll analysiert werden, inwiefern sich verkehrspolitische Maßnahmen wie z.B. Verkehrsumlenkung und Autobahnausbau auf die Immissionsituation innerhalb eines Stadtgebietes auswirken. Dabei gilt es zu klären, ob durch diese Maßnahmen insgesamt eine Verbesserung eintritt, oder ob sie lediglich eine Verlagerung der Immissionschwerpunkte bewirken. Darüber hinaus wird untersucht, wie sich die Variation der Flottenzusammensetzung durch einen zunehmenden LKW-Anteil auf das Schadstoffregime der Stadt Köln auswirken könnte.

### 3 Das Modellsystem CARLOS

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das komplexe Programmsystem CARLOS (**C**hemistry and **A**tmospheric Transport on **R**egional and **L**Ocal Scale, BRÜCHER *et al.* 1999a) umfassend überarbeitet und insbesondere die Modellparametrisierungen des prognostischen meteorologischen Modells dem derzeitigen Stand der Forschung entsprechend aktualisiert. Außerdem wurden neue Eingangsdaten – insbesondere hochaufgelöste Emissionsdaten – für das Modellsystem aufbereitet und bei der Simulation einer Sommersmogepisode verwendet. Eine erste Version von CARLOS entstand im Rahmen des NRW-Forschungsverbundes „Verkehrssimulation und Umweltwirkungen“ (NRW-FVU), und die gesamte Modellkette wurde in einer Studie für das Anwendungsgebiet Wuppertal getestet und validiert (BRÜCHER *et al.* 2000, KESSLER *et al.* 2001). Das Modellsystem ermöglicht Simulationen der meteorologischen und luftchemischen Verhältnisse von der regionalen bis zur lokalen Skala. Dabei wird die regionale Skala durch das EURAD-Modellsystem (**E**uropäisches **A**usbreitungs- und **D**epositionsmodell, EBEL *et al.* 1997) abgedeckt. Es besteht aus drei zentralen Modulen, mit denen die Meteorologie (MM5, Fifth Generation Penn State/NCAR Mesoscale Model, GRELL *et al.* 1994), die Emissionen (EEM, MEMMESHEIMER *et al.* 1991) sowie Chemie und Transport (EURAD-CTM2, HASS 1991) behandelt werden. Mit Hilfe dieser Modelle sind regionale Episodensimulationen möglich, deren Resultate als Randwerte für die meso- und mikroskaligen Folgemodelle des WiTraK-Systems (**W**indfeld-, **T**ransport- und **K**limatologieprogrammssystem, BRÜCHER *et al.* 1999b) genutzt werden können. Dieses System besteht aus unterschiedlich komplexen Modellen zur Simulation der Strömungsverhältnisse und der Schadstoffausbreitung über strukturiertem Gelände. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, mittels eines statistisch-dynamischen Verfahrens klimatologische Aussagen bezüglich der räumlichen Verteilung des Windes sowie der Belastung durch inerte Schadstoffe aus einer Vielzahl von Einzelsimulationen abzuleiten. Im Rahmen des SFB 419 wurde hierzu insbesondere das prognostische, nicht-hydrostatische Modell FOOT3DK (**F**low **O**ver **O**rographically structured **T**errain **3**-**D**imensional **K**ölner **V**ersion, BRÜCHER 1997) verwendet. In einer Diplomarbeit (HENNIG 2002) wurden in diesem Projekt Sensitivitätsstudien zur Erstellung von Schadstoffklimatologien mit FOOT3DK durchgeführt, bei denen u.a. auch die Güte der in CARLOS verwendeten Emissionsdaten durch den Vergleich mit gemessenen Jahreskenngößen für einige Stoffe untersucht wurde.

In dieser Arbeit wurden Episodensimulationen mit den lokalen CARLOS-Modellkomponenten FOOT3DK und CTM2F (CTM2 für FOOT3DK) für das Gebiet der Kölner Bucht durchgeführt. Durch Mehrfachnesting wird auf der EURAD-Modellebene

eine Erhöhung der horizontalen Auflösung von  $27 \text{ km} \times 27 \text{ km}$  für den Bereich Mitteleuropa, über  $9 \text{ km} \times 9 \text{ km}$  für Westdeutschland bis auf  $3 \text{ km} \times 3 \text{ km}$  für das Gebiet Nordrhein-Westfalen erzielt. Im letzten Schritt wird das Modell FOOT3DK in MM5 genestet, und entsprechend CTM2F mit den Daten des letzten Nests von CTM2 angetrieben. Die horizontale Auflösung für das Modellgebiet der Kölner Bucht beträgt dann  $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$ . Als zusätzliche Eingangsdaten für die lokalen Chemie-Transport-Rechnungen wurden neben den Emissionsdaten des Landesumweltamtes NRW (LUA) für den Verkehrssektor die zeitlich und räumlich hochaufgelösten Emissionen des Verkehrsmodells FASTLANE vom Zentrum für Angewandte Informatik der Universität zu Köln (ZAIK) verwendet. *Abbildung 3.1* zeigt schematisch die verwendeten Komponenten und den Datenfluss innerhalb des CARLOS-Systems.



*Abbildung 3.1:* Schematisches Diagramm der verwendeten Komponenten der CARLOS-Modellkette

In den folgenden Unterkapiteln werden die einzelnen Modelle und die benötigten Eingangsdaten vorgestellt. Die wichtigsten Prinzipien zur Chemie-Transport-Simulation und einige für das Verständnis der durchgeführten Arbeiten wesentliche Aspekte der verwendeten Modellphysik werden ebenfalls kurz erläutert. Aufgrund der Vielzahl der benutzten Modelle sei bereits hier für weitergehende Informationen auf die an entsprechender Stelle angegebene Literatur verwiesen. Weiterhin werden die Schnittstellen zwischen den einzelnen Programmmodulen beschrieben und die neu implementierten Parametrisierungen hervorgehoben. Ein Abschnitt beschäftigt sich ausführlich mit den verwendeten Emissionsdaten und deren Aufbereitung, da diese eine wichtige Eingangsgröße für die Chemie-Transport-Simulationen darstellen. Außerdem werden die definierten Szenarien für die dynamische Verkehrssimulation vorgestellt, die vom ZAIK für diese Arbeit berechnet wurden.

## 3.1 Meteorologische Strömungssimulation

Eine entscheidende Voraussetzung für die realitätsnahe Simulation des Transports, der chemischen Umwandlung und der Deposition von Schadstoffen in der Atmosphäre ist die möglichst exakte Vorhersage oder Diagnose der meteorologischen Antriebsgrößen (*siehe Abschnitt 3.2.1*). Zur Beschreibung der regionalen und lokalen Immissionssituation reicht die räumliche Auflösung der globalen Modelle meist nicht aus. Auch die zeitliche Auflösung dieser Modelle ist im Allgemeinen nicht ausreichend um kleinräumige, kurzfristig variierende Phänomene aufzulösen. Jedoch sind die großskaligen Zirkulationsmuster und Emissionsverteilungen wichtige Eingangsgrößen, die Randwerte für die Modellierung regionaler und mesoskaliger Strukturen liefern. Im Rahmen dieser Arbeit wird das passive Modellnesting angewendet, um die Anbindung der lokalen und regionalen Modellierung an jeweils übergeordnete Systeme zu gewährleisten. Das meteorologische Modell MM5 sichert in CARLOS die Berücksichtigung der großskaligen synoptischen Rahmenbedingungen, während das mesoskalige Modell FOOT3DK die lokalen Zirkulationsmuster bereit stellt. Beide Modelle werden daher nachfolgend kurz vorgestellt.

### 3.1.1 Das meteorologische Modell MM5

Das ‚Fifth-Generation PSU/NCAR Mesoscale Model‘ (kurz MM5 genannt) wurde an der ‚Pennsylvania State University‘ (PSU) und am ‚National Center for Atmospheric Research‘ (NCAR) in den USA entwickelt. Es handelt sich um ein sogenanntes Community-Modell, das durch zahlreiche Beiträge verschiedener Institutionen, Forschergruppen und Universitäten kontinuierlich verbessert wird. Das MM5 ist ein nicht-hydrostatisches Modell mit geländefolgenden  $\sigma$ -Koordinaten zur Simulation und Vorhersage mesoskaliger atmosphärischer Strömungsverhältnisse. Eine wichtige Option im Modellpaket MM5 ist die Fähigkeit zu multiple Nesting. Die horizontale und die vertikale Auflösung bis zu einer Modellobergrenze von maximal 10 hPa sind frei wählbar. Zur numerischen Diskretisierung wird ein Arakawa-B-Gitter (ARAKAWA & LAMB 1977) verwendet. Detaillierte Informationen zur Modellphysik finden sich bei GRELL *et al.* (1994) sowie auf der MM5-Homepage ([www.mmm.ucar.edu/mm5](http://www.mmm.ucar.edu/mm5)).

Die in CARLOS verwendete Modellversion des MM5 ist speziell für das EURAD-Modellsystem angepasst worden (EBEL *et al.* 1997). Im Unterschied zum System am NCAR werden unterschiedliche Eingangsdaten verwendet. Dies sind im Wesentlichen neue Landnutzungsdaten für Europa sowie räumlich und zeitlich hoch aufgelöste Analysen des ECMWF (European Center for Medium-Range Weather Forecast). Außerdem wurden

in der EURAD-Version des MM5 neue moderne Advektionsalgorithmen getestet und in das Modellpaket implementiert.

Für die Episodensimulationen in dieser Arbeit wird das MM5 in der Version 2 durch ECMWF-Analysedaten angetrieben, die sechsstündig auf einem Gitter von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  vorliegen. Zwischen den Analysezeitpunkten werden die Daten jeweils linear interpoliert um sie dem Modell als Randwerte zur Verfügung zu stellen. Das meteorologische Modell wird dabei im hydrostatischen Modus betrieben. Dies ist für die betrachtete regionale Skala bei einer horizontalen Auflösung von 27 km bis 3 km zulässig (siehe hierzu z.B. PIELKE 1984). Durch passives Nesting findet sukzessive eine Auflösungserhöhung um jeweils den Faktor 3 statt. Das Modell MM5 prognostiziert die meteorologischen Felder auf jedem Modell- bzw. Nestinggebiet für einen Zeitraum von 48 Stunden. Die Daten werden stundenweise gespeichert und stehen dann dem Chemie-Transport-Modell zur Verfügung. *Tabelle 3.1* enthält zusammenfassend eine Auflistung der verwendeten Optionen für die MM5-Simulationen.

Modellgitter	Arakawa-B-Gitter (ARAKAWA & LAMB 1977) vertikale Obergrenze 10 hPa 23 vertikale Schichten, unterste Schichtdicke: 40 m horizontale Auflösung je nach Gebiet 27 km bis 3 km
Projektion	Lambert-konform
Landnutzung	globaler Datensatz des USGS (U.S. Geological Survey) mit 13 Landnutzungskategorien, Auflösung: 30 Bogensekunden ( $\sim 0.925$ km)
Orographie	globaler Datensatz GTOPO30 (vom USGS's EROS Data Center), Auflösung: 30 Bogensekunden ( $\sim 0.925$ km)
Modellvariante	hydrostatisch
Randbedingungen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Lateral <ul style="list-style-type: none"> <li>- zeitabhängige ‚inflow/outflow‘ Randbedingung für grobes Gitter</li> <li>- zeitabhängige Randbedingung für Nestinggebiete</li> </ul> </li> <li>• Boden <ul style="list-style-type: none"> <li>- Bestimmung der Flüsse über Bodenmodell (‚Force-Restore‘-Methode) mit Temperaturprognose für 5 Schichten</li> <li>- Wasserverfügbarkeit über Land konstant auf 30% gesetzt</li> </ul> </li> <li>• Oberrand <ul style="list-style-type: none"> <li>- vert. Windgeschwindigkeit verschwindet</li> </ul> </li> </ul>
Anfangsbedingungen	ECMWF-Analyse
Nesting	monotones Interpolationsschema an den Rändern des genesteten Gebietes für Einwege-Nesting <ul style="list-style-type: none"> <li>• Coarse Grid: 52×62 Gitterpunkte, 27 km Gitterweite</li> <li>• Nest 1 (49×58, 9 km); Nest 2 (73×73, 3 km)</li> </ul>

Numerische Algorithmen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Zeitsplitting <ul style="list-style-type: none"> <li>- interne Schwerewellen</li> </ul> </li> <li>• numerisches Verfahren <ul style="list-style-type: none"> <li>- ‚split-explicit‘</li> </ul> </li> <li>• prognostische Variablen (ohne Feuchte) <ul style="list-style-type: none"> <li>- <math>u, v, T, p^*</math></li> </ul> </li> <li>• Advektionsalgorithmus <ul style="list-style-type: none"> <li>- zentrierte Differenzen (zeitliche Diskretisierung nach dem ‚leap frog‘-Verfahren mit Filterung nach ASSELIN 1972)</li> </ul> </li> </ul>
Parametrisierungen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• physikalische <ul style="list-style-type: none"> <li>- horizontale turbulente Diffusion</li> <li>- ‚Dry Convection Adjustment‘</li> </ul> </li> <li>• Niederschlag <ul style="list-style-type: none"> <li>- Niederschlag durch Übersättigung (einfachstes Schema)</li> <li>- explizites Schema mit Koexistenz von Flüssigphase und Eisphase (‚mixed phase‘ nach REISNER <i>et al.</i> 1998) mit Wolken- und Niederschlagseis als zusätzliche prognostische Variablen</li> </ul> </li> <li>• Kumulus-Konvektionsschema für das grobe Gitter (‚coarse grid‘) nach GRELL <i>et al.</i> (1994) <ul style="list-style-type: none"> <li>- keine flache Konvektion</li> </ul> </li> <li>• planetarische Grenzschicht <ul style="list-style-type: none"> <li>- MRF-Schema nach HONG &amp; PAN (1996)</li> <li>- vertikale Diffusion</li> <li>- Strahlungsparametrisierung am Erdboden</li> <li>- atmosphärische Strahlungsparametrisierung mit Berücksichtigung von Wolken</li> </ul> </li> </ul>

**Table 3.1:** Zusammenfassende Darstellung der verwendeten Modelloptionen des meteorologischen Modells MM5 (Modeling System Version 2, siehe auch DUDHIA *et al.* 1999).

### 3.1.2 Das meteorologische Modell FOOT3DK

Das prognostische Modell FOOT3DK wurde ursprünglich am Meteorologischen Institut der Universität Bonn aus einem Dreischichtmodell entwickelt (BORN 1989). Die seit 1992 parallel am Institut für Geophysik und Meteorologie in Köln weiter entwickelte Version und das Nestingverfahren sind ausführlich bei BRÜCHER (1997) beschrieben. FOOT3DK ist ein nicht-hydrostatisches Strömungs- und Ausbreitungsmodell für die Mesoskala- $\beta$  bis Mikroskala- $\alpha$ . Das Modell verwendet ein orographiefolgendes  $\eta$ -Koordinatensystem und erlaubt ein mehrfaches (passives) Nesten in sich selbst oder in geeignete andere Modelldaten (z.B. das Lokal-Modell des Deutschen Wetterdienstes oder das MM5). Zur Diskretisierung der Modellvariablen wird ein Arakawa-C-Gitter (MESINGER & ARAKAWA 1976) verwendet. Die Advektion findet wahlweise über ein quasi-monotones Semi-Lagrange-Verfahren (QMSL, BERMEJO & STANFORTH 1992) oder über ein klassisches, flussba-

siertes Upstream-Schema für die skalaren Variablen im Boxzentrum statt. Das QMSL-Verfahren bietet eine monotone Lösung bei guter Erhaltung der Signalform, ist jedoch nicht exakt massen- bzw. energieerhaltend. Das Upstream-Schema hingegen hat eine höhere numerische Diffusion, ist aber massenerhaltend und monoton.

### Modellerweiterungen

Im Rahmen anderer Projekte sind seit der ersten CARLOS-Version (BRÜCHER *et al.* 1999a) einige Veränderungen der Parametrisierungen im meteorologischen Modell FOOT3DK vorgenommen worden. Diese Erweiterungen wirken sich auch auf die Bestimmung der chemischen Umwandlung und des Transports von Schadstoffen mit dem Chemie-Transportmodell CTM2F aus. Während dieser Arbeit erfolgte daher innerhalb des CARLOS-Systems die Umstellung von FOOT3DK der Version 2.09 (Stand 1998) auf die aktuelle Version 3.10 (BRÜCHER *et al.* 2003). Ein besonders relevanter Teil der neuen Parametrisierungen wurde auf seine Auswirkungen bei der Berechnung von Schadstoffkonzentrationen hin untersucht. Die in der aktuellen Programmversion vorgenommenen Veränderungen betreffen insbesondere die folgenden Prozesse:

- *Wolken und Niederschlag:* Die Behandlung von Feuchteprozessen wurde gegenüber den älteren Versionen komplett überarbeitet. Das Modell enthält nun eine komplexe Parametrisierung der Feuchtephysik mit optionalen Konvektionsschemata zur Simulation von Niederschlag.
- *Langwellige Strahlung:* Die Berücksichtigung des atmosphärischen Wasserdampfgehalts bei der Bestimmung der langwelligen Gegenstrahlung führt insbesondere nachts zu einem realitätsnäheren Temperaturverlauf. Darüber hinaus steht alternativ zur einfachen Parametrisierung der Strahlungsbilanz an der Oberfläche ein komplexeres Strahlungstransportschema zur Berechnung der langwelligen Strahlung zur Verfügung.
- *Turbulenz:* Die Berücksichtigung der Normalspannungen und der horizontalen Scherung im bis dato auf vertikale Windscherung beschränkten mechanischen Quellterm der turbulenten kinetischen Energie (TKE) führt in FOOT3DK zu einer realitätsnäheren Produktion und Verteilung der TKE in der konvektiven Grenzschicht.
- *Boden und Vegetation:* Der Einsatz eines prognostischen Boden- und Vegetationswassermodells führt in FOOT3DK zu einer realistischeren und differenzierteren raumzeitlichen Struktur der sommerlichen bodennahen Temperatur- und Feuchtefelder.



Die Implementierung der oben genannten Neuerungen in CARLOS erstreckt sich sowohl auf die Schnittstellen zwischen den verwendeten Modellen als auch auf die konsistente Angleichung einiger Module des CTM2F an die Neuerungen in FOOT3DK. So mussten insbesondere das Initialisierungsverfahren und der Präprozessor für die Aufbereitung der Nestingvorgabe von MM5 für FOOT3DK entsprechend den Erfordernissen der neuen Modellkomponenten erweitert und angepasst werden. Der Nesting-Präprozessor MM5NES entspricht im Wesentlichen den Verfahren, die von BRÜCHER (1997) zur Aufbereitung der Daten des Deutschland-Modells (DM) des Deutschen Wetterdienstes und zum Nesten von FOOT3DK in sich selbst entwickelt wurden.

Wolken und Niederschlagsprozesse werden in dieser Arbeit nicht betrachtet, da Simulationen für eine Schönwetterperiode durchgeführt wurden, die weitgehend wolkenfrei war. Die implementierten Parametrisierungen zur Niederschlagssimulation und ihre Auswirkungen sind ausführlich bei SOGALLA & KERSCHGENS (2001) beschrieben. Die Einbindung eines komplexen Strahlungsschemas zur Berechnung der langwelligen Strahlung wurde im Rahmen einer Diplomarbeit (FISCHER 2000) durchgeführt. Das langwellige Strahlungsschema spielt besonders bei der Ausbildung einer stabilen nächtlichen Grenzschicht und daraus resultierenden bodennahen Kaltluftabflüssen eine Rolle. Erste Testrechnungen mit eingeschaltetem Strahlungsschema zeigten für die durchgeführten Simulationen keine bemerkenswerten Änderungen. Es ist jedoch davon auszugehen, dass die oben genannten Modellveränderungen für weitere Untersuchungen mit der Modellkette CARLOS, die sich nicht auf eine Sommersmogepisode beziehen, relevant werden. Sie dienen daher der Komplettierung des Modellsystems, doch ihre Einarbeitung sowie die durchgeführten Testsimulationen sollen nicht den Schwerpunkt der hier vorgestellten Untersuchungen bilden. Im Fall der überarbeiteten Turbulenzparametrisierung ist die korrekte Beschreibung der turbulenten kinetischen Energie der Atmosphäre eine wichtige Voraussetzung für Chemie-Transport-Rechnungen (*siehe Abschnitt 3.2*). Sie ermöglicht eine realitätsnahe Beschreibung der turbulenten Austauschprozesse in der konvektiven Grenzschicht, die insbesondere die Verteilung von Schadstoffen beeinflussen.

Im Rahmen dieser Arbeit liegt in Bezug auf die implementierten neuen Parametrisierungen das besondere Interesse auf der Verwendung des prognostischen Bodenmodells von NOILHAN & PLANTON (1989) nach dem Force-Restore-Konzept bei der Simulation von sommerlichen Strahlungswetterlagen. Untersuchungen mit der früheren CARLOS-Version haben gezeigt, dass für diese atmosphärischen Bedingungen die bisher verwendete Bowenverhältnismethode zur Bestimmung der turbulenten Flüsse sensibler und latenter Wärme nicht immer befriedigende Resultate liefert. Insbesondere beim Antrieb von FOOT3DK durch das MM5, welches die turbulenten Flüsse über ein Bodenmodell (s.o.)

bestimmt, zeigte sich bei wolkenfreien Strahlungstagen oft ein Auseinanderdriften der simulierten Temperaturen im Inneren des Modellgebietes von den durch die Nestingvorgabe beeinflussten Werten an den seitlichen Rändern (*siehe hierzu auch Abschnitt 4.4.1*). Dies führt zu Inkonsistenzen und Störungen des Windfeldes, die zu unrealistischen Simulationsergebnissen führen können und unter Umständen den Abbruch der Modellrechnung zur Folge haben.

Bei der bisher in FOOT3DK verwendeten Methode wird durch das Bowenverhältnis  $\beta$  der turbulente Feuchtefluss am Erdboden  $E$  an den Fluss sensibler Wärme  $H$  gekoppelt:

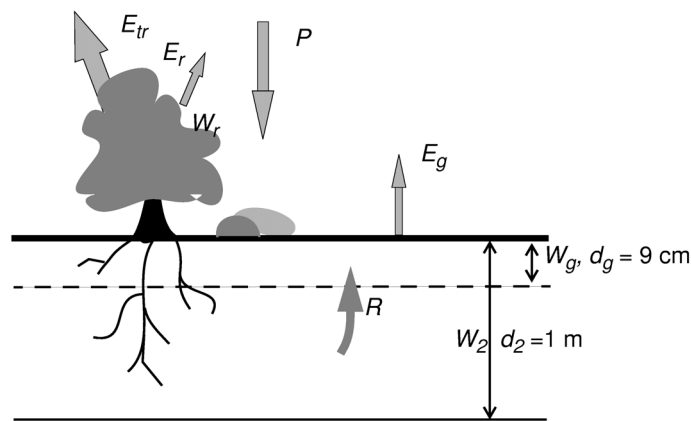
$$\beta = \frac{H}{E} = \frac{c_p}{L_v} \frac{\overline{w'\theta'}}{\overline{w'q'}} \quad (3.1)$$

Das Bowenverhältnis kann für alle Landnutzungsklassen (außer Wasserflächen) getrennt mit einem konstanten Wert vorgegeben werden. Bei Wasserflächen und Regenwasser am Boden wird der Feuchtefluss direkt aus dem vertikalen Feuchtegradienten bestimmt. Die Abschätzung der Bowenverhältnisse für alle Landnutzungsklassen und die jeweiligen atmosphärischen Bedingungen erfolgt dabei aus Literaturwerten (z.B. aus OKE 1987). Diese Daten beruhen oft auf den Ergebnissen verschiedener Messkampagnen und beziehen sich darüber hinaus nicht exakt auf die im Modell definierte Landnutzung. Die Verwendung der Bowenverhältnismethode ist daher auch aus diesem Grund mit Unsicherheiten behaftet.

Die prognostische Behandlung der Bodenfeuchte ermöglicht dagegen eine vom sensiblen Wärmefluss unabhängige Parametrisierung des Flusses latenter Wärme. Dadurch wird beispielsweise auch bei starker Einstrahlung der temperaturmindernde Effekt der Verdunstung berücksichtigt. Auch bei langanhaltend trockenen, sommerlichen Bedingungen hat insbesondere die Evapo-Transpiration der Pflanzen Einfluss auf den Feuchtehaushalt in der Grenzschicht. Mit der Bowenverhältnismethode kann dieser Effekt nur unzureichend wiedergegeben werden.

In der neuen FOOT3DK-Modellversion werden als prognostische Größen der Wassergehalt in einer dünnen Oberflächenschicht des Bodens  $W_g$ , einer mittleren Bodenschicht  $W_2$  sowie die Zwischenspeicherung des Wassers auf Pflanzenoberflächen  $W_r$  betrachtet. Aufgrund der Einteilung des Bodenwassergehaltes in  $W_g$  und  $W_2$  werden sowohl schnelle Fluktuationen im oberflächennächsten Wassergehalt bis in den Minutenbereich (z.B. durch Niederschlag) als auch der Tagesgang des Bodenwassergehaltes erfasst. Als wesentliche Elemente (*siehe Abbildung 3.2*) enthält diese neue Modellkomponente die Zusammenhänge zwischen den Speichertermen  $W_g$ ,  $W_2$  und  $W_r$  und den Oberflächenfeuchteflüssen  $E_g$

(Verdunstung aus dem Boden),  $E_r$  (Verdunstung von den Pflanzenoberflächen) und  $E_{tr}$  (Evapo-Transpiration der Pflanzen) sowie der Niederschlagsrate  $P$ .  $W_g$  ist dabei nicht nur von der Oberflächen-Feuchtebilanz abhängig, sondern auch über einen Restore-Term  $R$  an  $W_2$  gekoppelt. Dieser beschreibt den Wasseraustausch zwischen den entsprechenden Schichten  $d_g$  und  $d_2$ . Die turbulenten Feuchteflüsse werden ihrerseits von  $W_g$ ,  $W_2$  und  $W_r$  beeinflusst. Im Rahmen genesteter Modellläufe wurde das Bodenmodell auf seine Auswirkungen auf die Verteilung der Temperatur, Feuchte- und Zirkulationsmuster im Hinblick auf die späteren Chemie-Transportrechnungen hin untersucht. Eine ausführliche Beschreibung des Bodenmodells und der Tendenzgleichungen für die oben definierten Größen findet sich daher im *Anhang C*.



**Abbildung 3.2:** Betrachtete Größen im Bodenfeuchtemodell von FOOT3DK.

Für diese Arbeit waren keine Werte des größerskaligen Modells für den Wassergehalt des Bodens und den Bodentyp verfügbar. In MM5 erfolgt die Bestimmung der Flüsse zwar über ein Bodenmodell, aber in der verwendeten Modellversion MM5V2 werden nur die Temperaturen innerhalb der 5 Bodenschichten prognostiziert. Der Wassergehalt des Bodens wird dabei mit einem Wert von 30% des bodentypabhängigen Sättigungswertes konstant gehalten. Daten über die Bodenfeuchte zum Simulationsbeginn müssen daher für die Simulationen mit FOOT3DK abgeschätzt werden. Sensitivitätsstudien zu den Auswirkungen unterschiedlicher Anfangswerte für den Bodenwassergehalt finden sich in *Abschnitt 4.4.1*.

Für die Durchführung der lokalen Episodensimulationen im Großraum Köln wird das Modell FOOT3DK bei einer horizontalen Auflösung von  $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$  mit den Ergebnissen des letzten Nestinggebietes von MM5 (Nest 2, Bereich NRW,  $3 \text{ km} \times 3 \text{ km}$  Auflösung) angetrieben. Das Modellgebiet umfasst in der Vertikalen die Grenzschicht sowie den unteren Bereich der freien Atmosphäre bis zu einer Höhe von 5000 m mit 15 geländefolgenden

Schichten. Die unterste Modellschicht hat dabei standardmäßig eine Dicke von 30 m. Aufgrund der betrachteten Gitterweiten wird FOOT3DK im Gegensatz zum MM5 im nicht-hydrostatischen Modus betrieben, da die hydrostatische Approximation bei den Gitterweiten auf dieser Skala keine Gültigkeit mehr besitzt. Eine Simulation umfasst dabei eine Episode von zwei Tagen. Da die erste Simulationsstunde von MM5 als Einschwingphase zum Modellnesting unberücksichtigt bleibt, werden lediglich 47 Stunden simuliert. Die Daten werden halbstündlich abgespeichert und dem Model CTM2F zur Verfügung gestellt. Die für die FOOT3DK-Simulationen verwendeten Modelloptionen sind in *Tabelle 3.2* dargestellt.

Modellgitter	Arakawa-C-Gitter (MESINGER & ARAKAWA 1976) vertikale Obergrenze 5000 m 15 vertikale Schichten, unterste Schichtdicke: 30 m horizontale Auflösung 1 km
Koordinatensystem	Gauß-Krüger-System, Bezugslängengrad 6° Ost
Orographie/Landnutzung	Topographiedatensatz für die alten Bundesländer der TH Darmstadt Auflösung: ~150 m, 5 Landnutzungskategorien
Modellvariante	nicht-hydrostatisch
Randbedingungen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Lateral <ul style="list-style-type: none"> <li>- Relaxationsrandbedingung</li> </ul> </li> <li>• Boden <ul style="list-style-type: none"> <li>- Bestimmung des Bodenwärmestroms über ein Bodenmodell (,Extended-Force-Restore-Modell', JACOBSEN &amp; HEISE 1982)</li> <li>- Prognostische Bestimmung der Bodenfeuchte ebenfalls nach dem ,Force-Restore'-Konzept (NOILHAN &amp; PLANTON 1989)</li> </ul> </li> <li>• Oberrand <ul style="list-style-type: none"> <li>- Stördruck und Vertikalgeschwindigkeit verschwinden</li> <li>- Übernahme der Nestingvorgabe</li> </ul> </li> </ul>
Initialisierung	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Diastrophiephase nach (PIELKE 1984, KEULER 1990) <ul style="list-style-type: none"> <li>- allmähliche Ausbildung der Orographie</li> </ul> </li> </ul>
Nesting	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Passiv <ul style="list-style-type: none"> <li>- Präprozessor MM5NES: Vorgabe durch schichtweise horizontale Interpolation mittels kubischer Splines</li> <li>- vertikale Anpassung modellintern</li> <li>- Differenz-Diastrophie</li> <li>- Kopplung an Nestingvorgabe über Relaxionsverfahren (,Nudging')</li> </ul> </li> </ul>
Numerische Algorithmen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Zeitliche Diskretisierung <ul style="list-style-type: none"> <li>- ,Operator splitting'</li> </ul> </li> <li>• Filterung (2 <math>\Delta x</math>-Wellen) <ul style="list-style-type: none"> <li>- 3. Ordnung nach SHAPIRO (1971)</li> </ul> </li> <li>• Advektionsalgorithmus <ul style="list-style-type: none"> <li>- Impulskomponenten: QMSL</li> <li>- Skalare: Upstream-Verfahren</li> </ul> </li> </ul>

Parametrisierungen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Physikalische <ul style="list-style-type: none"> <li>- turbulente Diffusion (TKE, Schließung 1½ter Ordnung)</li> </ul> </li> <li>• planetarische Grenzschicht <ul style="list-style-type: none"> <li>- turbulente Flüsse am Modellunterrand nach LOUIS (1979), basierend auf Monin-Obukhov-Theorie</li> <li>- Strahlungsparametrisierung am Erdboden</li> </ul> </li> </ul>
--------------------	--

**Table 3.2:** Zusammenfassende Darstellung der Modellphysik und der verwendeten Optionen des meteorologischen Modells FOOT3DK (siehe auch BRÜCHER *et al.* 2003).

## 3.2 Chemietransportmodellierung

Die Berechnung atmosphärischer Vorgänge unter der Berücksichtigung luftchemischer Prozesse ist äußerst komplex, da u.a. die orts- und zeitabhängige Lösung der Massenbilanzgleichung für die jeweilige Luftbeimengung  $i$  zu finden ist. Diese lässt sich in allgemeiner Form unter der Annahme, dass die molekulare Diffusion bei den betrachteten Prozessen unbedeutend ist, wie folgt formulieren:

$$\frac{dC_i}{dt} = P_i - L_i + Q_i \quad (3.2)$$

$C_i$  bezeichnet dabei die Konzentration des Spurengases  $i$ ,  $P_i$  steht für die chemischen Produktionsterme und  $L_i$  für die Verlustprozesse.  $Q_i$  bestimmt externe Quellen für die betrachtete Spezies durch Emissionen. Eine analytische Lösung dieser Gleichung ist nur mit sehr einschränkenden Annahmen möglich. Sollen möglichst alle meteorologischen Rahmenbedingungen und luftchemischen Prozesse berücksichtigt werden, kann die Lösung der Massenbilanzgleichung nur numerisch erfolgen. Eine Übersicht verschiedener Ansätze zur numerischen Behandlung der Ausbreitung von Luftbeimengungen findet sich z.B. bei STEFFANY (1995).

### 3.2.1 Das EURAD-Chemie-Transport-Modell CTM2

#### Grundlagen

Bei dem EURAD-CTM2 handelt es sich um ein *Euler-Modell*, bei dem das Modellgebiet durch ein festes Gitternetz in eine Vielzahl von einzelnen Volumenelementen aufgeteilt wird. Dabei wird innerhalb einer solchen Gitterbox eine homogene räumliche Verteilung der jeweiligen Luftbeimengung angenommen. Die Größe der Gitterzelle bestimmt somit die maximal mögliche räumliche Auflösung bei der Berechnung der Immissionsverteilung.

Die Konzentrationsverteilung in den einzelnen Gittervolumina wird durch die lokalzeitliche Lösung der Massenbilanzgleichung für Luftbeimengungen berechnet. Mittels der Euler-Zerlegung  $dC_i/dt = \partial C_i/\partial t + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} C_i$  und unter Annahme der Divergenzfreiheit des Windfeldes lässt sich Gleichung (3.2) umformen und in Flussform darstellen:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\vec{v} C_i) = P_i - L_i + Q_i \quad (3.3)$$

In dieser Schreibweise wird der Einfluss des Windfeldes auf die Konzentrationsverteilung besonders deutlich. Aufgrund der geringen Fluktuationsbewegungen der Teilchen in der Luft spielt die molekulare Diffusion bei atmosphärischen Transport- und Mischungsprozessen nur eine untergeordnete Rolle (siehe z.B. ZENGER 1998). Fast alle Vorgänge in der Grenzschicht werden allerdings durch turbulente Prozesse geprägt. Statt der Brown'schen Molekularbewegung tritt bei der turbulenten Diffusion eine ungeordnete Bewegung ganzer Strömungspakete auf. Um die turbulente Struktur der Strömung beschreiben zu können werden mittels der *Reynolds-Zerlegung* die betrachteten Größen in einen mittleren und einen fluktuierenden Anteil zerlegt. Für eine beliebige Größe  $A$  gilt die Beziehung:

$$A = \bar{A} + A' \quad (3.4)$$

Angewendet auf die Geschwindigkeitskomponenten und das Konzentrationsfeld lässt sich Gleichung (3.3) wie folgt umformen, wenn man die Beziehung  $\overline{C'_i} = \overline{u'} = \overline{v'} = \overline{w'} = 0$  berücksichtigt:

$$\frac{\partial \bar{C}_i}{\partial t} = -\vec{\nabla} \cdot (\bar{\vec{v}} \bar{C}_i) - \vec{\nabla} \cdot (\overline{\vec{v}' C'_i}) + P_i - L_i + Q_i \quad (3.5)$$

Dabei beschreibt der erste Term auf der rechten Seite die Advektion der Luftbeimengung  $i$  mit dem mittleren Wind und der zweite Term deren turbulente Diffusion. Außer der zu berechnenden Konzentration  $C_i$  enthält Gleichung (3.5) noch die drei unbekanntenen Größen  $\overline{u' C'_i}$ ,  $\overline{v' C'_i}$  und  $\overline{w' C'_i}$ . Um das Gleichungssystem zu schließen, müssen diese mittleren turbulenten Flüsse parametrisiert werden. Dies geschieht im CTM2 durch den sogenannten K-Gradientansatz, der auf der Annahme beruht, dass die mittleren turbulenten Flüsse proportional dem Gradienten der mittleren Konzentration des jeweiligen Stoffes  $\bar{C}_i$  gesetzt werden können. In Analogie zur Wärmeleitung wird angenommen, dass ein Transport von Luftbeimengungen entgegengesetzt zu diesem Gradienten erfolgt:

$$\vec{\nabla} \cdot (\overline{\vec{v}' C'_i}) = -\vec{\nabla} \cdot (\mathbf{K} \nabla \bar{C}_i) \quad (3.6)$$

Der dreidimensionale Tensor  $\mathbf{K}$  beschreibt dabei die turbulente Diffusion und ist abhängig vom turbulenten Zustand des Mediums. Zur Beschreibung der turbulenten Diffusion von skalaren Größen in der Atmosphäre ist es üblich, alle nichtdiagonalen Elemente des Ten-

sors zu vernachlässigen (siehe z.B. SEINFELD 1986). In der Atmosphäre werden somit normalerweise die Elemente  $K_{ux}$ ,  $K_{vy}$  und  $K_{wz}$  in Abhängigkeit von der Strömung und der atmosphärischen Schichtung parametrisiert und als Diffusionskoeffizienten bezeichnet. Die zentrale Gleichung für Euler-Modelle mit K-Ansatz ist daher die Advektions-Diffusionsgleichung mit einer K-Parametrisierung der turbulenten Flüsse (hier zur besseren Anschauung in Komponentenschreibweise unter Verwendung der Einstein'schen Summenkonvention):

$$\frac{\partial \bar{C}_i}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x_j} (\bar{u}_j \bar{C}_i) + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \delta_{jk} K_{jk} \frac{\partial \bar{C}_i}{\partial x_k} \right) + P_i - L_i + Q_i \quad (3.7)$$

### Modellbeschreibung

Das CTM2 wurde aus dem ‚Regional Acid Deposition Model‘ (RADM) von CHANG *et al.* (1987) entwickelt. Dieses Modell wurde in allen wesentlichen Teilen (z.B. Wolkenmodul, Grenzschicht, Integrationsverfahren, Präprozessoren) bis auf den Chemie-Mechanismus verändert (siehe HASS 1991). Es berücksichtigt die grundlegenden physikalischen Prozesse wie Ausbreitung und turbulente Diffusion, Strahlung, homogene Gasphasenreaktionen und Reaktionen in der Nassphase (durch Wolken und Regen) sowie trockene und nasse Deposition. Das Modell ist entsprechend dem MM5, dessen Gitterinformationen es übernimmt, in bis zu 23 Höhenschichten im geländefolgenden  $\sigma$ -Koordinatensystem eingeteilt mit einer Obergrenze bis zu 10 hPa. Allerdings benutzt das CTM2 zur numerischen Diskretisierung der Modellgleichungen eine Arakawa-C-Gitterstruktur. Zur Behandlung der Gasphasenchemie wird standardmäßig der RADM2-Mechanismus nach STOCKWELL *et al.* (1990) verwendet (*siehe auch Anhang B*). Dieser umfasst 158 chemische Reaktionen und 63 gasförmige Substanzen, von denen 42 in der Atmosphäre transportiert werden. Neben den primär emittierten gasförmigen anorganischen Verbindungen ( $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{SO}_4$ ,  $\text{CO}$ ) und 16 organischen Verbindungen (teilweise gruppiert nach ihrer Reaktivität) werden damit auch photochemisch produzierte Folgeprodukte erfasst ( $\text{O}_3$ , PAN,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}_5$ , HONO,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HNO}_4$ ). Optional steht dem Modell auch der Chemie-Mechanismus RACM (STOCKWELL *et al.* 1997) zur Verfügung. Dieser ist eine Weiterentwicklung des RADM2, insbesondere im Hinblick auf die Behandlung biogen emittierter Kohlenwasserstoffe.

Für jede der transportierten Spezies  $i$  wird im CTM2 jeweils in allen Schichten die Advektions-Diffusionsgleichung (3.7) gelöst.  $Q_i$  bezeichnet hier den Eintrag des jeweiligen Gases ins Modell durch als intern betrachtete Emissionsquellen. Die benötigten Emissionsraten werden durch das Emissionsmodell EEM (*siehe Abschnitt 3.3.1*) zur Verfügung gestellt. Am unteren Rand können Schadstoffe durch trockene oder nasse Deposition abgelagert

gert werden. Am Modelloberrand findet kein Austausch mit den darüber liegenden Regionen statt.

Die zur Berechnung photochemischer Reaktionen benötigten Photolyseraten werden in einem Präprozessor für wolkenfreien Himmel über die aktinischen Flüsse zum jeweiligen Datum für verschiedene geographische Breiten, Tageszeiten und Höhen nach MADRONICH (1987) oder RUGGABER *et al.* (1994) berechnet. Diese Werte können sowohl durch einen festen Faktor als auch über ein Modul, das den Einfluss von Wolken simuliert, modifiziert werden. Weiterführende Informationen zur Modellphysik und deren numerischen Implementierung finden sich bei HASS (1991) und EBEL *et al.* (1997).

### **Initialisierung**

Der Chemie-Transport-Mechanismus ist vom mathematischen Standpunkt aus gesehen eine Rand- und Anfangswertaufgabe (IRVING 1991). Eine möglichst genaue Kenntnis der dreidimensionalen Verteilung aller im Modell simulierten chemischen Komponenten zu Beginn der Berechnung und an den Rändern des Modellgebietes während des zeitlichen Verlaufs ist daher wichtig für die Güte der Simulation. Die Verteilung der Spurenstoffe in der Atmosphäre ist allerdings meist weder für alle betrachteten Spezies noch in der erforderlichen räumlichen und zeitlichen Auflösung bekannt. Daher wird zur Initialisierung des Modells ein Verfahren basierend auf CHANG *et al.* (1987) angewandt, welches in der Generierung eines im Rahmen des Chemie-Mechanismus selbstkonsistenten Datensatzes besteht. Dazu wird ausgehend von klimatologischen Werten mit dem Modell ein Zeitraum von zwei Tagen mit den vorherrschenden meteorologischen Bedingungen und Emissionswerten simuliert. Die benötigten klimatologischen Werte basieren auf verfügbaren Messungen. Mit ihrer Hilfe werden vertikale Profile für die prognostischen Spezies mit mittlerer bis langer Lebenszeit abgeleitet. Diese werden zum Zeitpunkt des Simulationsbeginns über das Modellgebiet verteilt. Die entsprechenden Profile können dabei von verschiedenen Parametern wie z.B. der Jahreszeit und der geographischen Breite abhängen, um der jeweiligen Situation zu entsprechen. Im Verlauf der Simulation bauen sich aufgrund der Emissionen und des Transports realistische Konzentrationsverteilungen der betrachteten chemischen Komponenten auf. Durch photochemische Prozesse stellen sich auch die kurzlebigen Spezies im Einklang mit den restlichen Stoffen ein. Die mit Hilfe dieses Vorlaufs gewonnenen Spurenstoffverteilungen liefern somit die Anfangswerte für die eigentliche Episode. Für die Modellsimulationen im Rahmen dieser Arbeit sind die verwendeten Einstellungen in *Tabelle 3.3* zusammengefasst.



Modellgitter	Arakawa-C-Gitter (MESINGER & ARAKAWA 1976) vertikale Obergrenze 10 hPa 23 vertikale Schichten, unterste Schichtdicke: 40 m horizontale Auflösung je nach Gebiet 27 km bis 3 km
Projektion	Lambert-konform
Randwerte	<ul style="list-style-type: none"> <li>• feste Randwerte auf der Basis von Beobachtungsdaten</li> <li>• bei Nesting <ul style="list-style-type: none"> <li>- Randwerte durch zugehöriges Muttergitter festgelegt</li> </ul> </li> <li>• Boden <ul style="list-style-type: none"> <li>- Flussbedingung parametrisiert durch zeitabhängige Depositionsgeschwindigkeiten und Stoffflüsse durch Emissionen</li> </ul> </li> <li>• Oberrand <ul style="list-style-type: none"> <li>- kein vertikaler Austausch am Oberrand (Übernahme der Vertikalgeschwindigkeiten aus MM5)</li> </ul> </li> </ul>
Anfangswerte	horizontal homogen (Standardprofile, jahreszeitenabhängig)
Initialisierung	2 Tage-Vorlauf mit Anfangswertbedingungen
Nesting	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Übernahme der MM5-Nestinggebiete</li> <li>• Einwege-Nesting über ein monotones Interpolationsschema an den Rändern des genesteten Gebietes</li> </ul>
Numerische Algorithmen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Zeitsplitting (symmetrische Operatorenzerlegung) <ul style="list-style-type: none"> <li>- Methode der ‚fractional steps‘</li> </ul> </li> <li>• Advektionsalgorithmus (hor./vert.) <ul style="list-style-type: none"> <li>- Bott-Verfahren 4. Ordnung (BOTT 1989)</li> </ul> </li> <li>• Lösungsalgorithmus (Chemie) <ul style="list-style-type: none"> <li>- QSSA-Verfahren (‚Quasi Stady State Algorithm‘) nach HESTVEDT <i>et al.</i> (1978)</li> </ul> </li> <li>• vertikale Diffusion <ul style="list-style-type: none"> <li>- implizit nach LOUIS (1979)</li> </ul> </li> </ul>
Parametrisierungen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• physikalische <ul style="list-style-type: none"> <li>- keine horizontale turbulente Diffusion</li> </ul> </li> <li>• turbulenter vertikaler Austausch <ul style="list-style-type: none"> <li>- Schließung 1. Ordnung (Eddy-Diffusion, Monin-Obukhov) mit PBL-Skalierungsansatz</li> </ul> </li> <li>• Photolyseraten <ul style="list-style-type: none"> <li>- MADRONICH (1987)</li> </ul> </li> <li>• Wolken <ul style="list-style-type: none"> <li>- RADM2.6</li> </ul> </li> </ul>
Chemische Prozesse	Gasphasenchemie Nassphasenchemie
Chemie-Mechanismus	RADM2 (STOCKWELL <i>et al.</i> 1990)

**Tabelle 3.3:** Zusammenfassende Darstellung der Modellphysik und der verwendeten Optionen des Chemie-Transport-Modells CTM2 (siehe auch HASS 1991 und EBEL *et al.* 1997).

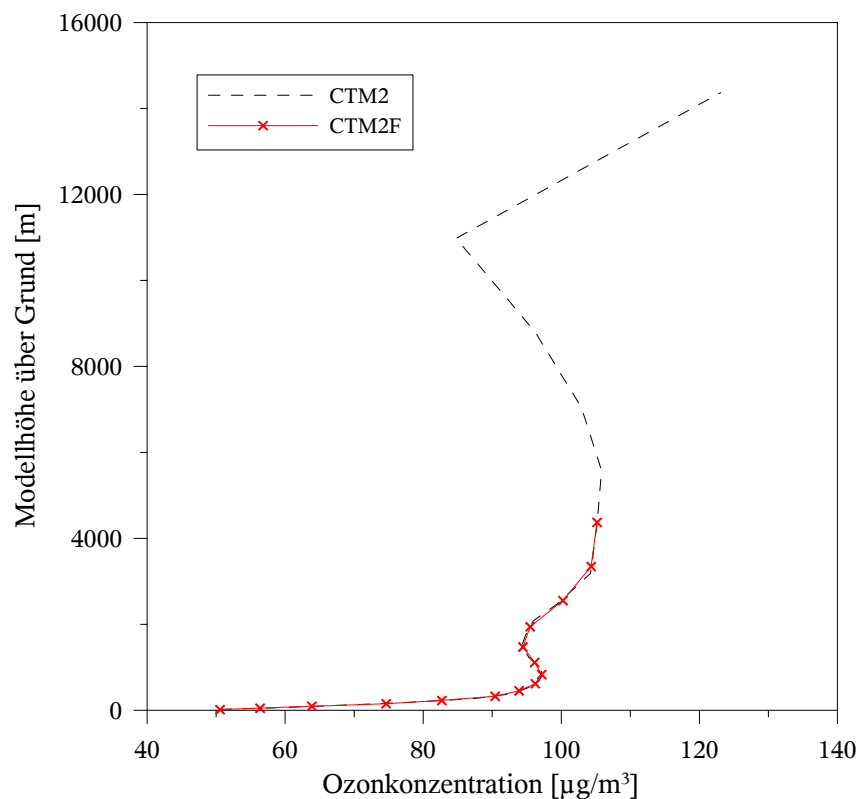
### 3.2.2 Das Chemie-Transport-Modell CTM2F

CTM2F ist das Chemie-Transportmodul für das Modell FOOT3DK. Es basiert in der Beschreibung der chemischen Prozesse auf den Routinen des EURAD-CTM2. Als Lösungsalgorithmus für den Chemiemechanismus RADM2 wird allerdings das auf einer Gauß-Seidel-Relaxation basierende BDF2-Verfahren („Backward Differentiating Formula“) nach VERWER (1994) verwendet. Das Gitter, die Advektion, die turbulente Diffusion und die Behandlung der Emissionen sind von FOOT3DK übernommen worden (SENTUC & BRÜCHER 2004). Diese lokale Modellvariante wurde speziell für die Berechnung von bewölkungsarmen Sommersmogepisoden konzipiert. Deshalb wurde auf die Implementierung der Nassphasenchemie in Wolken verzichtet, da diese Prozesse bei Schönwetterperioden eine vernachlässigbare Rolle spielen (EBEL *et al.* 1997, LANGMANN & BAUER 2002). Dementsprechend wird auch die nasse Deposition nicht berechnet. Die in der ersten CTM2F-Version vorhandene, vereinfachte Behandlung der Photolyseraten wurde überarbeitet, so dass nun auch die Höhenabhängigkeit berücksichtigt wird (nach MADRONICH 1987). Der Einfluss von Wolken auf diese Photolyseraten, die für wolkenfreien Himmel initialisiert werden, kann allerdings bei Bedarf über einen Reduktionsfaktor in den einzelnen Episodensimulationen weiterhin berücksichtigt werden. Die trockene Deposition wird über einen Widerstandsansatz nach PEREGO (1996) bestimmt. Biogene Emissionen von Waldgebieten werden innerhalb des Modells abhängig von der Tageszeit und der Temperatur nach einem Ansatz von LÜBKERT & SCHÖPP (1989) berechnet. Die biogenen Kohlenwasserstoffe werden dementsprechend als Isopren ( $C_5H_8$ ) emittiert. Zum Vergleich sind in *Tabelle 3.4* die Modelloptionen in CTM2F zusammengefasst.

Modellgitter	Arakawa-C-Gitter (MESINGER & ARAKAWA 1976) vertikale Obergrenze 5000 m 15 vertikale Schichten, unterste Schichtdicke: 30 m horizontale Auflösung 1 km
Koordinatensystem	Gauß-Krüger-System, Bezugslängengrad 6° Ost
Orographie/Landnutzung	Topographiedatensatz für die alten Bundesländer der TH Darmstadt Auflösung: ~150 m, 5 Landnutzungskategorien
Randwerte	<ul style="list-style-type: none"> <li>• bei Nesting <ul style="list-style-type: none"> <li>- zeitabhängige Randwertvorgabe</li> <li>- 3D-Relaxationsrandbedingung</li> </ul> </li> <li>• Boden <ul style="list-style-type: none"> <li>- Stoffablagerung über zeitabhängige Depositionsgeschwindigkeiten</li> <li>- anthropogene und biogene Emissionen als Flächen- und Punktquellen</li> </ul> </li> <li>• Oberrand <ul style="list-style-type: none"> <li>- Übernahme der Vorgabe</li> </ul> </li> </ul>

Nesting	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Übernahme des FOOT3DK-Nestinggebietes</li> <li>• Präprozessor CTMNES <ul style="list-style-type: none"> <li>- horizontal bilineare Interpolation</li> <li>- vertikal schichtweise Aufteilung der Masse</li> </ul> </li> <li>• Einwege-Nesting über ein monotonies Interpolationsschema an den Rändern des genesteten Gebietes</li> </ul>
Numerische Algorithmen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Advektionsalgorithmus <ul style="list-style-type: none"> <li>- flussbasiertes Upstream-Verfahren</li> </ul> </li> <li>• Lösungsalgorithmus (Chemie) <ul style="list-style-type: none"> <li>- BDF2-Verfahren nach VERWER (1994)</li> </ul> </li> </ul>
Parametrisierungen	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Physikalische <ul style="list-style-type: none"> <li>- turbulente Diffusion (TKE, Schließung 1½ter Ordnung)</li> </ul> </li> <li>• planetarische Grenzschicht <ul style="list-style-type: none"> <li>- turbulente Flüsse am Modellunterrand nach LOUIS (1979), basierend auf Monin-Obukhov-Theorie</li> <li>- Strahlungsparametrisierung am Erdboden</li> </ul> </li> <li>• Photolyseraten (nach MADRONICH 1987)</li> </ul>
Chemie-Mechanismus	Gasphasenchemie RADM2

**Tabelle 3.4:** Übersicht der Modellparameter des Modells CTM2F (siehe auch SENTUC & BRÜCHER 2004).



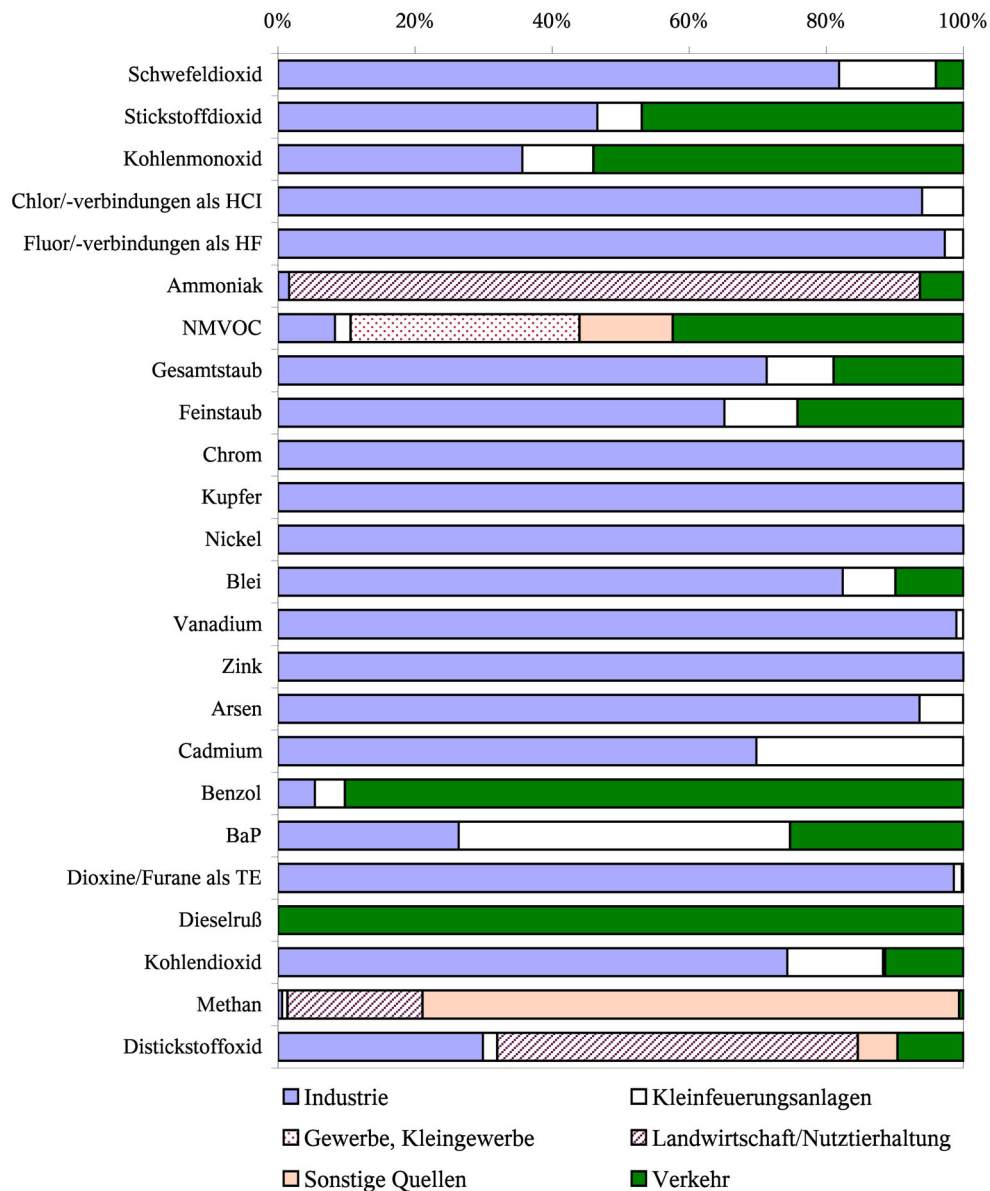
**Abbildung 3.3:** Beispiel für die Massenaufteilung im Präprozessor CTMNES. Dargestellt sind das Ausgangs-Ozonprofil der CTM2-Daten und das Profil nach der Massenaufteilung als Nestingvorgabe für das Modell CTM2F.

Die Aufbereitung der Daten des übergeordneten Modells CTM2 erfolgt durch den Präprozessor CTMNES. Dieser unterscheidet sich wesentlich von den Verfahren, wie sie für FOOT3DK (s.o.) verwendet werden. Im Gegensatz zur Nestingaufbereitung für FOOT3DK erfolgt die horizontale Interpolation der Daten nicht mit kubischen Splines sondern bilinear. Dies hat den Vorteil, dass bei scharfen Gradienten in den Konzentrationsfeldern keine Artefakte wie negative Konzentrationen entstehen. In der Vertikalen wird als weiterer Unterschied bereits in CTMNES eine Konvertierung der CTM2-Niveaus auf die Modellschichten von CTM2F durchgeführt. Damit die Massenerhaltung der jeweils betrachteten chemischen Spezies gewährleistet ist, findet dabei keine Interpolation sondern eine schichtweise Aufteilung der Masse auf die korrespondierenden CTM2F-Schichten statt. In *Abbildung 3.3* ist als Beispiel für die korrekte Massenaufteilung die sehr gute Übereinstimmung der Ozonprofile vor und nach der Aufbereitung durch den Präprozessor zu sehen.

### 3.3 Emissionsdaten

Wie bereits in *Kapitel 2* erwähnt, haben besonders die Emissionsdaten bei der Simulation von chemischen Vorgängen in der Atmosphäre maßgeblichen Einfluss auf die Ergebnisqualität. Die Beschaffung und Aufbereitung von Emissionsdaten in einer von Chemie-Transportmodellen verwendbaren Form ist ein wesentlicher Bestandteil der Vorbereitung numerischer Ausbreitungssimulationen. Dabei müssen diese Daten auf unterschiedlichen Skalen in entsprechender Auflösung verfügbar sein. Dieses Kapitel beschäftigt sich daher mit den verwendeten Emissionsdaten und deren Aufbereitung.

Für die größerskaligen und regionalen Simulationen werden Emissionsdaten durch das EURAD-Emissionsmodell EEM (*siehe Abschnitt 3.3.1*) aufbereitet. Für die Episodensimulationen auf der lokalen Skala (Großraum Köln) werden Daten des Landesumweltamtes NRW verwendet. Die Grundlagen der Datenerhebung und die Datenbasis sind im *Emissionskataster Luft NRW 1996/97* (LUA NRW 1999) ausführlich beschrieben. Für die Berechnungen mit CTM2F werden die anthropogenen Emissionen der Emittentengruppen Industrie (genehmigungsbedürftige Anlagen), Gewerbe/Kleingewerbe und Kleinfeuerungsanlagen in Haushalten (nicht genehmigungsbedürftige Feuerungsanlagen) sowie des Verkehrs berücksichtigt. Diese Daten liegen als Punktquellen (im Fall der genehmigungsbedürftigen Anlagen) bzw. als Rasterdaten mit einer Auflösung von  $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$  vor. Zusätzlich werden biogene Emissionen von Waldflächen betrachtet, wie in *Abschnitt 3.2.2* beschrieben.

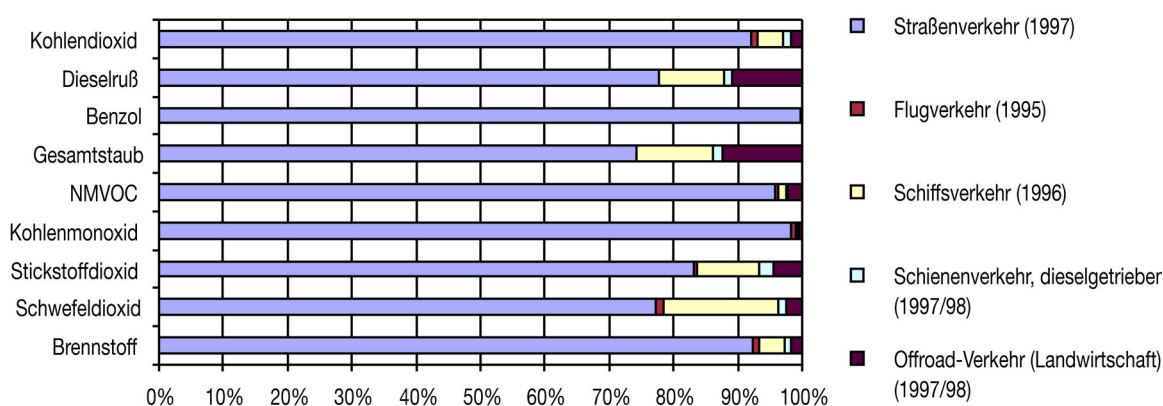


**Abbildung 3.4:** Emissionen nach prozentualen Anteilen der Emittentengruppen (aus: Emissionskataster Luft 1996/97, Landesumweltamt NRW)

Für die meisten im LUA-Emissionskataster betrachteten Schadstoffe ist die Industrie im Bezugsjahr 1997 Hauptverursacher der Emissionen (z.B. für Schwermetalle und Chlor- oder Fluorverbindungen) und stellt damit eine fast dominante Emittentengruppe dar. In dieser Arbeit wird zur Simulation einer Sommersmogepisode insbesondere Wert auf die Berücksichtigung der für photochemische Reaktionen wichtigen Vorläuferstoffe gelegt. Spezielle Aufmerksamkeit gilt daher auf der lokalen Skala u.a. den Emissionen von Stickoxiden ( $\text{NO}_x$ ) und flüchtigen organischen Substanzen ohne Methan (NMVOC) in Zusammenhang mit der Produktion von Ozon (als Tracer für photochemisch gebildete sekundäre

Schadstoffe) bei sommerlichen Strahlungswetterlagen. Die besondere Rolle des Verkehrs als Emittent dieser Stoffe wird durch *Abbildung 3.4* deutlich. Im Fall der NMVOC ist auch die gewerbliche Verwendung von Lösungsmitteln (z.B. in Farben und Lacken) mit einem hohen Anteil vertreten; bei den Stickoxiden sind die Werte von Industrie und Verkehr in etwa vergleichbar. Auch bei den Emissionen von Kohlenmonoxid (CO) und Stäuben ist der Verkehrssektor maßgeblich beteiligt. Krebserrigende Stoffe wie Benzo[a]Pyren (BaP) und insbesondere Benzol sind ebenfalls zu einem Großteil auf die Verkehrsemissionen zurückzuführen.

Innerhalb des Verkehrssektors sind die Emissionen des Straßenverkehrs dominierend (*siehe Abbildung 3.5*). Daher werden im Rahmen dieser Arbeit zur Beschreibung dieser wichtigen Emittentengruppe zusätzlich die räumlich und zeitlich hochaufgelösten Emissionsdaten des dynamischen Verkehrsmodells FASTLANE verwendet (*siehe Abschnitt 3.3.2*).

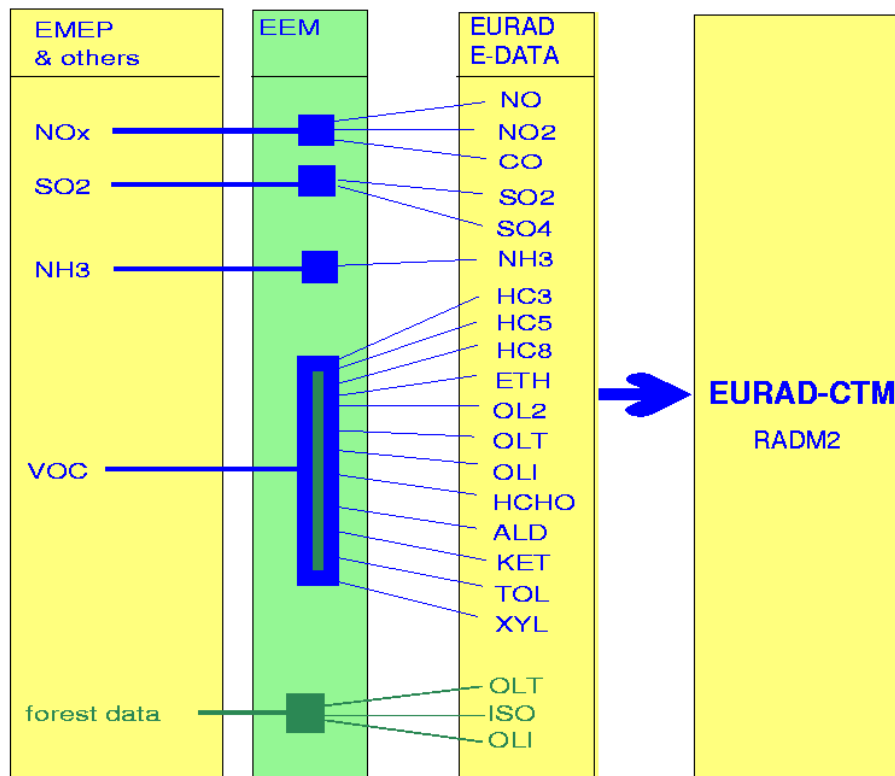


**Abbildung 3.5:** Prozentuale Anteile der verschiedenen Verkehrsträger am Brennstoffverbrauch und an den Emissionen (aus: Umwelt NRW, Daten und Fakten, Landesumweltamt NRW). Bei der Ermittlung der Emissionen des Flugverkehrs sind hier nur bodennahe Emissionen durch zivilen Instrumenten- und Sichtflug bis zu einer Höhe von 450m einschließlich der Rollbewegungen auf dem Boden berücksichtigt worden.

Innerhalb des betrachteten Modellgebietes im Großraum Köln befindet sich mit dem Rhein die längste Wasserstraße Nordrhein-Westfalens (Länge 225 km). Im Jahr 1996 wurden mit 421.700 t Kraftstoff 95% der Gesamtmenge auf allen Binnenschiffahrtsstraßen in NRW verbraucht. Bezogen auf einen Streckenabschnitt von 1 km ist der Brennstoffverbrauch durch die Schifffahrt auf dem Rhein mit 1874 t/a durchaus mit denen durch Kraftfahrzeuge auf einer Autobahn (1840 t/a auf 1 km, Bezugsjahr 1997) zu vergleichen. Die Emissionen des Schiffsverkehrs dürfen daher im Bereich der Stadt Köln im Gegensatz zu den anderen Verkehrsemissionen keinesfalls vernachlässigt werden (*siehe auch Abschnitt 4.4.3*).

### 3.3.1 Das EURAD- Emissionsmodell EEM

Das EURAD-Emissionsmodell bereitet anthropogene und biogene Emissionsdaten für Chemie-Transport-Rechnungen mit dem EURAD-System auf. Das EEM stellt damit die Schnittstelle zwischen den Emissionsdatensätzen, die für bestimmte Modellgebiete und Episoden verfügbar sind, und dem CTM2 dar. Die für die Simulation einer bestimmten Episode und ein bestimmtes Gebiet verfügbaren Emissionsdaten liegen selten in einer Form vor, die eine direkte Verwendung im EURAD-CTM2 erlaubt. Das EEM transformiert die verfügbaren Emissions-Rohdaten räumlich auf die vom EURAD-CTM2 verwendeten Gitter, stellt die benötigten chemischen Komponenten (beispielsweise für den Chemie-Mechanismus RADM2) zur Verfügung und liefert die benötigten Emissionsraten mit der zeitlichen Auflösung von einer Stunde.



**Abbildung 3.6:** Schemadiagramm zur Aufbereitung der Emissionsdaten für den RADM2-Chemie-Mechanismus durch das EURAD-EEM (Quelle: Rheinisches Institut für Umweltforschung, RIU)

Für die europäische Skala bis zu einer Maschenweite von ca. 10 km wird, sofern keine Daten aus anderen Quellen zur Verfügung stehen, auf die Datenbasis des EMEP (,Co-operative programme for monitoring and evaluation of long range transmission of air pollutants in Europe') zugegriffen. Die Emissionsdaten werden vom EMEP-Gitter mit Hilfe

der Bevölkerungsdichte auf beliebige EURAD-Gitter transformiert. Die Aufteilung der verfügbaren Daten in die RADM-Gruppen ist exemplarisch in *Abbildung 3.6* dargestellt. Für spezielle Anwendungen stehen räumlich und zeitlich hochaufgelöste Emissionsdaten für zahlreiche chemische Konstituenten zur Verfügung. Diese Daten sind jedoch häufig nur für ein bestimmtes Gebiet in dieser Form vorhanden. So werden bei den in dieser Arbeit vorgestellten Episodensimulationen für die regionale Skala u.a. Emissionsdaten der RADM2-Komponenten des Landesumweltamtes NRW für Nordrhein-Westfalen auf einem  $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$  Raster verwendet.

### 3.3.2 Das Verkehrsmodell FASTLANE

Im Rahmen des Verbundprojektes NRW-FVU begann eine Kooperation zur Berechnung von Verkehrsauswirkungen mit dem Zentrum für Angewandte Informatik (ZAIK) der Universität zu Köln, die im SFB 419 weitergeführt wurde und bis heute besteht. Durch diese Zusammenarbeit stehen für die lokalen Simulationen berechnete Verkehrsemissionsdaten für das Stadtgebiet von Köln zur Verfügung. Der am ZAIK verwendete dynamische Ansatz zur Simulation des Straßenverkehrs erlaubt, wichtige Effekte wie die Staubbildung sowie die Interaktion zwischen den einzelnen Fahrern im Verkehrsnetz zu erfassen, und mit diesen Daten ein hochaufgelöstes Kataster der Verkehrsemissionen zu berechnen. Durch die Verfolgung der Fahrzeuge in einem variablen Straßennetz können städteplanerische Maßnahmen wie z.B. der Ausbau eines Autobahnringes oder die Sperrung eines Verkehrsweges simuliert werden. Die am ZAIK berechneten Emissionsdaten bieten neben einer hohen räumlichen und zeitlichen Auflösung das Potential, Auswirkungen von möglichen Änderungen der Verkehrswege als Szenarien zu berechnen.

#### **Dynamische Verkehrssimulation**

Um die Effekte der über den Tagesverlauf lokal stark variierenden verkehrsbedingten Schadstoffemissionen auf die Immissionsstruktur und die Spitzenkonzentrationen für ein Stadtgebiet untersuchen zu können, sind räumlich und zeitlich hochaufgelöste Emissionskataster notwendig. Die Menge der freigesetzten Schadstoffe ist hierbei stark abhängig von der zeitlichen Dynamik des Verkehrsflusses. Diese wird bestimmt durch die täglichen Ganglinien des Verkehrs (Netzwerkebene), Staubbildung (Ebene einzelner Straßenabschnitte) und die Dynamik einzelner Fahrzeuge. Zur Berechnung von Verkehrsströmen in großen Straßennetzen werden allerdings häufig statische Umlegungsverfahren verwendet. Diese Verfahren basieren auf dem sogenannten ‚static traffic assignment‘ (SHEFFI 1985) und berechnen lediglich über viele Stunden gemittelte Verkehrsbelastungen, so dass die oben genannten dynamischen Effekte nicht abgebildet werden können. Mikroskopische Simula-

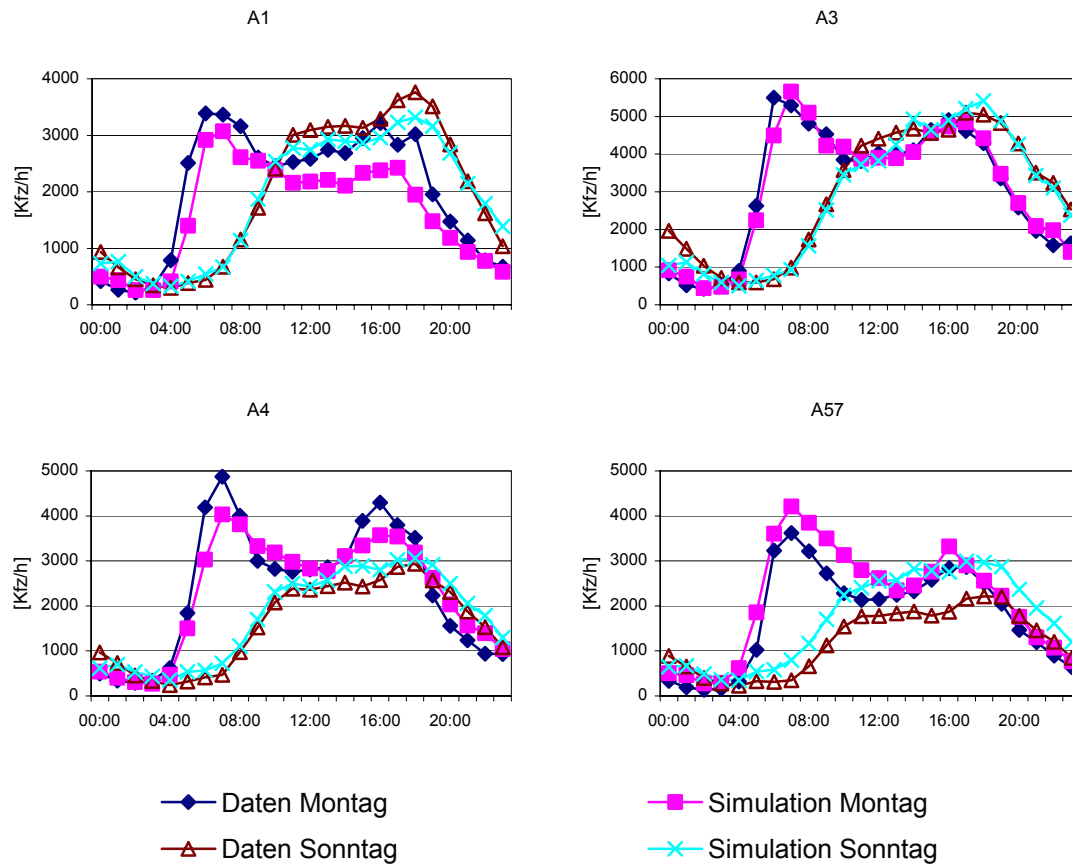


tionsmodelle auf der Basis von Einzelfahrzeugen ermöglichen es dagegen, diese zeitlichen Abhängigkeiten zu berücksichtigen (KRAUB 1998, WILLIAMS *et al.* 1999). Gekoppelt an Online-Daten aus Messschleifen, lassen sich mit Hilfe solcher Modelle aktuelle Emissionsbelastungen berechnen (MARSDEN *et al.* 2001).

In der Regel sind hochaufgelöste Verkehrsdaten aus Messschleifen nicht flächendeckend verfügbar. Um großskalige Szenariensimulationen durchführen zu können, muss deshalb aus bekannten Daten über die Verkehrsnachfrage der Netzzustand berechnet werden. Mit Hilfe von Methoden der dynamischen Verkehrsumlegung (RAN & BOYCE 1996, GAWRON 1998a) lässt sich eine gegebene Nachfrage unter vollständiger Berücksichtigung zeitabhängiger Effekte auf das Netz verteilen und ermöglicht so eine dynamische Simulation des Verkehrs auch für große Verkehrsnetze. Verkehrsmanagementstrategien (Umverteilung des Verkehrsaufkommens, Änderungen der Flottenzusammensetzung, Ausbau von Straßen, Tempolimits etc.) lassen sich mit diesem Ansatz auf ihr Reduktionspotential hin bewerten.

In der dynamischen Verkehrsumlegung, die am ZAIK verwendet wird, werden aus zeitabhängigen Verkehrsnachfragebeziehungen (Start-Ziel-Matrizen) die Routen der Fahrer berechnet, die als Eingangsdaten für das Modell zur Emissionsberechnung dienen. Das Verfahren für das Modell FASTLANE wurde im Rahmen des SFB419 weiter entwickelt, wobei erstmals eine vollständig dynamische Umlegung mehrerer Millionen Fahrten für einen Wochentag (Basisszenario Großraum Köln) durchgeführt werden konnte. Der hierbei verfolgte simulationsbasierte, iterative Ansatz ist nur möglich durch die Verwendung eines sehr effizienten mikroskopischen Verkehrsmodells, das jeden Straßenabschnitt als Warteschlange abbildet (Queuemodell, GAWRON 1998a, EISSFELDT 2004). Hierdurch wird die Simulation des Netzwerkes stark beschleunigt, ohne die Möglichkeit zu verlieren, Rückstaueffekte erfassen zu können. Obwohl man auf diese Weise zwar die genaue Kenntnis über die Fahrzeugzustände verliert, ist eine direkte Berechnung der Emissionen mit diesem Modell möglich (EISSFELDT & SCHRADER 2002). Eine genauere Beschreibung des Modells FASTLANE und der verwendeten Algorithmen findet sich bei GAWRON (1998b).

Zur weiteren Parametrisierung und Validierung der dynamischen Verkehrsfluss-Simulation wurde das Basisszenario erweitert und die Verkehrsumlegung für alle Wochentage separat berechnet. *Abbildung 3.7* zeigt den Vergleich von Messschleifen-Daten verschiedener Autobahnen im Großraum Köln mit berechneten Tagesganglinien exemplarisch für zwei Wochentage. Die gezeigten Ergebnisse sind repräsentativ für die allgemein gute Übereinstimmung der simulierten Anzahl der Kraftfahrzeuge pro Stunde an den einzelnen Autobahnabschnitten.



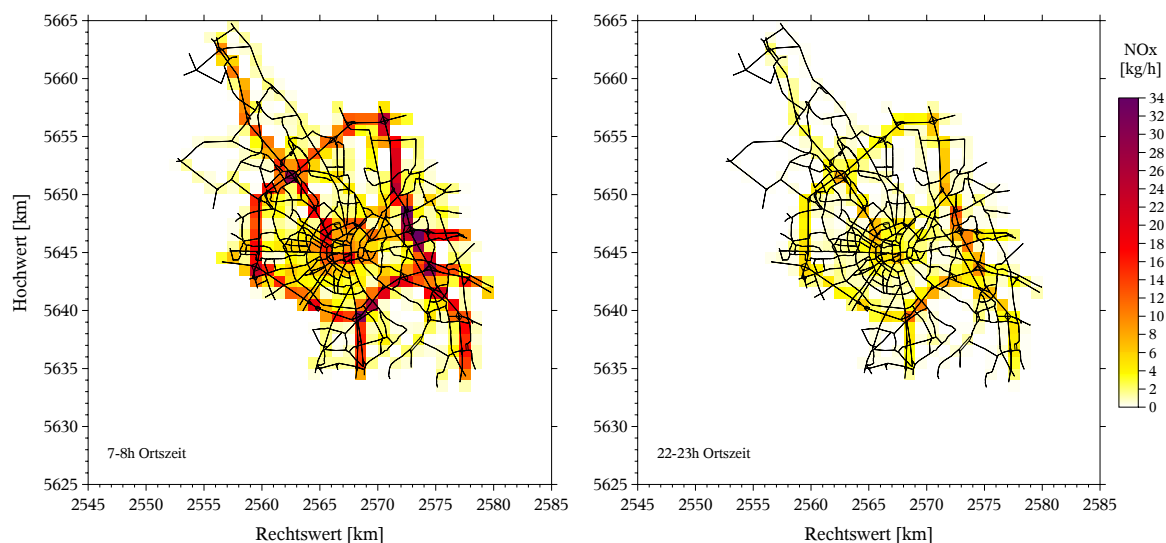
**Abbildung 3.7:** Vergleich zwischen simulierten Verkehrsmengen (Anzahl der Kraftfahrzeuge pro Stunde) mit gemessenen Daten von Autobahn-Messschleifen an vier verschiedenen Punkten im Kölner Stadtgebiet (Quelle: ZAIK; für Details zu der Verkehrsmodellierung siehe auch EISSFELDT 2004).

## Emissionsberechnung

Neben der Berechnung der Dynamik der Verkehrsströme ist die Umsetzung der so gewonnenen Daten in entsprechende Emissionswerte eine wichtige Aufgabe für die Verkehrssimulation. Das oben erwähnte Queuemodell wurde daher um ein entsprechendes Emissionsmodul erweitert und dieses anhand des Fahrzeugfolgmodells validiert. Mit Hilfe des Emissionsmoduls lassen sich die verkehrsbedingten Schadstoffe aus dem Fahrzeugzustand unter Berücksichtigung dynamischer Effekte (wie z.B. Staubildung) bestimmen. Die Emissionsberechnung basiert dabei auf der Verwendung von Emissionsfaktoren, die u.a. in Abhängigkeit von kraftfahrzeugspezifischen Einflussfaktoren (z.B. der Art des Motors) Daten über die Höhe und Zusammensetzung der Abgase je nach Fahrzeugzustand liefern. Das *Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs* (HBEFA, INFRAS 1999) liefert einen umfassenden Überblick der Bestimmungsmethoden für diese Faktoren. Es beinhaltet eine Datenbank, in der basierend auf Messungen des Emissionsverhaltens unterschiedlicher

Fahrzeugtypen aus einer Parameterauswahl wie z.B. der spezifischen Flottenzusammensetzung eines Bezugsjahres, den Verkehrssituationen (z.B. „Autobahn ohne Tempolimit“ oder „innerorts Hauptverkehrsstraße vorfahrtsberechtigt“) und einer Vielzahl weiterer möglicher Angaben die entsprechenden Emissionsfaktoren ermittelt werden.

Für die ZAIK-Verkehrssimulationen wurden Emissionsfaktoren auf dieser Grundlage für eine typische Flottenzusammensetzung des betrachteten Jahres 1997 berechnet. Im Rahmen des Verbundprojektes FVU wurden diese Faktoren in Zusammenarbeit mit dem Institut für Kraftfahrwesen Aachen (IKA) speziell für das dynamische Verkehrsmodell adaptiert. Das Ergebnis der Emissionsberechnung sind Liniendaten, die für jede einzelne Kante des Straßennetzes die Verkehrsemissionen in einer zeitlichen Auflösung von 15 bzw. 60 Minuten enthalten. Die horizontale Auflösung der ZAIK-Daten entspricht somit der jeweiligen Straßenbreite. Diese Linienquellen werden für die Verwendung in CARLOS räumlich in ein geeignetes Rasterformat konvertiert, indem die Emissionen durch Wichtung anteilig auf die Gitterzellen des Modellkatasters verteilt werden. Dabei werden als Emissionen Stickoxide  $\text{NO}_x$ , Kohlenmonoxid CO und Gesamtkohlenwasserstoffe HC betrachtet.

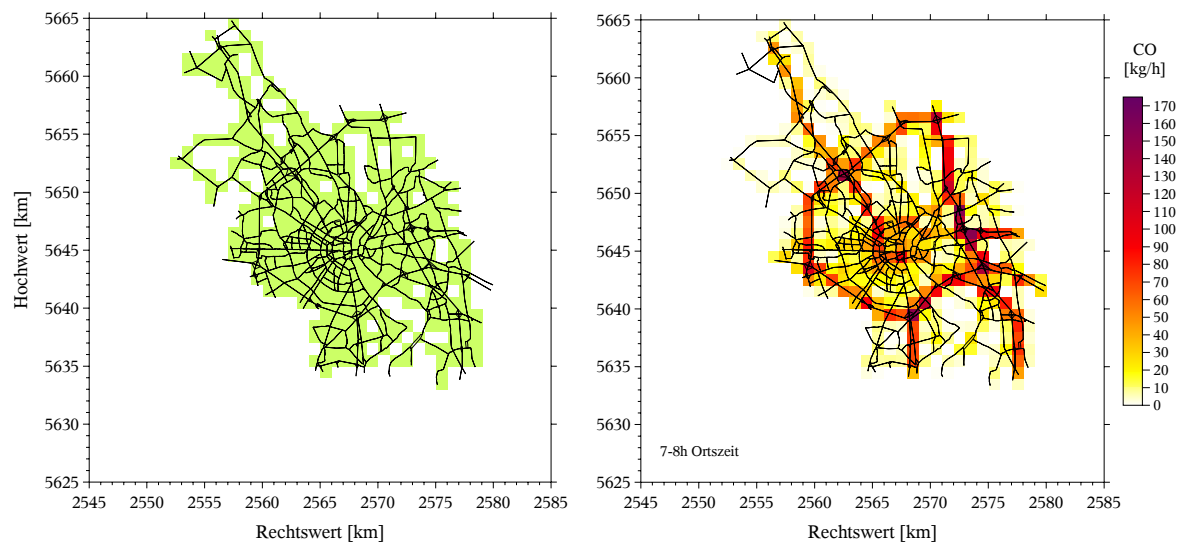


**Abbildung 3.8:**  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Straßenverkehrs auf Grundlage der dynamischen Verkehrssimulation des ZAIK für das Stadtgebiet von Köln (Basisszenario Montag). Links: Emissionsdaten zwischen 7 und 8 h Ortszeit in  $\text{kg/h}$  auf einem Raster von  $1 \text{ km}^2$  (Maximum  $33.5 \text{ kg/h}$ ). Rechts:  $\text{NO}_x$ -Emissionen zwischen 22 und 23 h (Maximum  $12.5 \text{ kg/h}$ ). Zum besseren Vergleich sind beide Grafiken mit derselben Farbskala erstellt worden.

Abbildung 3.8 zeigt für das lokale Modellgebiet (Großraum Köln,  $40 \text{ km} \times 40 \text{ km}$  Gittergröße) die ZAIK-Emissionsdaten für  $\text{NO}_x$  nach der Rasterung zu zwei verschiedenen Tageszeiten des Basisszenarios (Montag). Unterlegt ist das für die Verkehrssimulation verwendete Straßennetz innerhalb des Stadtgebietes von Köln. Das Autobahnnetz um Köln

und die Innenstadt treten sowohl zur Hauptverkehrszeit am Morgen als auch am späten Abend deutlich hervor. Der Kölner Autobahnring zählt mit durchschnittlich über 100.000 Fahrzeugen pro Tag zu den am stärksten belasteten Autobahnabschnitten Deutschlands (BAUM & GEIBLER 2001). Die Spitzenwerte der Verkehrsstärken liegen demnach laut Straßenverkehrszählung von 1995 im Bereich der A3 zwischen dem Autobahnkreuz Leverkusen und dem Autobahndreieck Heumar. Im Bereich des Dreiecks Heumar werden auf dem Kölner Ring täglich bis zu 180.000 Fahrzeuge gezählt. Derartig hohe Verkehrsmengen werden sonst nirgendwo in Deutschland erreicht.

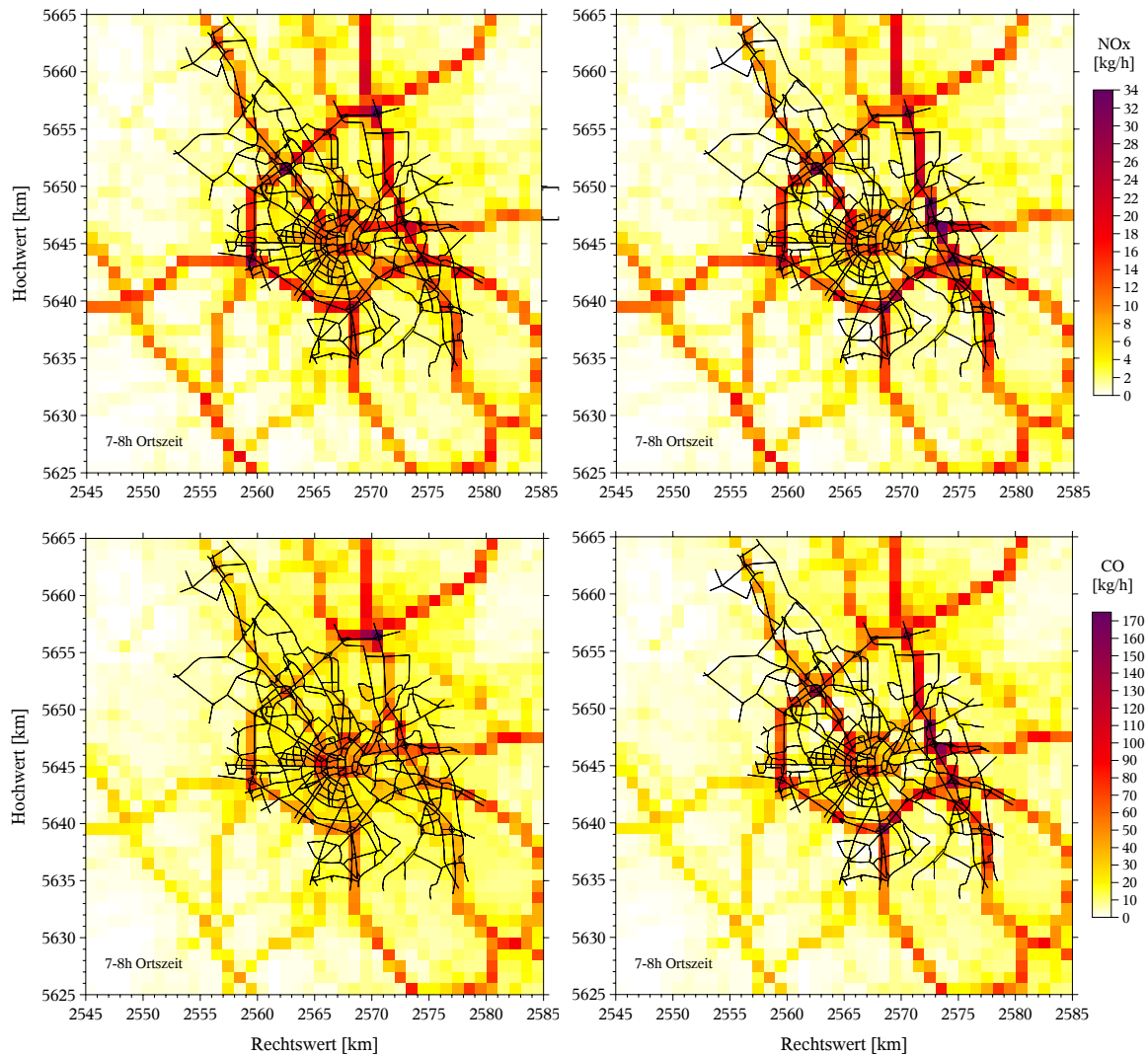
Die obige Abbildung macht allerdings deutlich, dass die ZAIK-Daten allein keine ausreichende Basis für die vollständige Berücksichtigung von Verkehrsemissionen innerhalb des Modellgebietes darstellen. Daher werden in den nicht abgedeckten Bereichen die ZAIK-Emissionswerte durch die Daten des Landesumweltamtes ergänzt. Diese liegen in stündlicher Auflösung auf einem Raster von  $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$  vor. Mittels einer Maske werden die Rasterdaten des LUA an den überdeckten Gebieten durch die ZAIK-Daten ersetzt. Dabei wurde an einigen Randabschnitten (z.B. nördlich des Autobahnkreuzes Leverkusen) auf die Verwendung der vorhandenen ZAIK-Daten verzichtet (vgl. *Abbildung 3.9*), da andernfalls an diesen Übergangsstellen teilweise unrealistische Sprünge in den Emissionskonzentrationen auftraten (siehe hierzu auch HENNIG 2002).



**Abbildung 3.9:** Links: Darstellung der optimierten Maske (maskopt) zur Verwendung der ZAIK-Daten. Rechts: Im Vergleich dazu die Darstellung der tatsächlich durch ZAIK-Daten abgedeckten Bereiche am Beispiel von Kohlenmonoxid (in  $\text{kg/h/km}^2$ ) für 7-8 h Ortszeit des Basistages Montag.

In *Abbildung 3.10* ist das Ergebnis der mit den ZAIK-Daten maskierten Datensätze zum Vergleich den reinen LUA-Daten gegenübergestellt. Insbesondere bei Kohlenmonoxid ist

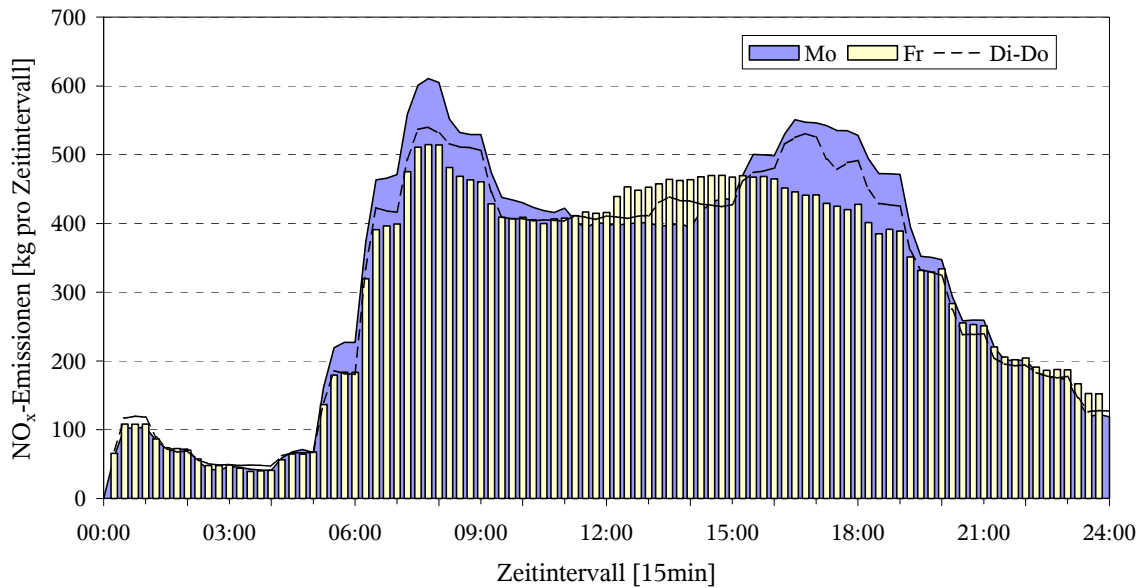
im gesamten Bereich des Kölner Ringes eine markante Erhöhung der CO-Werte durch die Verwendung der ZAIK-Daten zu erkennen. Außerdem tritt bei den  $\text{NO}_x$ -Werten des dynamischen Verkehrsmodells der besonders stark belastete östliche Teil des Autobahnringes deutlicher hervor.



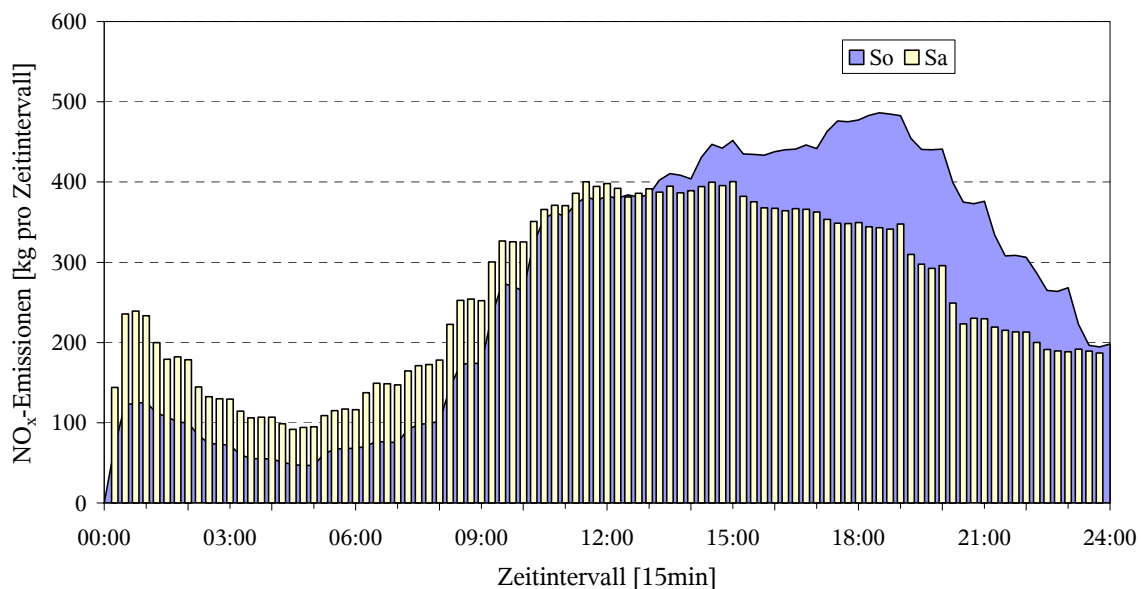
**Abbildung 3.10:** Oben:  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Straßenverkehrs. Unten: CO-Emissionen des Straßenverkehrs. Die Einheit ist jeweils  $\text{kg/h/km}^2$ . Links: LUA (Montag bis Freitag). Rechts: ZAIK-Daten für das Basisszenario Montag nach Ergänzung durch LUA-Daten (siehe obige Maske).

### Basisszenario

In den folgenden zwei Abbildungen sind die berechneten Tagesverläufe der verkehrsbedingten  $\text{NO}_x$ -Gesamtemissionen für das Basisszenario aufgetragen. An den unterschiedlichen Wochentagen unterscheiden sich die Verläufe teilweise sehr deutlich.

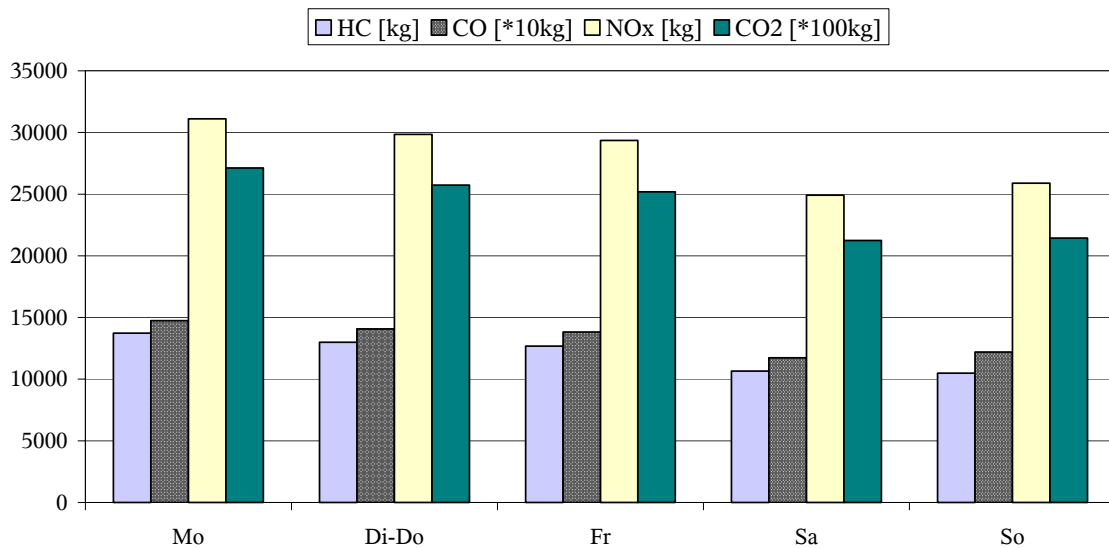


**Abbildung 3.11:** Tagesverlauf der berechneten  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Verkehrs für das Basisszenario an den unterschiedlichen Wochentagen (aufsummiert für das gesamte ZAIK-Netz). Während montags bis donnerstags ein ausgeprägter Tagesgang mit einer ‚Rushhour‘ morgens und am späten Nachmittag zu erkennen ist, beginnen freitags die Verkehrsemissionen bereits wieder ab dem Mittag anzusteigen. Der Montag unterscheidet sich von den Tagen Dienstag bis Donnerstag weniger im Verlauf als hauptsächlich in der Höhe der Emissionen, besonders zum morgendlichen Berufsverkehr.



**Abbildung 3.12:** Tagesverlauf der berechneten  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Verkehrs für das Basisszenario am Wochenende (aufsummiert für das gesamte ZAIK-Netz). An diesen Wochentagen unterscheiden sich die berechneten Emissionen sowohl in der Höhe als auch wesentlich ausgeprägter im Tagesgang. Auffällig sind die hohen Werte in der Nacht von Freitag auf Samstag im Vergleich zu den übrigen Wochentagen.

Insbesondere der Montag zeigt einen ausgeprägten Tagesgang mit zwei Maxima zu den Zeiten des Berufsverkehrs. Der Samstag und Sonntag sind eher durch Einkaufs- bzw. Freizeitfahrten geprägt, wodurch die Emissionsverteilung sich breiter auffächert. Werktage gelten allgemein als die verkehrsstärksten Wochentage, und dementsprechend finden sich auch unter der Woche die höchsten Tagessummen aller Verkehrsemissionen (vgl. *Abbildung 3.13*).



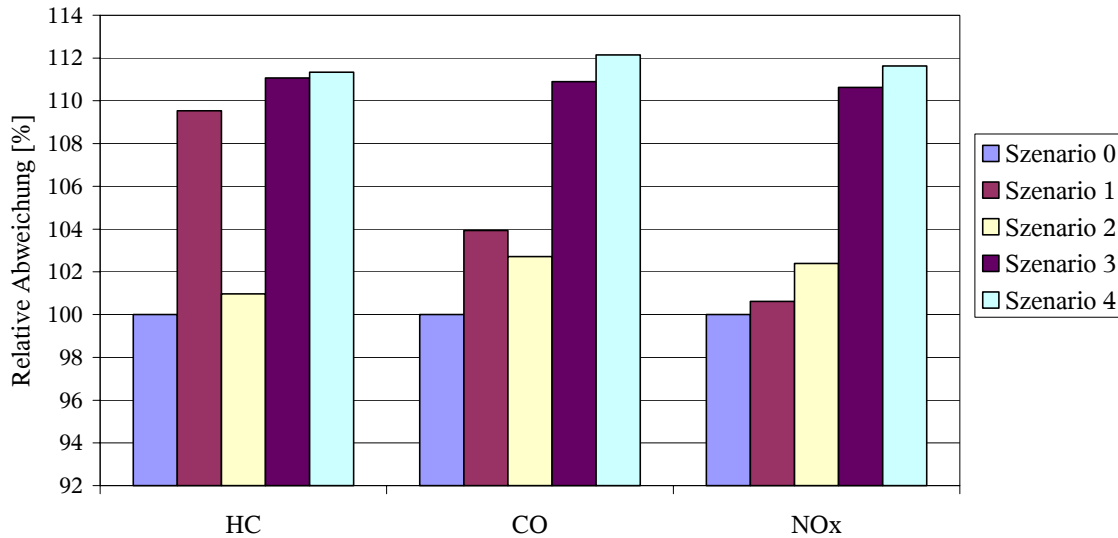
**Abbildung 3.13:** Tagessummen der Verkehrsemissionen im Stadtgebiet von Köln für die einzelnen Wochentage nach Berechnungen des ZAIK-Verkehrsmodells für das Basisszenario. Die Skala der Ordinate ist aus Darstellungsgründen einheitlich gewählt, obwohl die Größenordnung der jeweiligen Emissionssummen differiert (siehe Legende, oben).

Durch die enge Verknüpfung innerhalb der CARLOS-Modellkette steht somit eine szenarienfähige Simulationsumgebung zur Berechnung verkehrsbedingter Emissionen zur Verfügung, die Umwelteinwirkungen des Verkehrs quantifizieren kann, und die eine Bewertung der Auswirkungen von Minderungsmaßnahmen über die Berechnung von Immissionsbelastungen ermöglicht. Im folgenden Abschnitt werden die im Rahmen dieser Arbeit definierten Verkehrsszenarien vorgestellt, deren Auswirkung auf die Immissionsituation anhand von Chemie-Transportrechnungen untersucht werden soll.

### Verkehrsszenarien zu Planungsvorhaben

Ausgehend vom Basisszenario wurden verschiedene Maßnahmen und Entwicklungen der Verkehrssituation betrachtet. Diese stützen sich zum Teil auf aktuell in Planung befindliche Vorhaben, wie z.B. den Ausbau des Kölner Autobahnringes. Als Vergleichsszenario (Szenario 0) wurde die Verkehrsumlegung eines Wochentages (Montag) verwendet. In

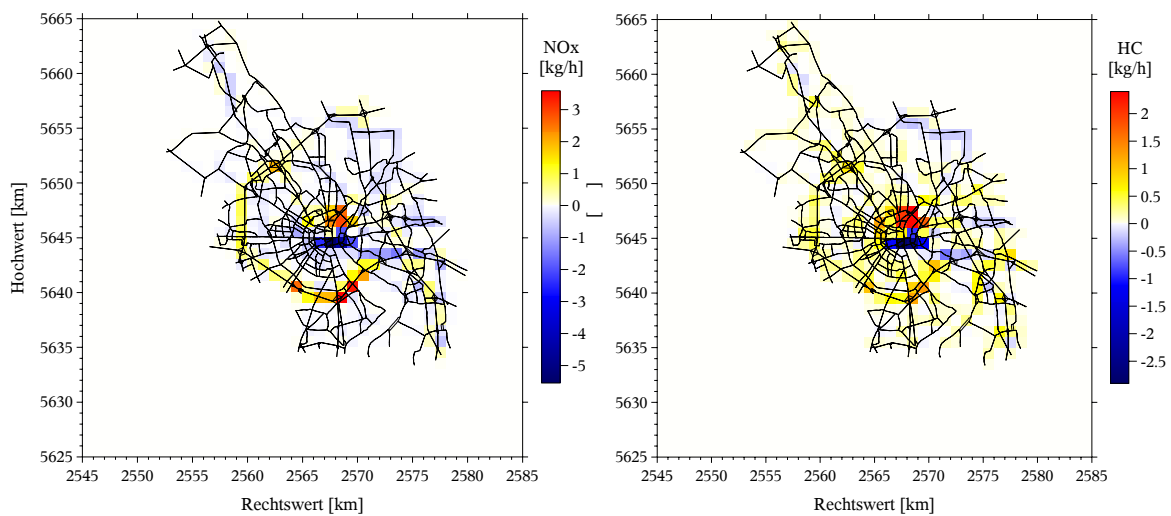
Abbildung 3.14 sind die berechneten Gesamtemissionen in Bezug auf Szenario 0 dargestellt.



**Abbildung 3.14:** Auswirkung verschiedener Steuerungsmaßnahmen des Verkehrs auf die Gesamtemission im Modellgebiet. Als Vergleichsszenario wurde die Umlegung des Werktages Montag verwendet (Basisszenario oder auch Szenario 0). Die Definition der übrigen Szenarien findet sich im Text.

In den Szenarien 1 und 2 wurden Möglichkeiten untersucht, wie sich lokale Verbesserungen der Emissionsbelastung durch Verkehrslenkungsmaßnahmen erzielen lassen. Hierzu wurden die beiden stark befahrenen Rheinbrücken der Kölner Innenstadt (Deutzer- und Severinsbrücke) für den Verkehr gesperrt. In Szenario 1 wurde zudem eine Temporeduktion für alle Nicht-Autobahnen um 20 km/h vorgenommen. In beiden Fällen steigt die Gesamtmenge emittierter Schadstoffe an, wenn auch teilweise nur sehr gering. Da die Start-Ziel-Matrizen in beiden Szenarien unverändert bleiben, sind die Fahrer auf Grund der fehlenden Rheinbrücken gezwungen, längere Fahrtstrecken in Kauf zu nehmen. Die Ergebnisse zeigen zudem, dass durch gegenläufige Effekte auf Seiten der Emission eine Definition von Reduktionsszenarien nur in Bezug auf bestimmte Schadstoffe möglich ist. Motorseitige Maßnahmen zur Reduktion der Stickoxide führen zu einem Anstieg von Kohlenwasserstoffen sowie Kohlenmonoxid und umgekehrt (siehe z.B. MOUSSIOPOULOS *et al.* 1989). Ein strikteres großflächiges Tempolimit (Szenario 1) führt nur zu einem geringen Anstieg der Emission von NO<sub>x</sub> während sich der Ausstoß von CO und HC (Gesamtkohlenwasserstoffe) deutlich vergrößert. Im Vergleich dazu verhält sich der Anstieg in Szenario 2 entgegengesetzt. In der nachfolgenden Abbildung sind die Änderungen der mittleren Verkehrsemissionen für das Szenario 1 dargestellt.

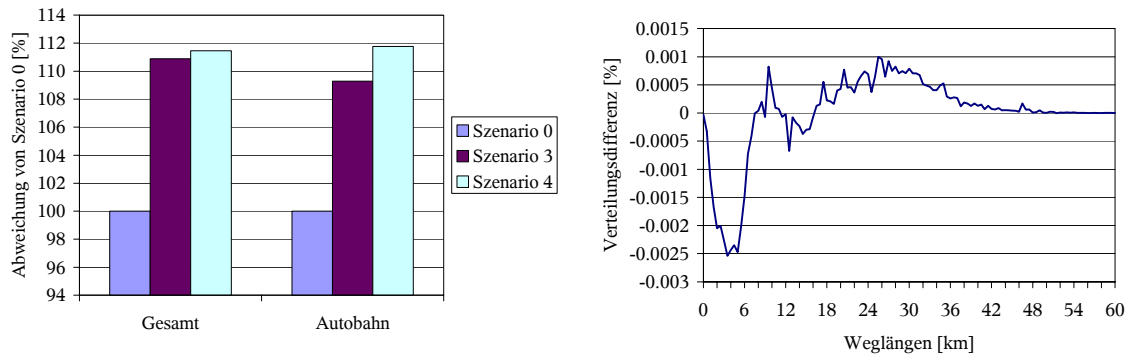




**Abbildung 3.15:** Abweichung der mittleren stündlichen Emissionen ( $\text{kg/h/km}^2$ ) im Szenario 1 vom Basisszenario; links für die Stickoxide ( $\text{NO}_x$ ) und rechts für die Kohlenwasserstoffe (HC).

Durch die Brückensperrung verlagert sich der Verkehr auf den westlichen Autobahnring oder die Fahrer versuchen, in der Innenstadt nördlich auszuweichen. Die Ergebnisse in *Abbildung 3.15* zeigen, dass eine reine Verlagerung des Verkehrs durch Infrastrukturmaßnahmen ohne eine Mobilitätsreduktion lediglich zu lokalen Verbesserungen der Emissionssituation genutzt werden kann, die andernorts zu höheren Belastungen führen. Zudem ist durch die stark unterschiedliche Abhängigkeit der Emission einzelner Schadstoffe von den gefahrenen Geschwindigkeiten eine globale Verbesserung im Sinne einer Reduktion aller Schadstoffe nicht möglich.

In den Szenarien 3 und 4 wurde der Effekt eines Ausbaus des Kölner Autobahnringes untersucht. Zunächst wurde in Szenario 3 eine Steigerung des Verkehrsaufkommens um 15% angenommen. Im Vergleich zu Szenario 0 findet sich eine deutliche Erhöhung der Gesamtemission. In Szenario 4 wurde für dieselbe Verkehrsnachfrage der Autobahnring komplett dreispurig „ausgebaut“. Da sich die Flussbedingungen auf dem Autobahnring dadurch verbessern, sollte auf Grund reduzierter Stauzeiten mit einer Verringerung der Emissionen zu rechnen sein, doch das Gegenteil ist der Fall. Betrachtet man die Veränderung in der Weglängenverteilung (*siehe Abbildung 3.16*) lässt sich dieser Effekt erklären. Auf Grund der besseren Verkehrsbedingungen auf der Autobahn wird diese verstärkt von den Fahrern benutzt. Sie reduzieren ihre persönliche Reisezeit und nehmen dabei längere Fahrtstrecken in Kauf. Dieses Phänomen des „induzierten Verkehrs“ ist ein grundsätzliches Problem bei dem Versuch, einerseits die Flussbedingungen auf Autobahnen zu verbessern um Staus zu vermeiden, und dem Bestreben andererseits, die Belastung der Bürger durch Verkehrsemissionen zu reduzieren.



**Abbildung 3.16:** Links: Relativer Vergleich der CO<sub>2</sub>-Emissionen. Man erkennt, dass durch den Ausbau des Autobahnringes Verkehr „angezogen“ wird. Rechts: Differenz der Weglängenverteilung zwischen Szenario 3 und 4. Der Ausbau des Autobahnringes führt zu einer Verschiebung in Richtung größerer Weglängen.

### Szenarien zur Verkehrszusammensetzung am Wochenende

Das Basisszenario geht für die Emissionsberechnung von einer festen mittleren Flottenzusammensetzung im Jahr 1997 für alle betrachteten Wochentage aus. An den Wochenenden ist jedoch der LKW-Anteil der realen Verkehrsflotte deutlich verringert. Dies ist u.a. auf reduzierten Lieferverkehr an Samstagen wie auch auf das in Deutschland geltende Sonntagsfahrverbot für schwere LKW zurückzuführen. Untersuchungen in anderen deutschen Städten weisen darauf hin, dass gerade an Wochenenden die Abweichungen zwischen gemessenen und simulierten Verkehrsemissionen besonders hoch sind. SLEMR *et al.* (2002) zeigten z.B. in einer Studie mit Hilfe einer Messkampagne in der Stadt Augsburg, dass besonders für den betrachteten Werktag Samstag die NO<sub>x</sub>-Emissionen des Straßenverkehrs durch das verwendete Modell überschätzt, die CO-Emissionen jedoch unterschätzt wurden. Auch das beobachtete Verhältnis NMVOC/NO<sub>x</sub> wich am Wochenende deutlich in Richtung höherer Werte von den übrigen Wochentagen ab. Der Grund hierfür liegt in der unzureichenden Berücksichtigung der Variation des LKW-Anteils an der Fahrzeugflotte. Die Beobachtung erhöhter Verhältnisse von NMVOC/NO<sub>x</sub> bei sinkendem LKW-Anteil des Verkehrs ist vielfach nachgewiesen worden (siehe z.B. KURTENBACH *et al.* 2002). Dieses Phänomen beruht auf dem bekannten Sachverhalt, dass dieselbetriebene Fahrzeuge und insbesondere schwere Kraftwagen (> 3,5 t Gewicht) mehr NO<sub>x</sub> emittieren als leichte Nutzfahrzeuge (< 3,5 t) und insbesondere benzinbetriebene PKW. Im Gegensatz dazu emittieren leichte Kraftfahrzeuge mehr flüchtige organische Substanzen (NMVOC). *Tabelle 3.5* verschafft einen Überblick über die Anteile der verschiedenen Fahrzeugarten an den Emissionen des Straßenverkehrs. Es ist deutlich zu erkennen, dass der Ausstoß an NO<sub>x</sub> von schweren Nutzfahrzeugen fast genauso hoch ist wie der durch PKW verursachte, obwohl

der Kraftstoffverbrauch nur ca. ein Drittel dessen beträgt. Im Gegensatz dazu werden CO und NMVOC zum größten Teil durch PKW emittiert.

	Kraftstoffverbrauch t/a	Anorganische Gase				NMVOC	Stäube	
		SO <sub>x</sub> als SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub> als NO <sub>2</sub>	CO	NH <sub>3</sub>	NMVOC	Gesamtstaub	Feinstaub
		t/a	t/a	t/a	t/a	t/a	t/a	t/a
<b>Fahrzeugarten</b>								
Pkw	7 222 163	3 476	97 011	800 990	7 075	68 263	2 010	2 010
Leichte Nfz (<3,5t)	461 673	417	5 667	22 728	32	1 993	831	831
Krad	84 039	34	563	55 531	20	6 918	<1	<1
Schwere Nfz (>3,5t)	2 611 107	2 611	83 306	24 787	29	11 052	4 134	4 134
Verdunstungsemissionen		-	-	-	-	28 834	-	-
<b>Summe</b>	<b>10 378 982</b>	<b>6 538</b>	<b>186 547</b>	<b>904 036</b>	<b>7 156</b>	<b>117 060</b>	<b>6 975</b>	<b>6 975</b>
	Schwermetalle	Krebserzeugende Stoffe				Klimarelevante Emissionen		
	Pb	Benzol	BaP	Dioxine/Furane als TE	Dieseldieselruß	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	N <sub>2</sub> O
	t/a	t/a	kg/a	g/a	t/a	kt/a	t/a	t/a
<b>Fahrzeugarten</b>								
Pkw	12	4 072	235	0.2	1 198	21 806	5 042	4 263
Leichte Nfz (<3,5t)	<1	85	30	<0.1	498	1 431	93	85
Krad	<1	388	23	<0.1	-	260	449	22
Schwere Nfz (>3,5t)	-	215	358	<0.1	1 653	8 139	272	286
Verdunstungsemissionen	-	-	-	-	-	-	-	-
<b>Summe</b>	<b>13</b>	<b>4 760</b>	<b>646</b>	<b>0.2</b>	<b>3 349</b>	<b>31 636</b>	<b>5 856</b>	<b>4 656</b>

**Tabelle 3.5:** Emissionen des Straßenverkehrs in NRW 1997 nach Fahrzeugarten (Quelle: Emissionskataster Luft). Die Staubemissionen des Verkehrs liegen gänzlich im Feinstaubbereich; ca. 80% der Stäube sind kleiner als 2,5 µm.

Um die Auswirkung eines variierenden LKW-Anteils der Fahrzeugflotte auf die Zusammensetzung der Verkehrsemissionen und letztlich auch auf die Immissionssituation zu untersuchen, wurden vier weitere Szenarien definiert. Ausgehend vom HBEFA wurden Emissionsfaktoren einer Verkehrsflotte für das Bezugsjahr 1997 mit einem variablen LKW-Anteil von 5-20% bestimmt. 1995 lag der durchschnittliche Güterverkehrsanteil bezogen auf die Fahrzeugzahl auf den Autobahnen in NRW bei 15,5% (BAUM & GEIBLER 2001). Auf dem Kölner Autobahnring lag der Anteil im Schnitt nur bei 13,5%, was auf die starke Nutzung durch den täglichen Pendlerverkehr zurückzuführen ist. Am stärksten durch Güterverkehr belastet ist der Bereich zwischen dem Autobahnkreuz Köln-West und Köln-Nord. Als Basisfall wurde daher ein LKW-Anteil von 15% für das Stadtgebiet angenommen und die Emissionsfaktoren für das ZAIK-Modell entsprechend angepasst. Für jedes der 4 Szenarien wurden anschließend mit Hilfe des Emissionsmoduls die Abgase der

neu zusammengesetzten Fahrzeugflotte für das Stadtgebiet von Köln bestimmt. Die Gesamtzahl der Fahrzeuge und die Verkehrsumlegung bleiben von dieser Veränderung unberührt, da die Verkehrsströme für jeden Wochentag durch die Start-Ziel-Matrizen vorgegeben sind. In *Tabelle 3.6* und *Tabelle 3.7* sind alle vorhandenen Datensätze der Verkehrsemissionen zur Übersicht und zum Vergleich dargestellt. Bei der Auswertung der Emissionsdaten wurde für jedes Rasterquadrat im Modellgebiet separat ein Tagesmittelwert für den jeweiligen Schadstoff gebildet. Das Maximum der so bestimmten Mittelwerte ist in den Tabellen dargestellt. Diese Betrachtungsweise ist zum Vergleich des lokalen Belastungspotentials der Verkehrsemissionen besser geeignet als ein Mittel über das gesamte Modellgebiet (*siehe auch Abbildung 3.17*).

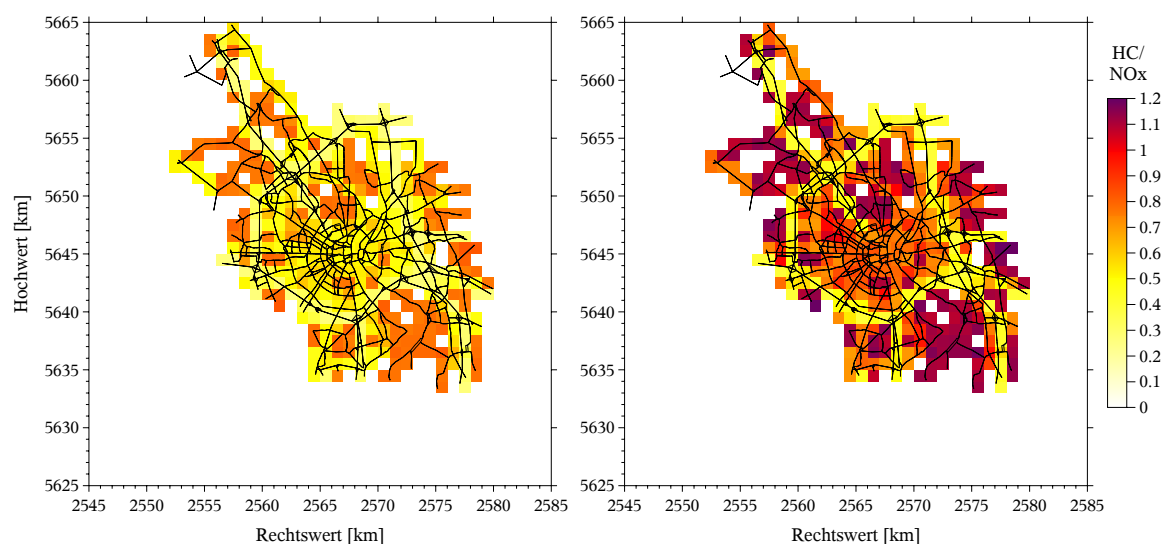
ZAİK	NO <sub>x</sub>	CO	CO <sub>2</sub>	HC
<b>Basisszenario (alle Wochentage)</b>				
Montag (Szenario 0)	19.74	90.38	1593.97	7.62
Dienstag-Donnerstag	17.02	81.74	1489.93	8.41
Freitag	17.88	80.68	1436.17	8.09
Samstag	15.86	72.08	1244.39	7.01
Sonntag	17.15	79.66	1327.72	6.16
<b>Szenarien für den Montag (Brückensperrung und Autobahnausbau)</b>				
Szenario1	22.38	106.57	1718.19	7.97
Szenario2	22.47	107.42	1696.92	7.78
Szenario3	21.70	101.13	1800.96	9.47
Szenario4	22.17	104.69	1825.18	9.22
<b>LKW-Szenarien (Variation des LKW-Anteils der Fahrzeugflotte)</b>				
<b>Montag</b>				
LKW05	11.79	100.23	1143.80	8.84
LKW10	16.42	99.26	1354.96	10.17
LKW15	21.06	98.28	1566.12	11.50
LKW20	25.70	97.31	1777.29	12.84
<b>Samstag</b>				
LKW05	9.52	84.90	956.38	7.49
LKW10	13.25	85.07	1122.61	8.63
LKW15	16.99	85.25	1288.84	9.76
LKW20	20.73	85.43	1455.07	10.90
<b>Sonntag</b>				
LKW05	9.92	82.45	946.87	5.13
LKW10	13.81	80.84	1125.18	5.94
LKW15	17.71	79.44	1303.49	6.74
LKW20	21.60	78.55	1481.80	7.54

**Tabelle 3.6:** Gittermaximum des Tagesmittels der ZAIK-Verkehrsemissionen innerhalb des Modellgebietes in kg/h/km<sup>2</sup> für die verschiedenen Szenarien und Schadstoffe an den unterschiedlichen Wochentagen. Bei den LKW-Szenarien bezeichnen die Abkürzungen LKW05 bis LKW20 jeweils den Anteil der LKW an der Verkehrsflotte mit 5, 10, 15 bzw. 20%.

LUA	NO <sub>x</sub>	CO	NMHC	NO	NO <sub>2</sub>
Montag-Freitag	23.76	115.1	6.06	23.04	0.71
Samstag	14.39	118.7	4.43	13.96	0.43
Sonntag	10.87	116.3	4.02	10.54	0.33

**Tabelle 3.7:** Gittermaximum des Tagesmittels der LUA-Verkehrsemissionen innerhalb des Modellgebietes in kg/h/km<sup>2</sup> für die verschiedenen Schadstoffe an den unterschiedlichen Wochentagen. NMHC bezeichnet hier die Gesamtkohlenwasserstoffe ohne Methan (CH<sub>4</sub>).

Bei den LKW-Szenarien zeigen die Ergebnisse der ZAIK-Simulationen einen deutlichen Anstieg der NO<sub>x</sub>-Emissionen mit wachsendem LKW-Anteil der Fahrzeugflotte, während im Vergleich dazu die Kohlenwasserstoffe (HC) nur mäßig ansteigen. In *Abbildung 3.17* ist als Beispiel das Verhältnis HC/NO<sub>x</sub> bezogen auf die emittierte Masse pro Stunde und Rasterquadrat am Samstag für die Szenarien LKW05 und LKW20 dargestellt. Der Anstieg dieses Verhältnisses mit sinkendem LKW-Anteil ist sehr deutlich. Bemerkenswert sind ferner die stets niedrigeren Werte entlang der Autobahnen im Vergleich zur Innenstadt und insbesondere den Randgebieten. Dies liegt an der Tatsache, dass PKW mit Ottomotor bei hohen Geschwindigkeiten überproportional mehr NO<sub>x</sub> ausstoßen, während bei Geschwindigkeiten unter 30 km/h die CO- und HC-Emissionen deutlich ansteigen. Im nächsten Kapitel wird untersucht, wie sich die oben beschriebenen verschiedenen Emissionsszenarien im Rahmen von Chemie-Transport-Rechnungen auf die Immissionswerte im Stadtgebiet auswirken.



**Abbildung 3.17:** Vergleich des Massenverhältnisses der mittleren Emission pro Stunde und km<sup>2</sup> von den Gesamtkohlenwasserstoffen HC zu NO<sub>x</sub> bei variierendem LKW-Anteil der Verkehrsflotte für den Samstag. Links bei einem LKW-Anteil von 20% (Maximum 0.83) und rechts von 5% (Maximum 1.19); für beide Abbildungen gilt zur besseren Vergleichbarkeit wieder dieselbe Farbskala.

## 4 Episodensimulationen für den Großraum Köln

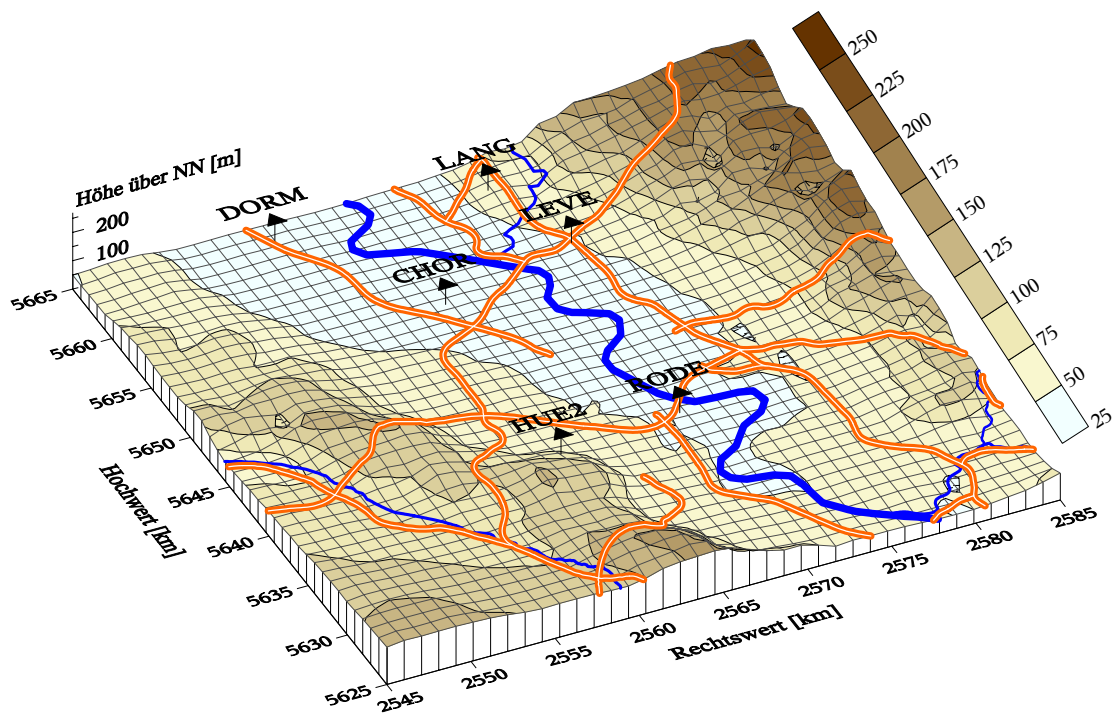
In diesem Kapitel werden einige Anwendungen des CARLOS-Modellsystems zur Simulation der meteorologischen und luftchemischen Verhältnisse während einer Sommersmogepisode im August des Jahres 1997 vorgestellt. Dabei liegt der Schwerpunkt auf den Chemie-Transport-Simulationen unter besonderer Beachtung der Emissionen des Straßenverkehrs. Es soll mit Hilfe von Episodensimulationen untersucht werden, welchen Einfluss der Verkehr auf die Luftqualität im Modellgebiet hat und inwiefern sich Veränderungen z.B. lokaler Emissionsstrukturen auf die photochemischen Prozesse auswirken.

Zunächst muss jedoch als Grundvoraussetzung sicher gestellt werden, dass die meteorologischen Verhältnisse im Untersuchungsgebiet durch das Modell realitätsnah wiedergegeben werden. In den ersten Unterkapiteln werden daher das Modellgebiet, die vorherrschende Wetterlage während der betrachteten Episode sowie die Nestungskette beschrieben. Es folgen Sensitivitätsstudien bezüglich des Einflusses des neu implementierten Bodenmodells auf die Strömungssimulation mit dem Modell FOOT3DK. Des Weiteren wird auch die Auswirkung der Feuchte auf die Chemie-Transportrechnungen betrachtet. Auf diesen Untersuchungen aufbauend erfolgen die Simulationen mit dem Chemie-Transport-Modell CTM2F für das sogenannte Basisszenario, welches die Vergleichsdaten für die sich anschließenden Szenariensimulationen liefert. Im letzten Unterkapitel werden die Ergebnisse der Simulationen mit den diversen Szenarien des Verkehrs präsentiert.

### 4.1 Das Modellgebiet Kölner Bucht

Für die verschiedenen Simulationen mit dem lokalen Zweig des CARLOS-Systems wird der Großraum um die Stadt Köln betrachtet. Dieser Ballungsraum ist sowohl wegen seiner komplexen Topographie für die Strömungssimulation als auch für die Berechnung von luftchemischen Prozessen aufgrund der Agglomeration von Emissionsquellen interessant. Zur Berücksichtigung der Verkehrsemissionen ist das Modellgebiet dabei so gewählt, dass der Kölner Autobahnring und das Straßennetz des ZAIK-Verkehrsmodells (*siehe Abschnitt 3.3*) vollständig eingeschlossen werden. Im Süden reicht das Modellgebiet weiter über das ZAIK-Netz hinaus, da dort in unmittelbarer Nähe zum Rhein wichtige Emittenten u.a. der Petrochemie angesiedelt sind. Deren Emissionen können je nach Strömungssituation maßgeblichen Einfluss auf luftchemische Prozesse innerhalb des Untersuchungsraums haben (*siehe z.B. SENTUC 2000*). *Abbildung 4.1* zeigt eine Darstellung des Modellgebietes mit

ingezeichnete Orographie, dem Verlauf der Flüsse und der Autobahnen sowie den im Modellgebiet liegenden TEMES-Stationen des Landesumweltamtes NRW. An diesen Standorten werden kontinuierlich die wichtigsten Luftschadstoffe und teilweise auch meteorologische Größen gemessen, so dass zur Evaluation der Modellergebnisse Messwerte zur Verfügung stehen. Zentral im Modellgebiet liegt die Stadt Köln, im Osten erhebt sich das Bergische Land und im Westen die Ville. Am südwestlichen Rand sind die nördlichen Ausläufer der Eifel zu erkennen. Die Windverhältnisse in diesem Untersuchungsgebiet sind stark geprägt durch die Leitwirkung der Orographie und die Kanalisierung der Strömung im Rheintal. So zeigen viele Stationen im Rheinland eine starke Bevorzugung von nordwestlichen und südöstlichen Windrichtungen. Abhängig von der Wetterlage treten auch häufig thermisch induzierte lokale Windsysteme auf.



**Abbildung 4.1:** Das Modellgebiet Großraum Köln; die horizontale Auflösung beträgt  $1\text{ km} \times 1\text{ km}$ ; eingezeichnet sind die Standorte der TEMES-Stationen des Landesumweltamtes NRW, die Lage der Autobahnen sowie der Verlauf einiger Flüsse. Die Abkürzung TEMES steht für das Telemetrische-Echtzeit-Mehrkomponenten-Erfassungs-System, welches das LUA NRW in Essen seit den 70er-Jahren zur Feststellung der Luftqualität betreibt. Im Zuge einer Neukonzeption des gesamten Messsystems wurde 1997 das TEMES-Netz in das übergeordnete System LUQS (Luftqualitätsüberwachungssystem) integriert und im Laufe des Jahres 1999 dementsprechend umbenannt. Da sich die hier verwendeten Termine alle im Zeitraum vor dieser Umstellung bewegen, ist im Weiteren nur von TEMES die Rede.

## 4.2 Großskalige Strömungssituation im Episodenzeitraum

Zur Auffindung von Ozonepisoden und zur späteren Validierung der Modellergebnisse wurden im Rahmen des SFB 419 die Messdaten von 77 TEMES-Stationen in Nordrhein-Westfalen aus dem Jahr 1997 ausgewertet. Das Ergebnis führte zur Festlegung eines Untersuchungszeitraums vom 7. bis zum 14. August 1997, der gekennzeichnet war durch hohe Ozonkonzentrationen in Westdeutschland und auch in Nordrhein-Westfalen. Da Ozon als Leitsubstanz für photochemischen Smog gilt, ist auch von einer verstärkten Bildung anderer sekundärer Schadstoffe während dieser Zeit auszugehen.

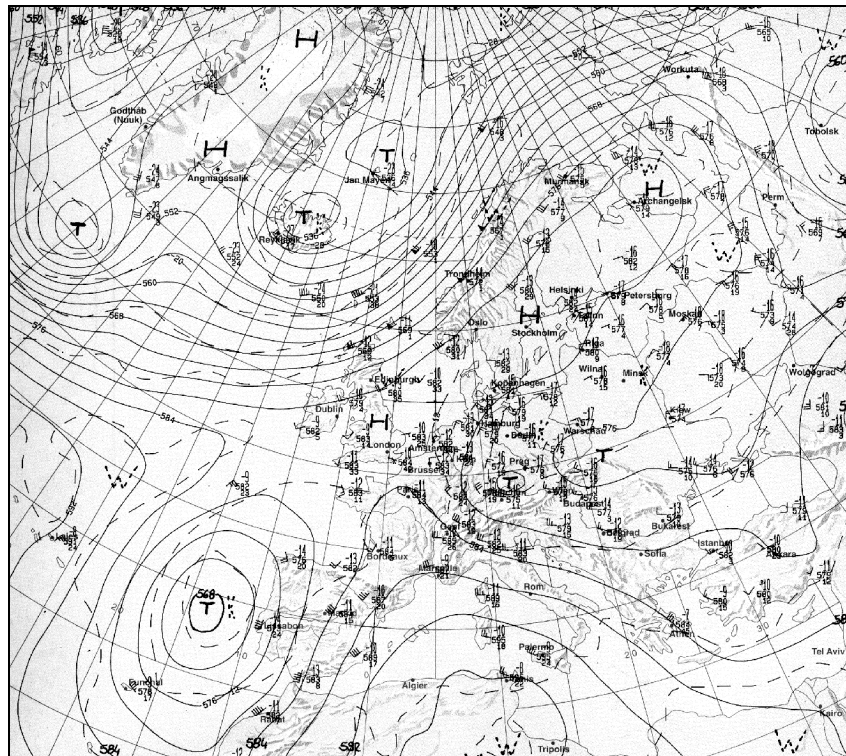
### Großwetterlage

Vom 3.8.1997 bis zum 21.8.1997 entsprach die vorherrschende Großwetterlage (nach GERSTENGARBE *et. al.* 1999) dem Typ „Hoch Fennoskandien“, wobei Mitteleuropa überwiegend unter antizyklonalem Einfluss stand. Mit Erlahmen der Westdrift begründete diese Großwetterlage mit einer hohen Druckanomalie über Nordskandinavien einen der wärmsten Augustmonate des Jahrhunderts (DIE GROSSWETTERLAGEN EUROPAS, August 1997). Die Wetterlage im Raum Köln während des oben genannten Untersuchungszeitraums war dementsprechend geprägt durch ein umfangreiches blockierendes Hochdruckgebiet über der Nordsee und Nordeuropa. Dieses Höhenhoch hatte sich Anfang des Monats über Skandinavien gebildet, zog in der ersten Augustwoche nach Osten bis Nordosten und verstärkte sich dabei etwas. Zum 8. und 9. August erstreckte sich eine Hochdruckzone vom Nordrussischen Tiefland bis nach Mitteleuropa (*siehe Abbildung 4.2*). Im weiteren Verlauf bildete sich dieses Strömungsmuster bis zum 12.8. zu einer Omegalage mit Zentrum über Deutschland um (*siehe Abbildung 4.3*). Der vom Atlantik herannahende Trog drängte das Höhenhoch etwas nach Osten ab, so dass Westdeutschland in den nachfolgenden Tagen in den Einfluss eines schwachen Tiefdruckgebietes gelangte. Zum 15.8. sorgte schließlich ein von der niederländischen Küste über den Norden Deutschlands hinwegziehender schwacher Kaltlufttropfen für Zufuhr sehr feuchter Luft, in der es zu Schauern und Gewittern kam.

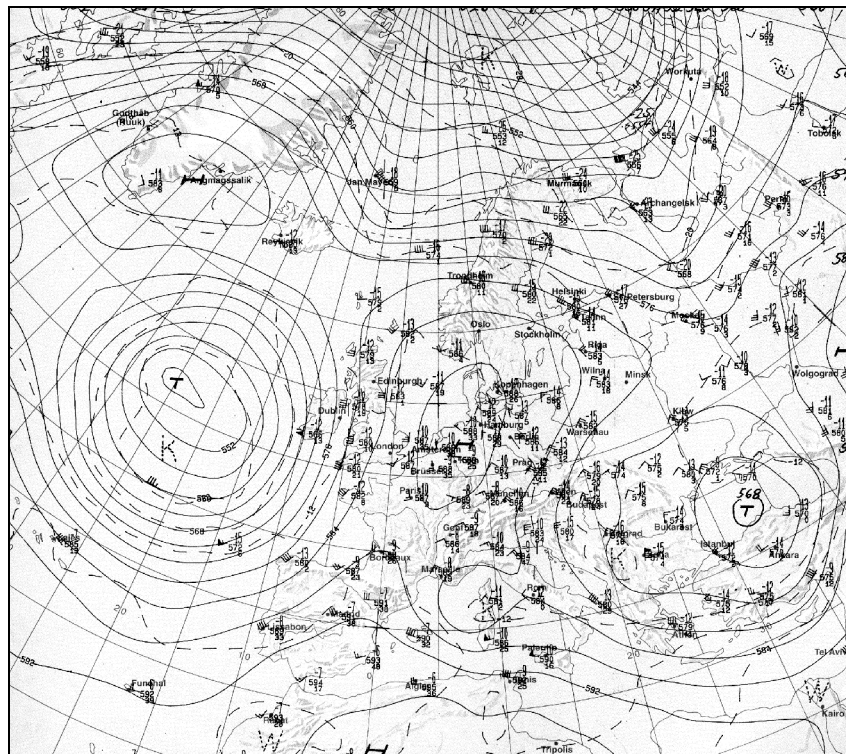
### Wettersituation und Verlauf der Ozonkonzentration im Untersuchungsgebiet

Im Großraum Köln herrschte zu Beginn der Episode am Boden schwacher Wind aus Ost, im späteren Verlauf in südöstlich übergehend. Am 11.8. lebte der Wind durch zunehmenden Luftdruckgegensatz mit Herannahen des Troges aus Westen über Deutschland merklich auf (*siehe Abbildung 4.4*). Innerhalb der aus Südosten herangeführten warmen Luft-





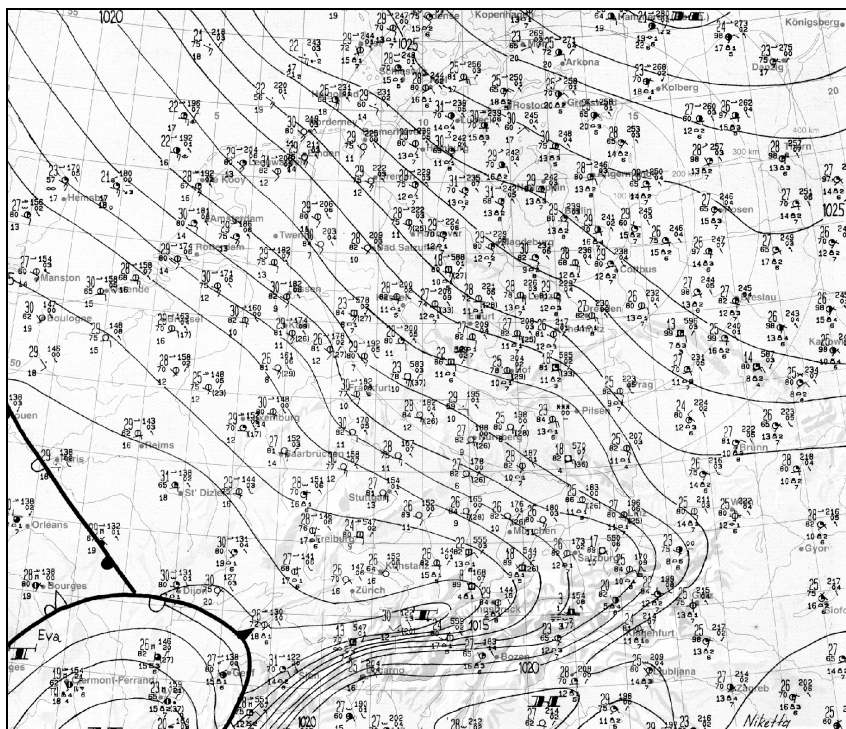
**Abbildung 4.2:** Höhenwetterkarte für 500 hPa am 9. August 1997 um 2 Uhr (MESZ), Quelle: BERLINER WETTERKARTE.



**Abbildung 4.3:** Höhenwetterkarte für 500 hPa am 12. August 1997 um 2 Uhr (MESZ), Quelle: BERLINER WETTERKARTE.

masse kontinentalen Ursprungs wurden dabei an der DWD-Station Köln/Bonn Maximumtemperaturen von 28°C am 7.8. und bis zu 32.5°C am 13.8.1997 erreicht. Vom 13. zum 14. August sorgten kleinere Störungen (siehe *Abbildung 4.5*), die von Westen hereinzogen, für die Zufuhr von Luftmassen aus Westen und unterbrachen somit die Ozonepisode vorübergehend (siehe auch *Abbildung 4.6* und *Abbildung 4.7*), bevor sich nach Durchzug des oben erwähnten Höhentiefs erneut Hochdruckeinfluss durchsetzen konnte.

Der während dieser Woche beobachtete Verlauf der Ozonkonzentration mit einem ausgeprägten Tagesgang ist typisch für urbane Ballungsgebiete während einer solchen sommerlichen Schönwetterepisode. In den ersten drei Tagen steigt die maximale Konzentration durch Akkumulation der Vorläufersubstanzen an, bevor sie am Sonntag (10.08.1997) bei etwas auflebendem Wind und reduzierten Emissionen wieder absinkt (vgl. auch *Abschnitt 4.5.4*). Im Verlauf der folgenden Werktage zeigt sich wieder eine ansteigende Tendenz, bevor die eben bereits erwähnten Störungen den weiteren Aufbau hoher Ozonkonzentrationen behindern. An der Station Chorweiler (CHOR), die während dieser Episode im Leebereich der Stadt Köln liegt, wird dabei sowohl am 09.08. als auch am 13.08.1997 der Schwellenwert zur Information der Bevölkerung von 180 µg/m<sup>3</sup> Ozon überschritten. Ab diesem Wert wird Personen, die erfahrungsgemäß besonders empfindlich auf Ozon reagieren, vorsorglich empfohlen Anstrengungen im Freien zu vermeiden.



**Abbildung 4.4:** Bodenwetterkarte für Mittleuropa am 11. August 1997 um 14 Uhr MESZ, Quelle: BERLINER WETTERKARTE.

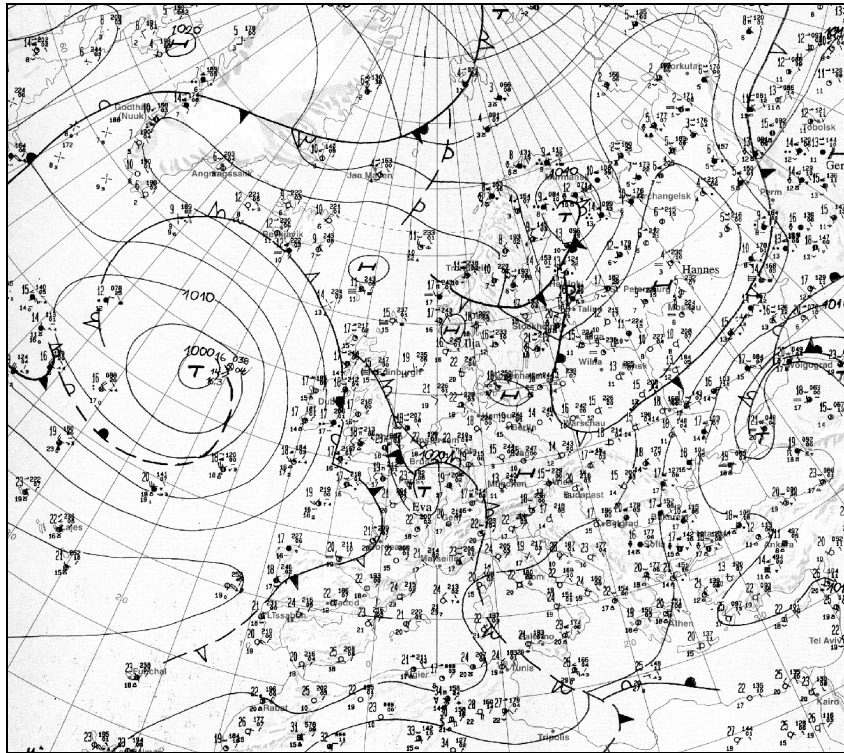


Abbildung 4.5: Bodenwetterkarte am 13. August 1997 um 2 Uhr MESZ, Quelle: BERLINER WETTERKARTE.

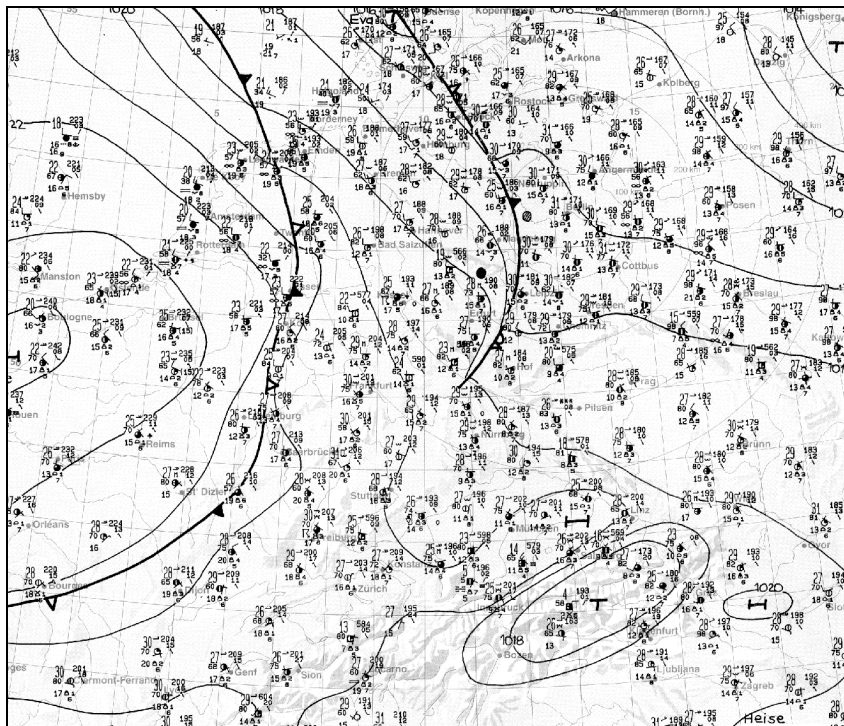
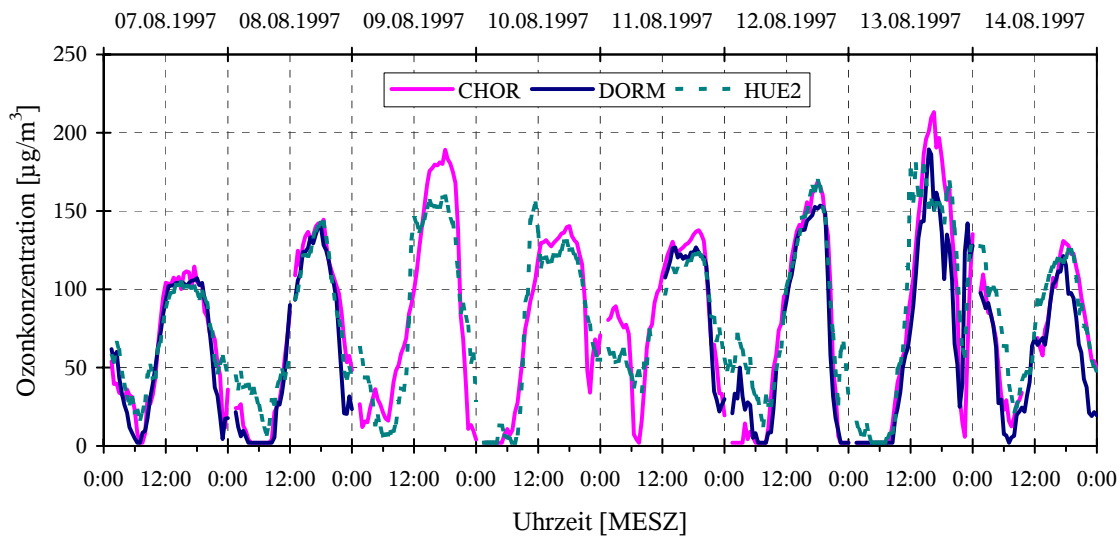


Abbildung 4.6: Bodenwetterkarte für Mitteleuropa am 14. August 1997 um 14 Uhr MESZ, Quelle: BERLINER WETTERKARTE.



**Abbildung 4.7:** Verlauf der gemessenen Ozonkonzentration während des Episodenzeitraums an drei TEMES-Stationen innerhalb des Modellgebietes. Zur Lage der Stationen siehe Abbildung 4.1. An der Station Dormagen (DORM) kam es innerhalb dieses Zeitraums zu einem längeren Messausfall. Das Landesumweltamt gibt die Messwerte zur Ortszeit bei einer Bezugstemperatur von 20°C und 1 atm in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  an, da sich die meisten Grenzwerte auf diese Einheit beziehen (vgl. Anhang A).

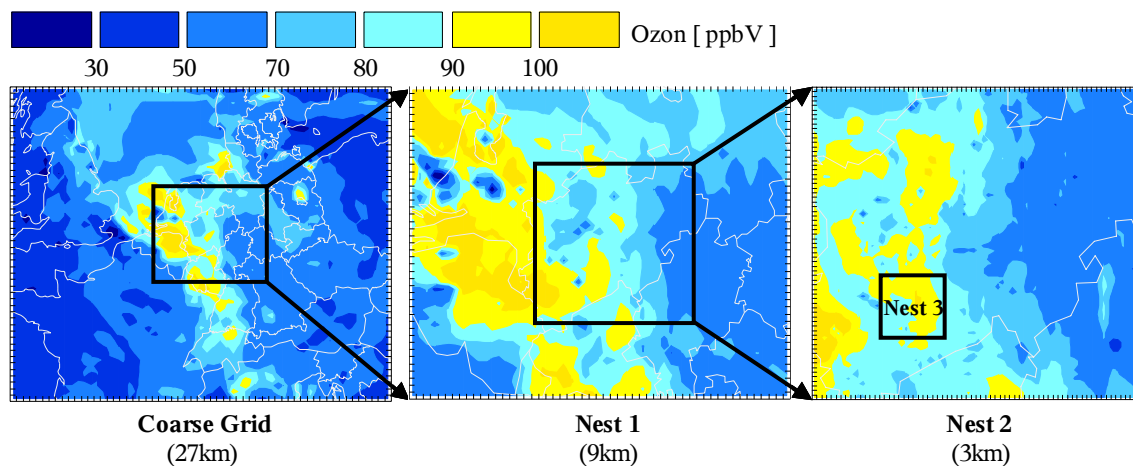
### 4.3 Modellnesting

Die in Kapitel 4.2 beschriebene Wetterlage (blockierendes Hoch mit starker Einstrahlung bei meist wolkenlosem Himmel) ist typisch für Sommersmogepisoden, da durch die vorherrschende Absinkbewegung der vertikale Luftmassenaustausch behindert wird und sich die Schadstoffe in der planetaren Grenzschicht ansammeln. Die meist nur schwache bodennahe Strömung sorgt ebenfalls nicht für einen schnellen Abtransport der emittierten Substanzen, so dass sich in der Nähe starker Emissionsquellen und stromab davon unter Einwirkung des Sonnenlichts Fahnen photochemischen Smogs ausbilden können. Dabei wird die Höhe der gemessenen Immission an einem Ort jedoch nicht allein durch die Emissionen im Nahbereich beeinflusst, sondern auch durch den Schadstofftransport aus weiter entfernten Regionen.

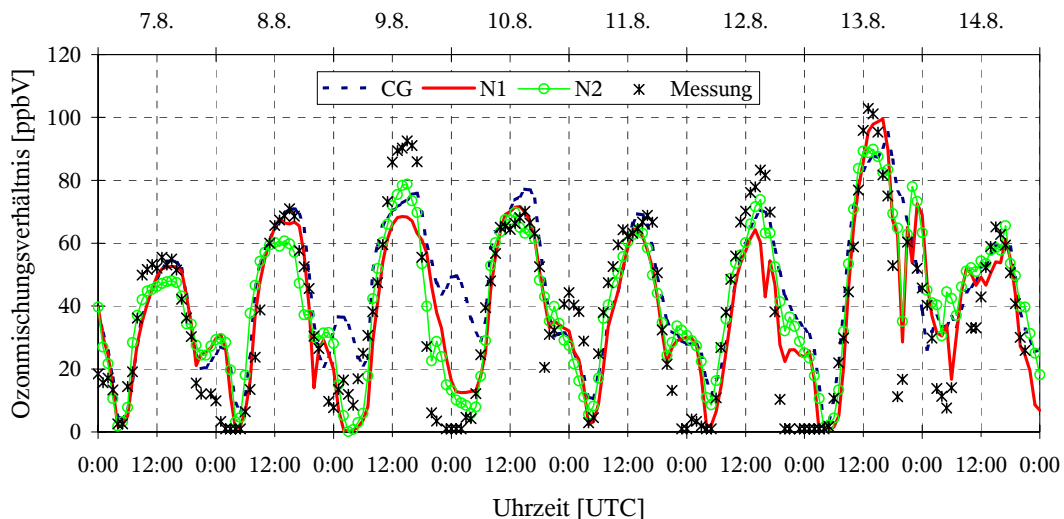
#### Regionale Modellkette (EURAD MM5 – CTM2)

Um den Einfluss der großskaligen Strömungssituation sowie des Ferntransports zu berücksichtigen wird wie bereits erwähnt innerhalb von CARLOS ein passives Nestingverfahren angewandt. Abbildung 4.8 zeigt die Modellgebiete vom sogenannten Muttergitter oder ‚coarse grid‘ bis hin zum oben vorgestellten lokalen Modellgebiet (Nest 3). Am Beispiel

der Ozonkonzentration für den 13.08.1997 um 14 UTC (16 Uhr MESZ) zeigt sich deutlich die wachsende Feinstruktur mit Erhöhung der Modellauflösung. Dieser Tag war der Höhepunkt der oben beschriebenen Ozonepisode. Entsprechend der Strömungssituation finden sich erhöhte Konzentrationswerte westlich bis nordwestlich der großen Städte, besonders in NRW und in den Benelux-Staaten. Dagegen weist z.B. Frankreich infolge der Zufuhr frischer, unbelasteter Luftmassen im Bereich des oben erwähnten Tiefs an diesem Tag vergleichsweise niedrige Ozonwerte auf.



**Abbildung 4.8:** Darstellung der verschiedenen Modellgebiete der verwendeten CARLOS-Nestingkette (Mittleuropa–Westdeutschland–NRW–Köln). Das Beispiel zeigt das Ozonmischungsverhältnis am 13.08.1997 um 14 UTC für die unterste Modellschicht (Dicke  $\sim 40$  m). Man beachte, dass hier wie auch in den folgenden Abbildungen das Ozon-Mischungsverhältnis in ppbV und die Zeit in UTC angegeben ist.



**Abbildung 4.9:** Vergleich zwischen Messwerten und den Simulationen der EURAD-Komponenten von CARLOS für den betrachteten Episodenzeitraum mit dem Muttergitter („coarse grid“, CG), Nest 1 (Westdeutschland) und Nest 2 (NRW) an der TEMES-Station Chorweiler (CHOR) bzw. dem entsprechenden Gitterpunkt und der untersten Modellschicht.

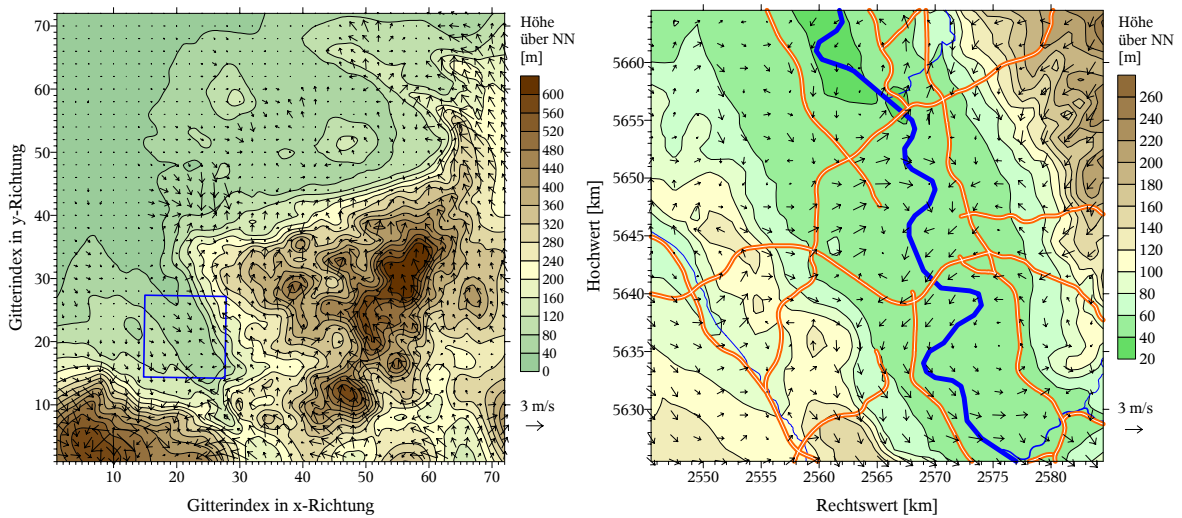


*Abbildung 4.9* präsentiert die Ergebnisse der Chemie-Transport-Simulationen mit dem regionalen Zweig von CARLOS (EURAD-System), die als Eingangsdaten für die lokalen Berechnungen dienen. Es zeigt sich allgemein eine gute Übereinstimmung mit den Messwerten. Der Tagesgang und auch die Entwicklung der Konzentrationshöhe u.a. infolge der meteorologischen Einflüsse werden zufriedenstellend wiedergegeben. Allerdings wird nachts mitunter der Abbau des Ozons vor allem von dem Modelllauf mit grobem Gitter (CG) unterschätzt. Besonders am 9.8.1997 wird die gemessene Maximalkonzentration vom Modellsystem deutlich zu niedrig simuliert. Bei dem Vergleich ist jedoch zu bedenken, dass die Modellergebnisse die Fläche der jeweiligen gesamten Gitterbox (bei einer untersten Schichtdicke von ca. 40 m) repräsentieren, während die Messung (in 3.5 m Höhe) strenggenommen nur repräsentativ für die unmittelbare Umgebung der Station sein kann.

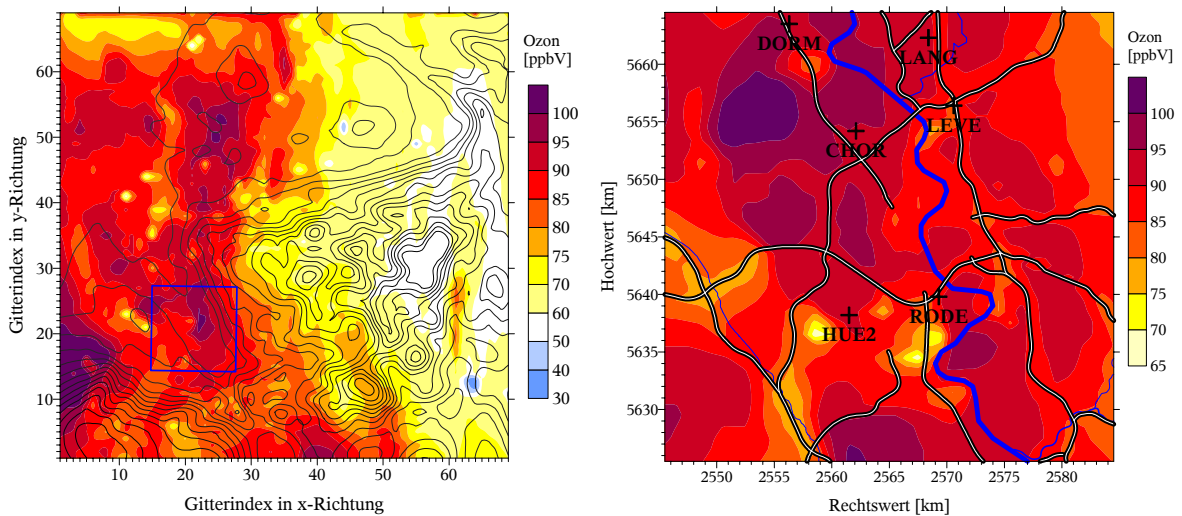
### **Lokale Modellkette (FOOT3DK–CTM2F)**

Zur Auflösung kleinere Skaliger Strukturen und insbesondere zur adäquaten Berücksichtigung der Emissionen des ZAIK-Verkehrsmodells wird die horizontale Auflösung im dritten Nestinggebiet auf 1 km erhöht. So wird z.B. die Struktur der Ville durch den vom MM5 verwendeten Topographiedatensatz nicht ausreichend aufgelöst, wohingegen diese bei dem Modell FOOT3DK deutlich zu erkennen ist (*siehe Abbildung 4.10*). Zu dem hier als Beispiel für das Nesting dargestellten Termin um 14 UTC herrschte nur schwacher Wind; die Höhenokklusion des Tiefs Eva (*siehe Abbildung 4.5*) hatte gerade das Modellgebiet überquert, ohne jedoch wetterwirksam gewesen zu sein.

In *Abbildung 4.11* ist die mit den ZAIK-Emissionen für diesen Tag (Basisszenario) berechnete Ozonkonzentration in der jeweils untersten Modellschicht dargestellt. Entsprechend der oben gezeigten schwachen Windströmung ist bei der kleinskaligen Simulation mit CTM2F deutlich der lokale Titrationseffekt durch die NO-Emissionen entlang der Autobahnen zu erkennen. Besonders auffällig sind auch die niedrigeren Ozonwerte in der Umgebung des Industrieparks Hürth-Knapsack (südwestlich der Station Hürth HUE2) sowie im Bereich der in *Abschnitt 4.1* bereits erwähnten petrochemischen Industrie entlang des Rheinbogens bei Godorf/Wesseling (südlich der Station Rodenkirchen RODE), die als starke Emittenten von NO<sub>x</sub> als Punktquellen ebenfalls in die Chemie-Transport-Rechnungen eingehen. Während die Simulation für das Gebiet von NRW (Nest 2) im Innenstadtbereich von Köln ein Maximum der Ozonkonzentration vermuten lässt, zeigen sich bei erhöhter Auflösung die höchsten Werte außerhalb des Stadtgebietes.



**Abbildung 4.10:** Horizontalwind der untersten Modellschicht am 13.8.1997 um 14 UTC (zur besseren Übersicht ist nur jeder zweite Windpfeil dargestellt); links: MM5-Vorgabe in ca. 20m Höhe (Nest 2); rechts: FOOT3DK-Simulation in ca. 15 m Höhe über Grund (Nest 2). In beiden Abbildungen ist die jeweilige Modellorographie unterlegt und das Quadrat in der linken Abbildung markiert das rechts dargestellte Nestinggebiet.



**Abbildung 4.11:** Ozonkonzentration in ppbV für die unterste Modellschicht am 13.8.1997 um 14 UTC, links: CTM2-Vorgabe in ca. 20 m Höhe, rechts: CTM2F-Simulation für das Stadtgebiet von Köln in ca. 15 m Höhe über Grund (hier zur Verdeutlichung anderer Quellen ohne Schiffsemissionen, vgl. auch Abschnitt 4.4.3).

Die präsentierten Modellergebnisse dienen an dieser Stelle vor allem zur Veranschaulichung des Nestings sowie als Beispiel für die generelle Eignung des Modellsystems zur Simulation des Sommermogs. *Abbildung 4.11* macht deutlich, dass zur Untersuchung des lokalen Einflusses insbesondere von Verkehrsemissionen eine hohe Modellauflösung unbedingt erforderlich ist. Dabei bewegt man sich mit einer Gitterweite von 1 km eher im

unteren Gültigkeitsbereich der Parametrisierungen mesoskaliger Modelle. Die gemachten Annahmen über charakteristische Längen- und Zeitskalen bzgl. turbulenter Strukturen und chemischer Reaktionsgeschwindigkeiten sind nicht ohne Weiteres auf die Mikroskala übertragbar (*siehe auch Kapitel 2.4*). Eine weitere Steigerung der Auflösung erhöht daher nicht unbedingt die Ergebnisqualität. Zudem sind die meisten Emissionsdaten nicht in einer höheren Auflösung verfügbar. Obwohl die Linienquelle Autobahn dadurch bereits in aggregierter Form berücksichtigt wird, ist aus modelltechnischer Sicht die gewählte Auflösung im Nest 3 ein sinnvoller Kompromiss zur Beschreibung der luftchemischen Verhältnisse innerhalb eines gesamten Stadtgebietes. Zur expliziten Simulation der Schadstoffverteilung in Straßenschluchten müsste ein mikroskaliges Modell für ein viertes Nestinggebiet verwendet werden (*siehe z.B. VARDOULAKIS et al. 2003*).

## 4.4 Episodensimulationen zur Definition des Basisszenarios

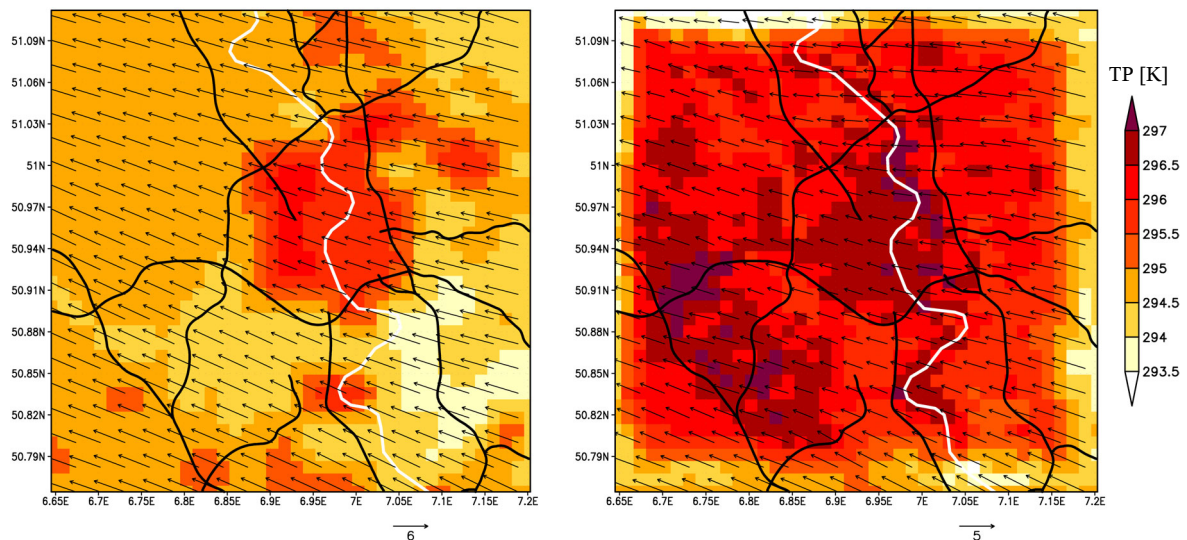
In diesem Unterkapitel werden Ergebnisse der lokalen Simulationen für die oben beschriebene Sommersmogepisode vorgestellt. Zunächst wird der Einfluss des Bodenmodells der neuen FOOT3DK-Version auf die resultierenden Strömungs- und Konzentrationsfelder untersucht. Daraufhin wird ein Basisszenario der meteorologischen Randbedingungen festgelegt, das den Ausgangspunkt für die anschließenden luftchemischen Betrachtungen bildet. Für die Chemie-Transport-Rechnungen in diesem Unterkapitel werden die in *Abschnitt 3.3* beschriebenen Emissionsdaten des Landesumweltamtes NRW sowie das Basisszenario der ZAIK-Verkehrssimulationen verwendet. Die Gesamtperiode wird dabei, wie bereits in *Kapitel 3* erwähnt, für die einzelnen Rechnungen in vier Einzelepisoden zu je 48 bzw. 46 Stunden eingeteilt (Episode 0-3).

### 4.4.1 Sensitivitätsstudien zur Wahl des Anfangsbodenwassergehalts

Wie in *Abschnitt 3.1.2* bereits erwähnt, traten bei einigen lokalen Simulationen von CARLOS mit der früheren FOOT3DK-Version Unstimmigkeiten auf, die sich besonders deutlich in der berechneten Temperaturverteilung bemerkbar machten. Insbesondere am Abend wird bei der alten Modellvariante (Bestimmung der turbulenten Flüsse mit der Bowenverhältnismethode) der Temperaturrückgang durch FOOT3DK und MM5 sehr unterschiedlich prognostiziert. Ein Beispiel hierfür zeigt *Abbildung 4.12*. Während bei MM5 bereits eine Abkühlung außerhalb des Innenstadtbereiches stattfindet, sind die Temperaturen innerhalb des Modellgebietes von FOOT3DK wesentlich höher. Dies zeigt sich deut-



lich an dem „kühlen Rand“ des Simulationsgebietes, der durch die MM5-Nestingvorgabe der Temperatur am stärksten beeinflusst wird. Die Abweichung der potentiellen Temperatur zwischen innerem und äußerem Modellgebiet beträgt in diesem Fall 2–4 K. Das hier gezeigte Simulationsergebnis ist beispielhaft für viele Testrechnungen, die in der ersten Arbeitsphase mit FOOT3DK durchgeführt wurden. In anderen Fällen kommt es durch die starken Temperaturgradienten im Randbereich zu erheblichen Störungen des Windfeldes, so dass ein Abbruch der Modellrechnung erfolgte. Als Ursache wurden die Unterschiede in den bisherigen Modellkonzepten von FOOT3DK und MM5 zur Bestimmung der turbulenten Flüsse am Erdboden erkannt. Bei extremen Strahlungstagen mit Maximumtemperaturen über 30°C - wie hier in diesem Beispiel - können ohne Berücksichtigung der Bodenfeuchte die turbulenten Flüsse sensibler und latenter Wärme oft nur unzureichend simuliert werden. Daher wurde das Modellsystem wie in *Abschnitt 3.1.2* beschrieben auf eine überarbeitete FOOT3DK-Version umgestellt, die wie MM5 ein prognostisches Bodenmodell beinhaltet.



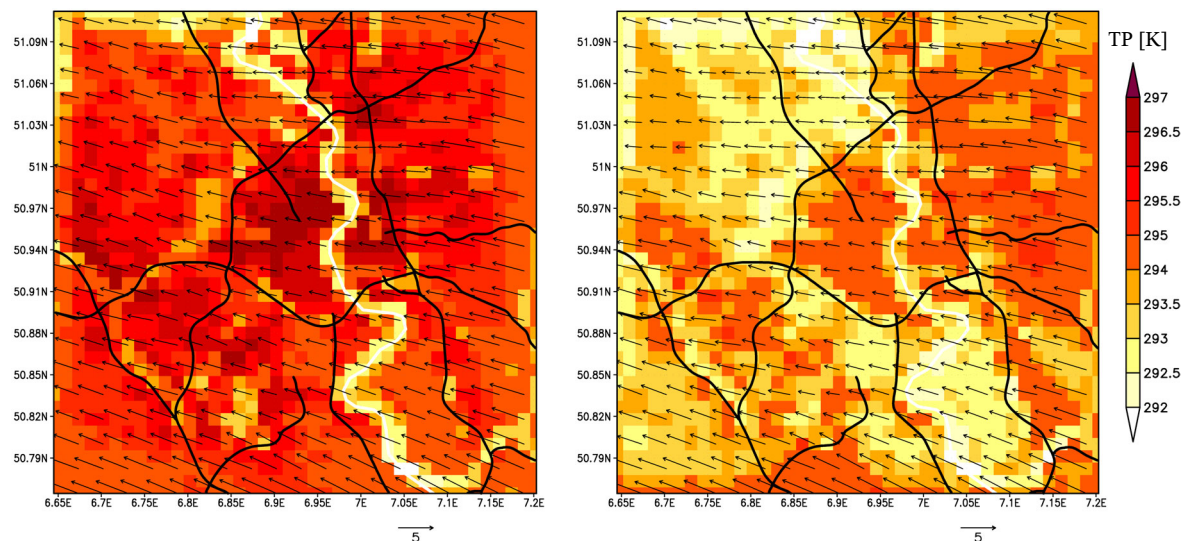
**Abbildung 4.12:** Potentielle Temperatur  $TP$  am Boden (in K) und Horizontalwind der jeweils ersten Modellschicht (Windpfeile in m/s) für den 11.08.1997 um 20 UTC der Simulation mit MM5 (Nestingvorgabe, links) sowie mit der alten FOOT3DK-Version (rechts). Das Flächenmittel der potentiellen Temperatur beträgt bei MM5 293.6 K und bei FOOT3DK 295.2 K. In dieser wie auch in den folgenden Abbildungen sind die Koordinaten in Länge und Breite angegeben.

### Auswirkung des Bodenmodells auf die resultierenden Felder (FOOT3DK)

Da keinerlei Angaben über den Bodenwassergehalt aus dem Modell MM5 verfügbar sind, muss dieser zu Beginn einer Simulation abgeschätzt werden. Dabei gilt es, die drei Größen  $W_g$ ,  $W_2$  sowie  $W_r$  mit geeigneten Anfangswerten zu besetzen. Nachdem vor Beginn der

betrachteten Episode seit Tagen kein Niederschlag gefallen war, wird der Initialwert für den Wassergehalt in der Pflanzenschicht mit  $W_r = 0$  besetzt. Schwieriger gestaltet sich die adäquate Wahl der Anfangsbedingungen für den Oberflächenwassergehalt  $W_g$  und den Wassergehalt der mittleren Bodenschicht  $W_2$ . Beide Werte können zu Simulationsbeginn über die Angabe des Relativanteils am Sättigungs-Bodenwassergehalt  $W_{sat}$  mit einem Initialwert  $W_i = W_{fac} \cdot W_{sat}$  belegt werden. In einer ausführlichen Sensitivitätsstudie wurde die Auswirkung unterschiedlicher Anfangswassergehalte für  $W_2$  und  $W_g$  auf die resultierenden Felder untersucht. Dabei wurde für das gesamte Modellgebiet der Bodentyp „Sandlehm“ verwendet (siehe zu den bodentypabhängigen Parametern auch *Tabelle C.1* im *Anhang C*). Exemplarisch werden hier die Ergebnisse für drei verschiedene Ausgangssituationen präsentiert, bei denen der Anfangswassergehalt wie folgt variiert wurde:

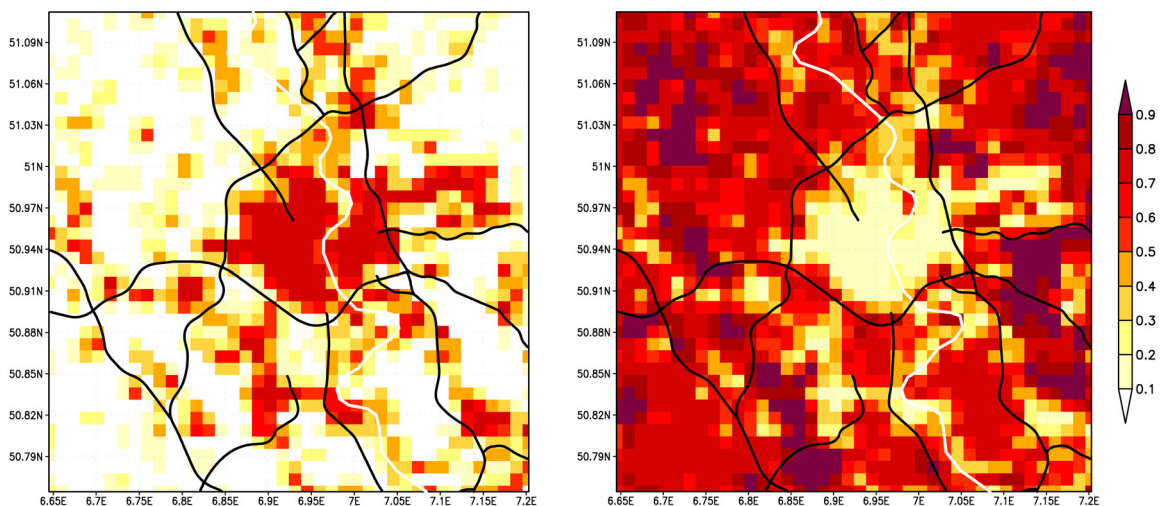
1. „trockener Fall“:  $W_{fac} = 0.3$  (entsprechend zur Initialisierung in MM5,  $W_2 < W_{wilt}$ )
2. „feuchter Fall“ :  $W_{fac} = 0.6$  ( $W_2 > W_{wilt} = \text{Welkpunkt der Vegetation}$ )
3. „nasser Fall“ :  $W_{fac} = 1.0$  ( $W_2 = W_{sat}$ )



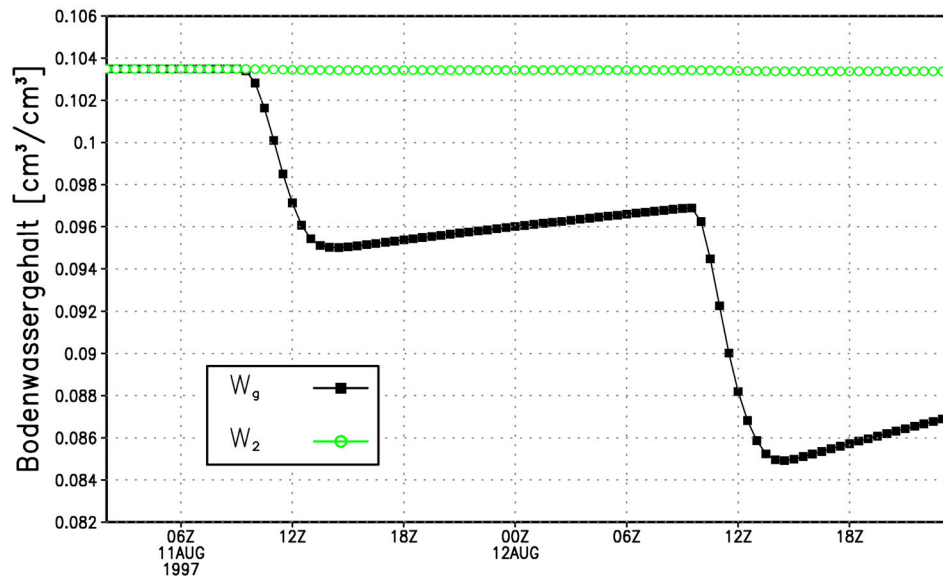
**Abbildung 4.13:** Potentielle Temperatur am Boden (in K) und Horizontalwind der ersten Modellschicht (Windpfeile in m/s) für den 11.08.1997 um 20 UTC im Fall 1 (links) bzw. Fall 2 (rechts). Das Flächenmittel der potentiellen Temperatur beträgt in Fall 1 294.3 K bzw. 293.2 K im Fall 2.

Die *Abbildung 4.13* zeigt das Ergebnis der Simulationen für Fall 1 bzw. Fall 2 ebenfalls für den 11.08.1997 um 20 UTC. In beiden Fällen ist deutlich ein Abkühlungseffekt entlang der Flüsse (vgl. auch *Abbildung 4.1*) und insbesondere des Rheins zu erkennen. Der Innenstadtbereich von Köln und andere stark durch Versiegelung gekennzeichnete Bereiche (siehe *Abbildung 4.14*) treten deutlich als sogenannte „Wärmeinseln“ hervor. Im ersten Fall liegt das Flächenmittel von TP am Boden zwischen der MM5-Vorgabe und der Simu-

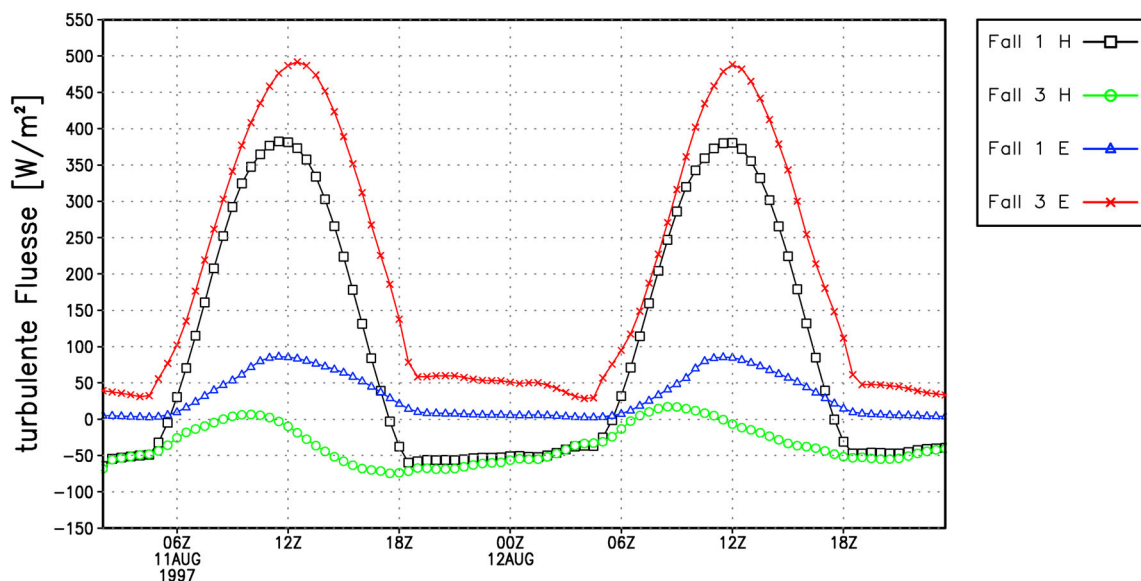
lation mit der früheren FOOT3DK-Version, im zweiten Fall liegt sie darunter. In *Abbildung 4.13* wird auch die Kopplung des Wind- und Temperaturfeldes sichtbar. Im Fall 2 herrscht im Bereich nordwestlich der Stadt Köln Ostwind, während im Fall 1 der Wind eine südliche Komponente besitzt. Diese Unterschiede sind zu anderen Zeiten deutlicher ausgeprägt als in der hier dargestellten Situation. Fall 1 entspricht der Initialisierung in MM5 mit einem Anfangswert des Bodenwassergehalts von 30% des bodentypabhängigen Sättigungswertes. Während dieser Wert bei MM5 konstant gehalten wird und auch  $W_2$  sich in diesem Fall nur langsam ändert, weist bei FOOT3DK der Bodenwassergehalt der obersten Schicht  $W_g$  einen ausgeprägten Tagesgang auf (vgl. *Abbildung 4.15*). Dabei liegt der Bodenwassergehalt im gesamten Modellgebiet bereits zu Simulationsbeginn unterhalb des bodentypabhängigen Welkpunktes  $W_{wilt}$ , so dass die Vegetation kein Wasser aus dem Boden ziehen kann (siehe auch *Anhang C*) und keine Evapo-Transpiration stattfindet. Bei zunehmender Austrocknung des Bodens und abnehmender Wasserverfügbarkeit für die Vegetation ist daher der Beitrag der latenten Wärme zur Energiebilanz gering (siehe *Abbildung 4.16*). Der sensible Wärmefluss ist durch die Sonneneinstrahlung dagegen sehr hoch, so dass sich der Erdboden tagsüber stark aufheizt. In den Fällen 2 und 3 sorgt die Vegetation durch Verdunstung insgesamt für eine weniger starke Erwärmung des Untergrundes. Besonders ausgeprägt ist dieser Effekt in den Bereichen mit hoher Vegetationsbedeckung und niedrigem Versiegelungsgrad der Fläche; doch selbst im Bereich der Kölner Innenstadt bewirken z.B. einzelne Bäume sowie die ausgedehnten Parkanlagen eine Milderung des Aufheizeffektes.



**Abbildung 4.14:** Versiegelungsgrad (links) und Vegetationsbedeckungsgrad (rechts) als Anteile der Gesamtfläche einer Gitterbox. Im Innenstadtbereich beträgt der Versiegelungsgrad 80%.



**Abbildung 4.15:** Verlauf des flächengemittelten Bodenwassergehalts  $W_g$  und  $W_2$  im „trockenen Fall“ für die Episode 2 vom 11.08.-12.08.1997. Die Zeitangabe bezieht sich auf UTC.

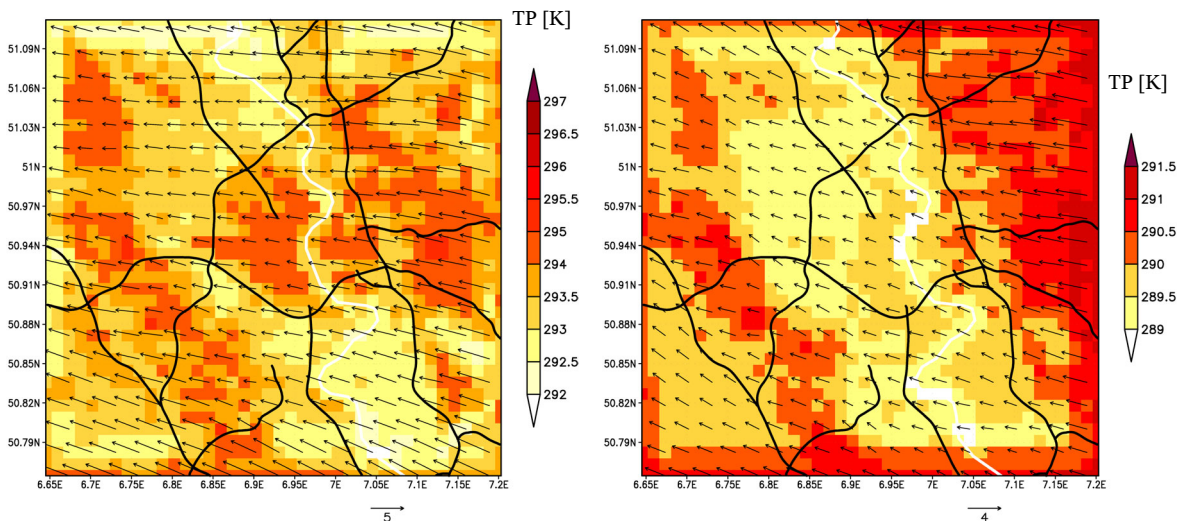


**Abbildung 4.16:** Verlauf der flächengemittelten turbulenten Flüsse sensibler ( $H$ ) und latenter Wärme ( $E$ ) am Erdboden für den „trockenen“ und den „feuchten Fall“ im Zeitraum der Episode 2. Die Zeitangabe bezieht sich wie gehabt auf UTC.

In *Abbildung 4.17* ist links die Verteilung der potentiellen Temperatur im „nassen Fall“ für denselben Zeitpunkt wie in *Abbildung 4.13* dargestellt. Das Flächenmittel von TP liegt nur etwas niedriger als im Fall 2, doch ist die simulierte Temperatur im Vergleich mit den Messwerten (hier nicht gezeigt) im Tagesverlauf viel zu niedrig. Die rechte Abbildung zeigt ein Beispiel dafür, dass eine unrealistische Einschätzung der Bodenfeuchte wiederum



zu einem Auseinanderdriften zwischen dem antreibenden und dem genesteten Modell führen kann. Während in *Abbildung 4.12 (rechts)* die Temperaturen innerhalb des Modellgebietes von FOOT3DK zu hoch simuliert wurden, sind sie in dem hier gezeigten Fall morgens zu niedrig. Dies zeigt sich an dem „warmen Modellrand“, der durch die Vorgabe geprägt ist. Das hohe Angebot an Feuchtigkeit führt dazu, dass nach Sonnenaufgang die Energie zunächst zur Verdunstung aus dem Boden aufgebracht wird, so dass die Temperaturen nicht so schnell ansteigen wie in dem „trockenen“ übergeordneten Modell. Die auffällig erhöhten Werte in der Region der Ville sind auf die Höhenabhängigkeit der potentiellen Temperatur zurückzuführen, die über den Luftdruck impliziert wird ( $TP = T (p_r/p)^{R_L/c_p}$ ). Dieser Effekt ist auch in den anderen Abbildungen zu erkennen und zeigt sich ebenfalls im Bereich des Bergischen Landes und der Ausläufer der Eifel.



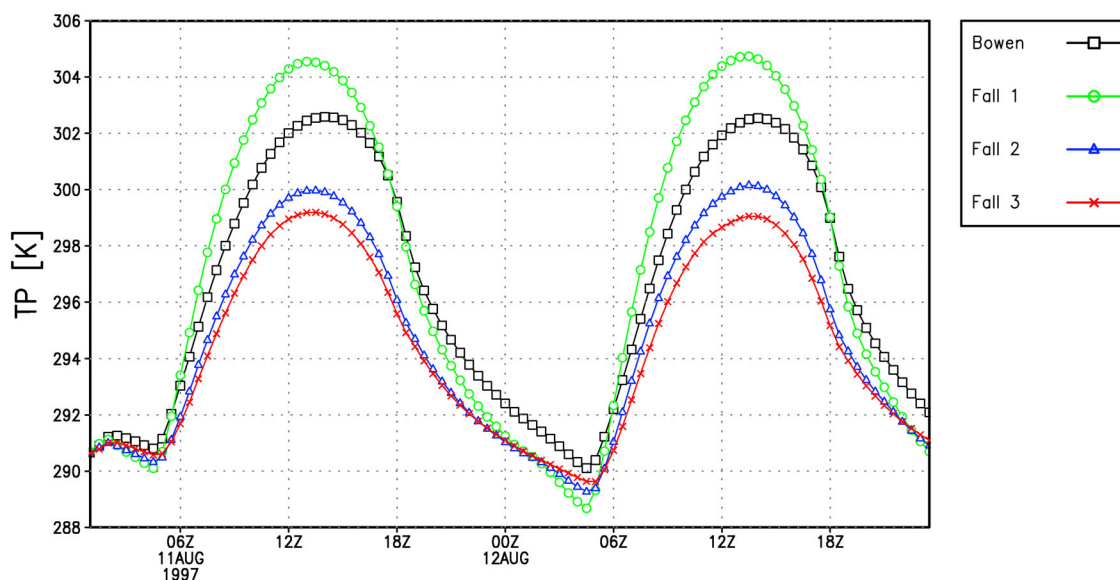
**Abbildung 4.17:** Potentielle Temperatur am Boden (in K) und Horizontalwind der ersten Modellschicht (Windpfeile in m/s) der Simulation für den „nassen Fall“. Links für den 11.08.1997 um 20 UTC (Flächenmittel der potentiellen Temperatur: 293.1 K) und rechts für den 08.08.1997 um 5:30 UTC.

Der dritte Fall ist angesichts anhaltender Trockenheit für den betrachteten Episodenzeitraum unrealistisch, dennoch dient er zur Veranschaulichung des beachtlichen Einflusses der Bodenfeuchte. *Abbildung 4.16* zeigt den Verlauf der turbulenten Flüsse am Boden als Mittel über das gesamte Modellgebiet für den „trockenen“ und den „nassen Fall“. Während im „trockenen Fall“ der latente Wärmefluss weniger als  $90 \text{ W/m}^2$  beträgt, ist er im Fall 3 dominierend. Beim sensiblen Wärmefluss verhält es sich genau umgekehrt. Beide Fälle sind hierbei als zwei Extreme der jeweils gewählten Anfangsbedingungen anzusehen. Im Fall 1 mag der Bodenwassergehalt in der obersten Schicht für die betrachtete Trockenperiode

zwar treffend wiedergegeben sein, doch die darausfolgende Konsequenz des Ausbleibens jeglicher Verdunstung durch die Vegetation ist unrealistisch. Bäume und andere Pflanzen mit tiefen Wurzeln ragen weiter als 1 m in das Erdreich hinein und haben somit auch dann noch Wasserzugang, wenn das Bodenmodell in der obersten Schicht keine Feuchtigkeit mehr zur Verfügung stellen kann. Im Rahmen einer Studie wird zur Zeit die Möglichkeit untersucht, durch die Einführung einer „virtuellen Grundwasserschicht“ innerhalb des Bodenmodells von FOOT3DK diese Gegebenheit zu berücksichtigen (siehe HÜBENER *et al.* 2004). Die derzeitige Unzulänglichkeit des Bodenmodells bei extremer Trockenheit in einem heterogenen Modellgebiet wird vorerst in dieser Arbeit durch eine Erhöhung des Wasserangebots kompensiert. Bei den durchgeführten Sensitivitätsstudien hat sich im Vergleich mit Messwerten und der Nestingvorgabe, die durch Analysen angetrieben wird, für die einzelnen Teilepisoden ein Anfangswassergehalt zwischen 40% und 50% als beste Voraussetzung für die Simulationen herausgestellt. Dabei wurde auch die Auswirkung unterschiedlicher Faktoren für  $W_g$  und  $W_2$  untersucht. Aufgrund des ‚Force-Restore‘-Konzepts wird ein Teil des verdunsteten Wassers aus der Bodenschicht  $d_g$  von der darunter liegenden Schicht  $d_2$  wieder aufgefüllt, so dass insbesondere nachts  $W_g$  leicht ansteigt ohne jedoch das Ausgangsniveau zu erreichen (*Abbildung 4.15*). Es ist daher anzunehmen, dass  $W_g$  auch zu Beginn der ersten Teilepisode (Episode 0) bereits unterhalb des  $W_2$ -Wertes liegt. Dementsprechend wurde der Faktor für den Anfangsbodenwassergehalt von  $W_g$  stets etwas niedriger angesetzt. Die durch diese Sensitivitätsuntersuchungen bestimmten Anfangsbedingungen definieren somit das *Basisszenario der Meteorologie*. Gute Ergebnisse wurden in allen Simulationen mit den Anfangswerten  $W_{fac} = 0.5$  für  $W_2$  bzw.  $W_{fac} = 0.45$  für  $W_g$  erzielt.

*Abbildung 4.18* veranschaulicht zusammenfassend die Bandbreite der Modellergebnisse am Beispiel der Temperaturprognose bei Variation des Anfangsbodenwassergehalts bzw. bei der Simulation mit Bowenverhältnismethode. Für zukünftige Untersuchungen mit dem CARLOS-System ist anstelle der Abschätzung des Bodenwassergehalts eine Übernahme der Werte aus dem übergeordneten Modell wünschenswert. Für die Berechnungen in dieser Arbeit stehen jedoch nur Ergebnisse des Modells MM5V2 zur Verfügung, das ein Bodenmodell (DUDHIA 1996) ohne Prognose der Bodenfeuchte verwendet. Die neueste Version MM5V3 beinhaltet ein erweitertes Bodenmodell (LSM, CHEN & DUDHIA 2001), so dass es möglich sein sollte, das Modellsystem CARLOS um diese Option zu erweitern. Im Rahmen anderer Projekte ist bereits ein Nesten von FOOT3DK in das Deutschland- bzw. Lokal-Modell des Deutschen Wetterdienstes mit Übernahme der Bodenparameter wie Temperatur und Feuchte verwirklicht worden. Insbesondere bei der Simulation von Niederschlagsereignissen erweist sich die korrekte Wiedergabe der Bodentemperatur und des

Bodenwassergehalts als wichtige Eingangsgröße (SOGALLA & KERSCHGENS 2001). Doch auch mit Hilfe der durch Sensitivitätsstudien gewonnenen Anfangswerte wird durch die Erweiterung des lokalen meteorologischen Modells des CARLOS-Systems eine erhebliche Verbesserung der Simulationsgüte erreicht.



**Abbildung 4.18:** Verlauf des Flächenmittels der potentiellen Temperatur am Boden während des Zeitraums der Episode 2 für die vier unterschiedlichen Simulationen mit Bowenverhältnismethode bzw. Fall 1-3.

### Auswirkung des Bodenmodells auf die Konzentrationsverteilungen (CTM2F)

Neben dem Einfluss der Bodenfeuchte auf meteorologische Parameter wie z.B. die turbulenten Flüsse und die Temperatur wurde ebenfalls die Auswirkung der Modellerweiterung auf die Chemie-Transportrechnungen, denen das Hauptinteresse in dieser Arbeit gilt, untersucht. Dazu dienten die oben beschriebenen vier unterschiedlichen FOOT3DK-Simulationen als Antrieb für das Modell CTM2F, wobei ansonsten für alle Berechnungen die selben Randbedingungen verwendet wurden. Das Windfeld des meteorologischen Modells und die Turbulenz bestimmen dabei maßgeblich die Ausbreitung der Schadstoffe in der Atmosphäre. Die durch den Bodenwassergehalt beeinflusste Temperatur hat erhebliche Auswirkungen auf die chemischen Umwandlungsprozesse, da die Ratenkonstanten der thermischen Reaktionen temperaturabhängig sind. Aber auch die Feuchte selbst hat direkten Einfluss auf die Konzentrationsverteilung einiger Spezies, wenn das Wassermolekül

ein Reaktionspartner bei den entsprechenden Umwandlungsprozessen ist. So ist Wasserdampf beispielsweise über die Reaktion



an der Bildung des Hydroxylradikals beteiligt, das seinerseits in viele luftchemische Prozesse involviert ist (vgl. *Kapitel 2.2*).  $\text{O}({}^1\text{D})$  bezeichnet dabei die angeregte Form des atomaren Sauerstoffs, die durch Photodissoziation von Ozon (bei  $\lambda < 310 \text{ nm}$ ) gebildet wird. Allerdings werden durch die folgende Reaktion, an der auch zusätzlich Wasserdampf beteiligt sein kann, die ebenfalls sehr reaktiven Hydroperoxyradikale in Wasserstoffperoxid umgewandelt:



Sind in der Atmosphäre jedoch reichlich Stickoxide vorhanden, so reagieren die  $\text{HO}_2$ -Moleküle eher nach folgendem Schema:



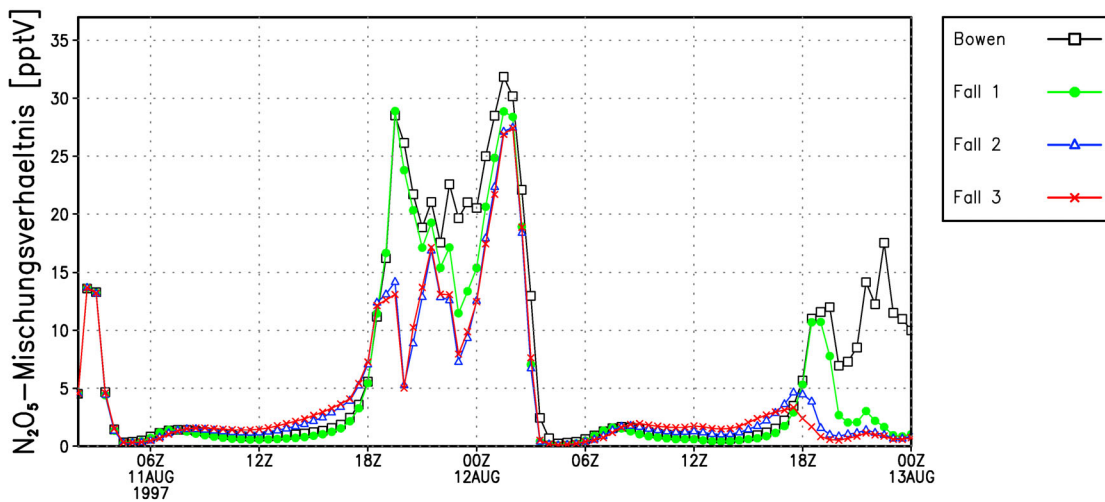
In der belasteten städtischen Atmosphäre finden sich daher geringere Konzentrationen von  $\text{H}_2\text{O}_2$  als in ländlichen Gebieten. Hohe Bildungsraten von Wasserstoffperoxid sind daher auch ein Zeichen für die *Stickstofflimitierung* des photochemischen Smogs. In quellfernen Gebieten ist in diesem Fall das Ozonbildungspotential durch die unzureichende  $\text{NO}_x$ -Konzentration in der Atmosphäre eingeschränkt.

Wasserdampf ist ferner an der Bildung von Salpetersäure beteiligt:



Diese Reaktion ist eine Senke für  $\text{N}_2\text{O}_5$  sowie auch für  $\text{NO}_3$ . Zwar wird Distickstoffpentoxid durch die Reaktion von  $\text{NO}_2$  mit  $\text{NO}_3$  gebildet (R20), doch stellt sich in Bodennähe schnell ein Gleichgewichtszustand ein, da  $\text{N}_2\text{O}_5$  sehr schnell wieder thermisch in die beiden einzelnen Komponenten zerfällt. *Abbildung 4.19* zeigt den Verlauf des  $\text{N}_2\text{O}_5$ -Mischungsverhältnisses während des Zeitraums vom 11.-12.08.1997 (Episode 2) für den Gitterpunkt der Station Chorweiler. Bei den beiden Simulationen mit höherem Wasserangebot (Fall 2 und 3) ist abends und nachts weniger  $\text{N}_2\text{O}_5$  in der Atmosphäre enthalten als in den beiden „trockenen Fällen“. Insbesondere nach 18 UTC zeigen sich entsprechend auch höhere Konzentrationen von  $\text{HNO}_3$  im „feuchten“ und „nassen Fall“ (hier nicht gezeigt). Dies lässt darauf schließen, dass bei höherem Feuchteangebot die Reaktion (R35) in CTM2F wesentlich effektiver verläuft.

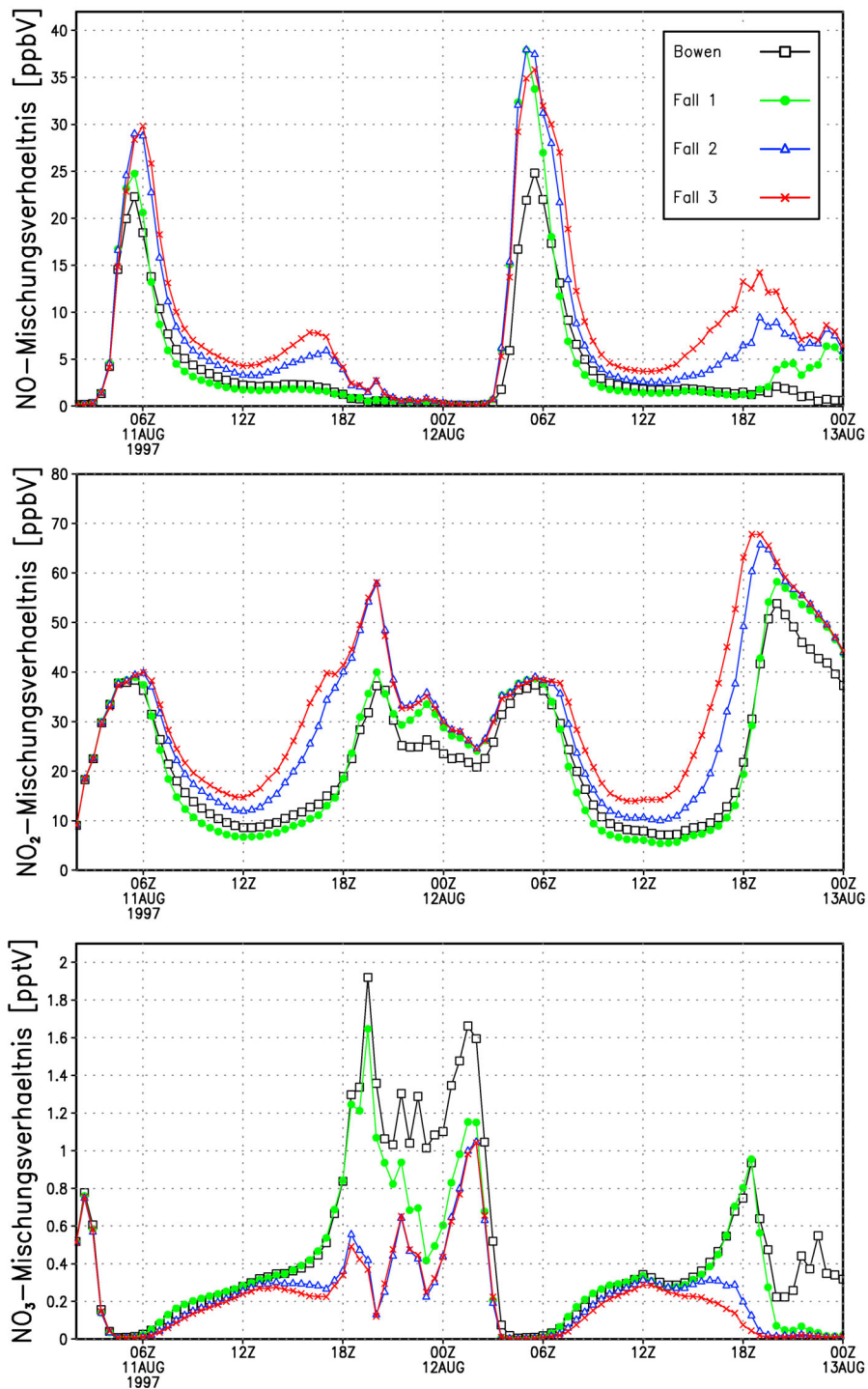




**Abbildung 4.19:** Verlauf des Mischungsverhältnisses (pptV) von Distickstoffpentoxid ( $N_2O_5$ ) in der untersten Modellschicht an dem Gitterpunkt Chorweiler während der Episode 2 für die im vorherigen Abschnitt beschriebenen vier unterschiedlichen Simulationen.

Die luftchemischen Prozesse in der mit Schadstoffen belasteten städtischen Atmosphäre sind allerdings sehr komplex und daher können Konzentrationsänderungen eines Stoffes meist nicht losgelöst von anderen Spezies betrachtet werden. In städtischen Gebieten sind besonders Stickstoffverbindungen aus Verbrennungsprozessen an vielen Reaktionen beteiligt. In *Abbildung 4.20* ist der Verlauf der Konzentrationen von  $NO$ ,  $NO_2$  und  $NO_3$  während des betrachteten Zeitraums dargestellt. Zwischen den einzelnen Simulationen zeigen sich teilweise große Unterschiede in den prognostizierten Werten, wobei besonders die „trockenen“ und „feuchten Fälle“ voneinander abweichen. Besonders auffällig sind die Abweichungen bei  $NO_3$  am 11.08.1997 ab 18 UTC. Die niedrigen Werte in den Fällen mit höherer Bodenfeuchte weisen darauf hin, dass über die Reaktionskette  $NO_2 + NO_3 + H_2O \rightarrow 2 HNO_3$  verstärkt  $NO_3$  abgebaut wird. Die Feuchte hat bei dieser Reaktion also direkten Einfluss auf die Schadstoffkonzentration (*siehe auch* PETRY 1993).

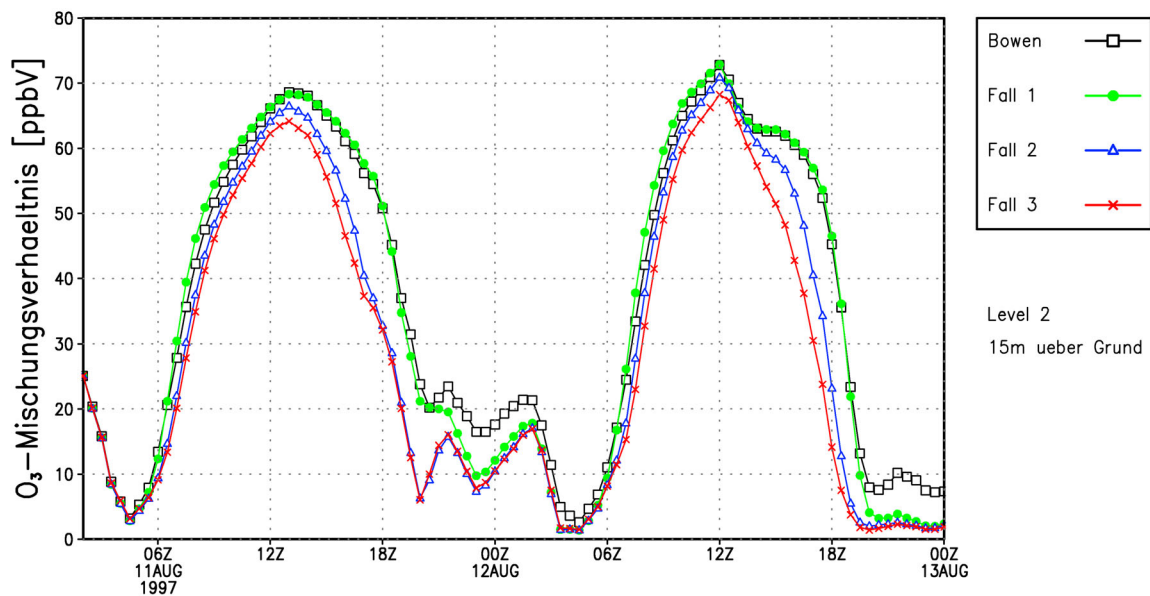
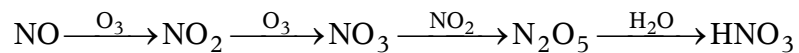
Allerdings muss auch berücksichtigt werden, dass  $NO_3$  besonders nachts durch den Abbau von Ozon entsteht (R19), so dass seine Konzentration von der Verfügbarkeit der Reaktanten  $O_3$  und  $NO_2$  abhängig ist. Durch die Reaktion mit  $NO$  zu  $NO_2$  wird  $NO_3$  wiederum abgebaut. In *Abbildung 4.20* zeigen sich in den Fällen 2 und 3 durchweg höhere Konzentrationen von  $NO$  und  $NO_2$  als in den beiden „trockenen“ Fällen. Bei beiden Spezies ist deutlich der Tagesgang der Emissionen wiederzuerkennen, wobei bei  $NO$  der morgendliche Spitzenwert durch den Berufsverkehr besonders auffällig ist. Der starke Anstieg in der  $NO_2$ -Konzentration gegen 20 UTC am 11.08.1997 fällt zeitlich zusammen mit der Abnahme der  $NO_3$ -Konzentration. Diese Zunahme von  $NO_2$  beruht in den „feuchten“ Fällen wahrscheinlich auf einer verstärkten Reaktion von  $NO$  mit Ozon sowie mit  $NO_3$ .



**Abbildung 4.20:** Verlauf der Mischungsverhältnisse von  $\text{NO}$  (oben),  $\text{NO}_2$  (Mitte) und  $\text{NO}_3$  (unten) in der untersten Modellschicht für den Gitterpunkt der Station Chorweiler während der Episode 2. Die Legende ist für alle drei Abbildungen gültig. Bei  $\text{NO}_3$  ist die Einheit abweichend pptV statt ppbV.

Der Ozonverlauf in *Abbildung 4.21* weist für diese Fälle in dem besagten Zeitraum dementsprechend ein Minimum auf. Insgesamt zeigt sich in den Fällen 2 und 3 eine etwas nied-

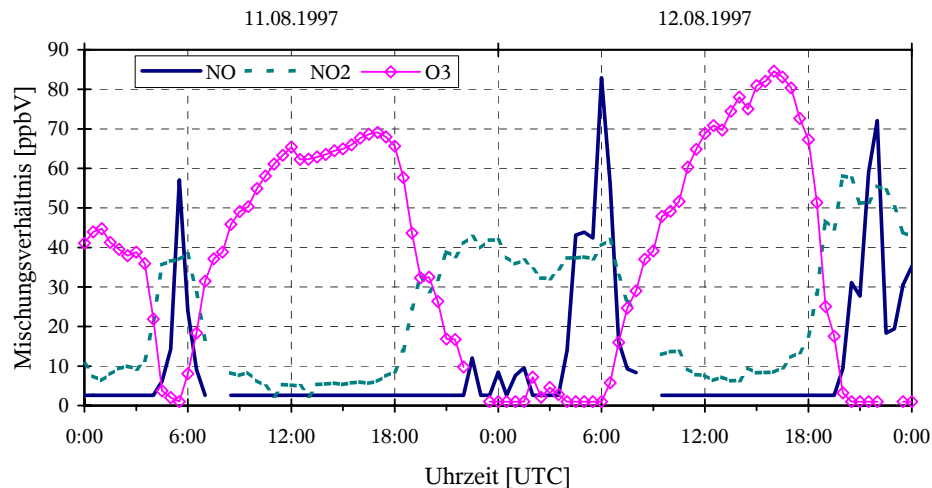
rigere Ozonproduktion. Es müssen also andere Reaktionen, die nicht zur Bildung von Ozon führen, in diesen Fällen eine größere Rolle spielen als beispielsweise im Fall 1. Der Vergleich der Konzentrationsverläufe von Ozon, NO und NO<sub>2</sub> lässt die Vermutung zu, dass in den „feuchteren“ Fällen schon in den Nachmittagsstunden der Abbau von Ozon durch NO<sub>2</sub> zu NO effektiver als der Produktionsmechanismus verläuft. Zusammenfassend lässt sich der Reaktionspfad der hier betrachteten Spezies wie folgt vereinfacht darstellen, wobei teilweise tagsüber auch die andere Reaktionsrichtung durch Photodissoziation möglich ist (vgl. Kapitel 2.2):



**Abbildung 4.21:** Verlauf des Ozonmischungsverhältnisses in der untersten Modellschicht während der Episode 2 an dem Gitterpunkt Chorweiler für die oben beschriebenen vier unterschiedlichen Simulationen.

Abbildung 4.22 zeigt die gemessenen Konzentrationen von O<sub>3</sub>, NO und NO<sub>2</sub> an der TEMES-Station Chorweiler während der betrachteten Teilepisode. Im Vergleich der Simulation mit diesen Werten zeigt sich ein uneinheitliches Bild, was die Übereinstimmung der einzelnen Simulationen betrifft. Die morgendlichen NO-Spitzen werden in allen vier Simulationen deutlich unterschätzt, wobei die Abweichung bei der Bowenverhältnismethode sogar mehr als den Faktor 2 beträgt. Die Fälle 2 und 3 simulieren einen sehr steilen Ozonverlauf, vor allem der Abfall der Ozonkonzentration am Abend ist stark ausgeprägt. Die Messwerte dagegen zeigen einen wesentlich breiteren Verlauf der Ozonkonzentration und die Maxima, die von dem Modell CTM2F kurz nach Sonnenhöchststand prognostiziert werden, sind in die späten Nachmittagsstunden verschoben. Tagsüber werden die niedrigen

NO<sub>2</sub>-Konzentrationen besonders von den Läufen mit hohem Feuchteangebot überschätzt. Die Ozonwerte werden besonders am zweiten Tag der Episode von allen vier Simulationen unterschätzt, doch weisen bereits die Ergebnisse des antreibenden Nests (N2) an diesem Tag zu niedrige Werte auf (vgl. *Abbildung 4.9*).



**Abbildung 4.22:** TEMES-Messwerte an der Station Chorweiler für NO, NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> während des Zeitraums der Episode 2.

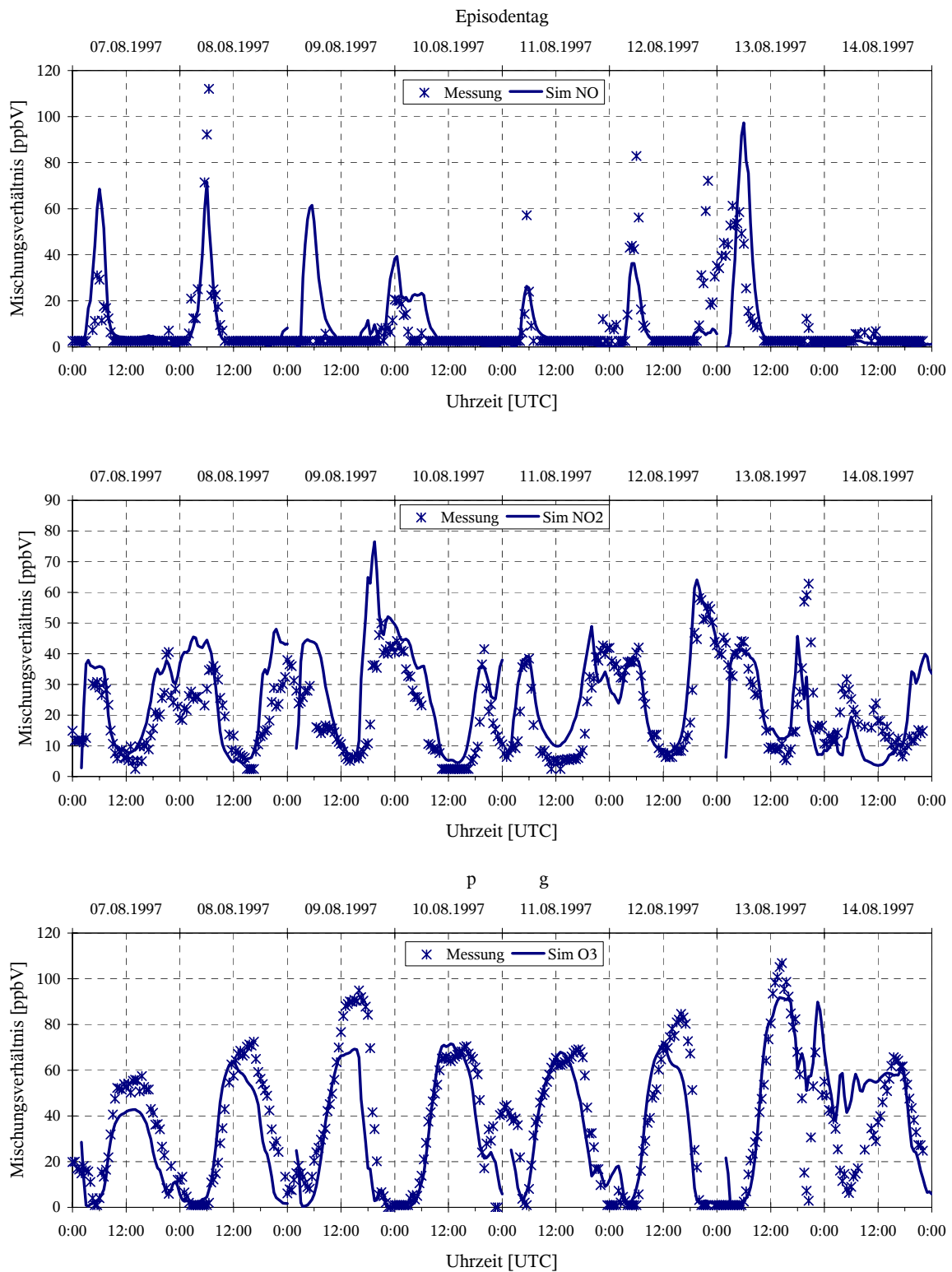
Die oben dargestellten Ergebnisse zeigen exemplarisch, wie komplex das Zusammenwirken der einzelnen Faktoren bei den Produktions- und Verlustprozessen der einzelnen Spezies ist. Da sich luftchemische Prozesse besonders durch Nichtlinearitäten auszeichnen, ist letztlich eine genaue Zuordnung der Einflussfaktoren in einem dreidimensionalen Modell schwierig. Die Untersuchung dieser Zusammenhänge sollte jedoch nicht primäres Ziel dieser Arbeit sein, daher wurden keine weiteren Studien in diese Richtung z.B. mit einem Boxmodell durchgeführt. Abschließend lässt sich zusammenfassen, dass die Variation des Bodenwassergehalts sowohl indirekt z.B. über die Temperatur als auch direkt durch die Veränderung des Wasserdampfangebots die resultierenden Konzentrationsfelder stark beeinflusst. Eine möglichst exakte Wiedergabe dieser Größe im Modell ist daher relevant für die realitätsnahe Simulation der Immissionssituation.

#### 4.4.2 Validierung des Basisszenarios

Das Basisszenario setzt sich zusammen aus den oben beschriebenen meteorologischen Strömungsberechnungen mit FOOT3DK für jede Teilepisode (über zwei Tage) und den entsprechenden Chemie-Transport-Simulationen. Die Ergebnisse der Berechnungen mit CTM2F bilden anschließend den Ausgangspunkt für die in *Kapitel 4.5* präsentierten Szena-

riensimulationen mit veränderten Emissionen des Straßenverkehrs. *Abbildung 4.23* zeigt beispielhaft die Simulationsergebnisse für das Basisszenario am entsprechenden Gitterpunkt der Station Chorweiler im Vergleich zu den Messwerten von NO, NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub>. Die Station Chorweiler wird in dieser Arbeit meistens zu Vergleichszwecken ausgewählt, da sie nahe am Zentrum und zudem während des gesamten Zeitraums im Leebereich der Stadt Köln liegt. Der Einfluss der städtischen Emissionen und des Verkehrs ist daher dort besonders ausgeprägt. Für die Berechnungen mit CTM2F wurden die in *Abschnitt 3.3.2* beschriebenen Verkehrsemissionsdaten des ZAIK-Basisszenarios für den jeweiligen Wochentag verwendet. Die Brüche in den Simulationsdaten nach einer Teilepisode entstehen durch die Einschwing- bzw. Diastrophiephasen der meteorologischen Modelle MM5 und FOOT3DK, so dass zur Simulation der luftchemischen Verhältnisse die ersten beiden Stunden fehlen und effektiv nur 46 Stunden einer Teilepisode zur Verfügung stehen.

Qualitativ zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen gemessenen und simulierten Werten. Insbesondere der Tagesgang von Ozon wird an den meisten Tagen gut wiedergegeben, wobei die Maximalwerte oft unterschätzt werden. Der Abfall der Ozonkonzentration am Nachmittag erfolgt im Modell früher als in der Realität, wohingegen NO<sub>2</sub> zu diesem Zeitpunkt schneller ansteigt. Das lässt darauf schließen, dass die Photodissoziation von NO<sub>2</sub> und der damit verbundene Ozonbildungsprozess nach Sonnenhöchststand vom Modell unterschätzt bzw. die Rekombination mit NO überschätzt wird. Im Vergleich mit den Ergebnissen der EURAD-Modellläufe für die regionale Skala (*vgl. Abbildung 4.9*) werden die nächtlichen Minima der Ozonkonzentration durch die lokalen Simulationen wesentlich besser getroffen. Dies ist möglicherweise zum Teil direkt auf die erhöhte Gitterauflösung zurückzuführen, aber auch die Berücksichtigung der Schiffsemissionen entlang des Rheins spielt hierbei eine Rolle (*siehe auch Abschnitt 4.4.3*). Beim Übergang von einer Teilepisode zur nächsten setzen sich jedoch die Werte des übergeordneten Nests durch, was besonders am Morgen des 13.08.1997 sichtbar wird. Auch die Tagesgänge von NO und NO<sub>2</sub> werden vom Modell recht gut simuliert. Auffällig sind jedoch die relativ großen positiven Abweichungen im Zeitraum vom 9.-10.08.1997 (Episode 1), die besonders am ersten Tag ausgeprägt sind, während ansonsten die NO-Konzentration meist unterschätzt wird. Die Tatsache, dass es sich bei dieser Episode um ein Wochenende handelt, legte die Vermutung nahe, die veränderte Verkehrsstruktur an diesen Tagen könnte ein möglicher Grund für die Überschätzung der NO<sub>x</sub>-Konzentration sein. Dies und die besonders markante Unterschätzung der Ozonkonzentration führte u.a. zur Definition der in *Abschnitt 3.3.2* beschriebenen Szenarien zur Verkehrszusammensetzung am Wochenende. Bei den anderen Stationen innerhalb des Modellgebietes zeigt sich eine ähnlich gute Übereinstimmung der Simulationen mit den Messergebnissen.



**Abbildung 4.23:** Vergleich zwischen den Ergebnissen des Basisszenarios für die unterste Modellschicht (durchgezogene Linie) und den Messwerten an der TEMES-Station Chorweiler für NO (oben), NO<sub>2</sub> (Mitte) und Ozon (unten). Der 07.08.1997 war ein Donnerstag.

Da die Episode 0 (7.–8. August 1997) als Initialisierungsphase des Chemie-Transport-Modells gilt, werden keine weiteren Ergebnisse aus dieser Zeit interpretiert. In den letzten beiden Tagen der Gesamtperiode werden die meteorologischen Verhältnisse durch von Westen hereinziehende Störungen beeinflusst, so dass die luftchemischen Prozesse stark durch Advektion von Luftmassen und Schadstoffen geprägt sind. Im Rahmen dieser Arbeit liegt der Schwerpunkt jedoch auf den lokalen Verkehrsemissionen, deren Auswirkungen in *Abschnitt 4.5* auch durch Szenariensimulationen analysiert werden. Die weiteren Untersuchungen konzentrieren sich daher besonders auf den Zeitraum vom 9.-12.8.1997, der durch relativ ruhiges Hochdruckwetter gekennzeichnet war.

#### **4.4.3 Unsicherheiten des Basisszenarios und Einfluss der Verkehrsemissionen auf die Immissionsituation**

Neben den Unsicherheiten, die bei der Berechnung der Schadstoffverteilung durch die Modellierung der Randbedingungen wie z.B. Temperatur, Feuchte und Strömungsverhältnisse oder durch den Chemiemechanismus selbst bedingt sind, haben auch die verwendeten Emissionsdaten großen Einfluss auf die Simulationsgüte. Fehlerhafte Emissionsdaten können der dominierende Faktor bei einer schlechten Wiedergabe der gemessenen Werte sein (PLACET *et al.* 2000, SAWYER *et al.* 2000). Gerade bei der Simulation sekundärer Schadstoffe mit einzelnen Episoden ist jedoch nicht davon auszugehen, dass die mittels verschiedener z.B. statistischer Methoden gewonnenen Emissionsdaten die Verhältnisse an den einzelnen Tagen realitätsgenau erfassen. Meist sind diese Daten auch nur in räumlich stark aggregierter Form verfügbar, oder eine hohe zeitliche Auflösung wird künstlich aus einem Jahresmittelwert durch das Aufmodellieren eines Tagesgangs generiert.

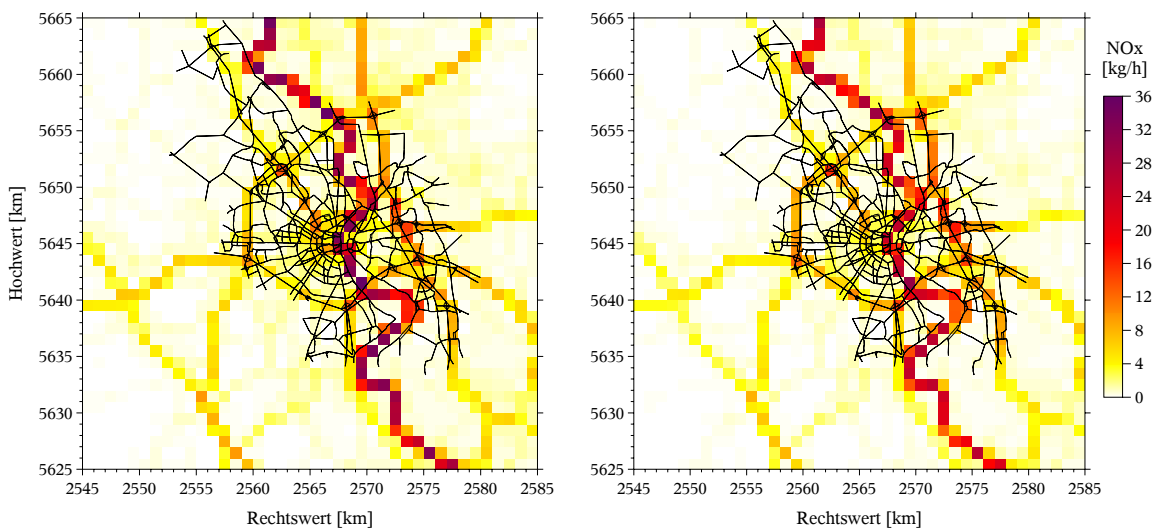
In dem hier betrachteten Modellgebiet Großraum Köln sind die Emissionen des Verkehrssektors eine wichtige Schadstoffquelle im Zusammenhang mit der Bildung von photochemischem Smog. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher wie bereits erwähnt besonders Wert gelegt auf die Berücksichtigung hochaufgelöster Verkehrsemissionen. In diesem Abschnitt wird untersucht, welchen Einfluss die lokalen Emissionen des Verkehrs auf die Immissionsituation im Modellgebiet haben und welche Unsicherheiten die Simulationsergebnisse aufgrund dieser Daten beinhalten. Zu den wichtigsten Verkehrsemissionen im Modellgebiet gehört nicht nur der Straßenverkehr, sondern auch die Rheinschifffahrt ist für den Großraum Köln von zentraler Bedeutung (*vgl. Kapitel 3.3*). Besonderes Interesse gilt den Emissionsdaten am Wochenende, da zu diesem Zeitpunkt das Basisszenario wie oben beschrieben auffällige Abweichungen im Vergleich mit den Messdaten zeigt.

### Emissionen des Schiffsverkehrs

Als Eingangsdaten für das Basisszenario werden die im Jahr 2000 vom Landesumweltamt ermittelten Daten für die Schiffsemissionen in NRW verwendet, da für das Bezugsjahr 1997 kein entsprechendes Emissionskataster vorhanden ist. Die Basis der Emissionsmodellierung durch das LUA bilden dabei die Schiffsbewegungen auf Flüssen und Kanälen sowie in Schleusen und Häfen. Mit der Kenntnis von Schiffstyp, Tiefgang und Leistungsbedarf des Bezugsjahres wird ein spezifischer Brennstoffverbrauch ermittelt und über Emissionsfaktoren die einzelnen Emissionen berechnet. Als Ergebnis liegen Emissionsdaten eines Jahres für die Werktage, Samstag und Sonntag auf einem Raster von  $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$  vor. Die Abschätzung für die einzelnen Flüsse wie z.B. den Rhein erfolgt durch statistische Erhebungen über das Transportvolumen auf den Wasserstraßen in t/km (SCHULZ 2004). Das Transportaufkommen variiert dabei von Jahr zu Jahr auch in Abhängigkeit des Wasserstandes, doch hatte die berechnete Gesamtemission der Binnenschiffe in NRW in den letzten Jahren stets die selbe Größenordnung. So betragen z.B. die schiffsbedingten  $\text{NO}_x$ -Emissionen im Regierungsbezirk Köln im Jahr 1996 2511 t/a bzw. 2394 t/a im Jahr 2000. Ferner werden aus monatsbezogenen Daten mittels Annahmen über den Tagesgang der Schiffsbewegungen stündliche Angaben synthetisch erzeugt. Die Unsicherheiten durch die Methode zur Bestimmung der rasterquadratbezogenen Daten des Rheins sind daher in diesem Fall größer einzuschätzen als die Verwendung der Daten des abweichenden Bezugsjahres.

In *Abbildung 4.24* sind die mittleren  $\text{NO}_x$ -Emissionen des betrachteten Verkehrssektors (Schiffe und Kraftfahrzeuge) für das Wochenende abgebildet. Sowohl am Samstag als auch am Sonntag heben sich die Schiffsemissionen entlang des Rheins deutlich von den Emissionen des Straßenverkehrs ab. Vergleichbar hohe Emissionen wie die mittleren  $\text{NO}_x$ -Werte der Schiffe finden sich entlang der Autobahnen nur zur Hauptverkehrszeit. Bei Betrachtung des zeitlichen Verlaufs zeigen die Schiffsemissionen einen wesentlich geringer ausgeprägten Tagesgang als der Straßenverkehr. Der hohe Ausstoß an Stickoxiden durch den Schiffsverkehr ist bedingt durch den Magerbetrieb der leistungsstarken Dieselmotoren. Um Gewicht zu sparen sind diese Motoren extrem verbrauchsoptimiert eingestellt, was erhöhte  $\text{NO}_x$ - und insbesondere  $\text{NO}$ -Emissionen impliziert (*vgl. Kapitel 2.5*). Dieses Vorgehen ist zur Zeit möglich, da es für Schiffsmotoren noch keine Emissionsbeschränkungen gibt wie z.B. für die ebenfalls leistungsstarken LKW-Motoren.

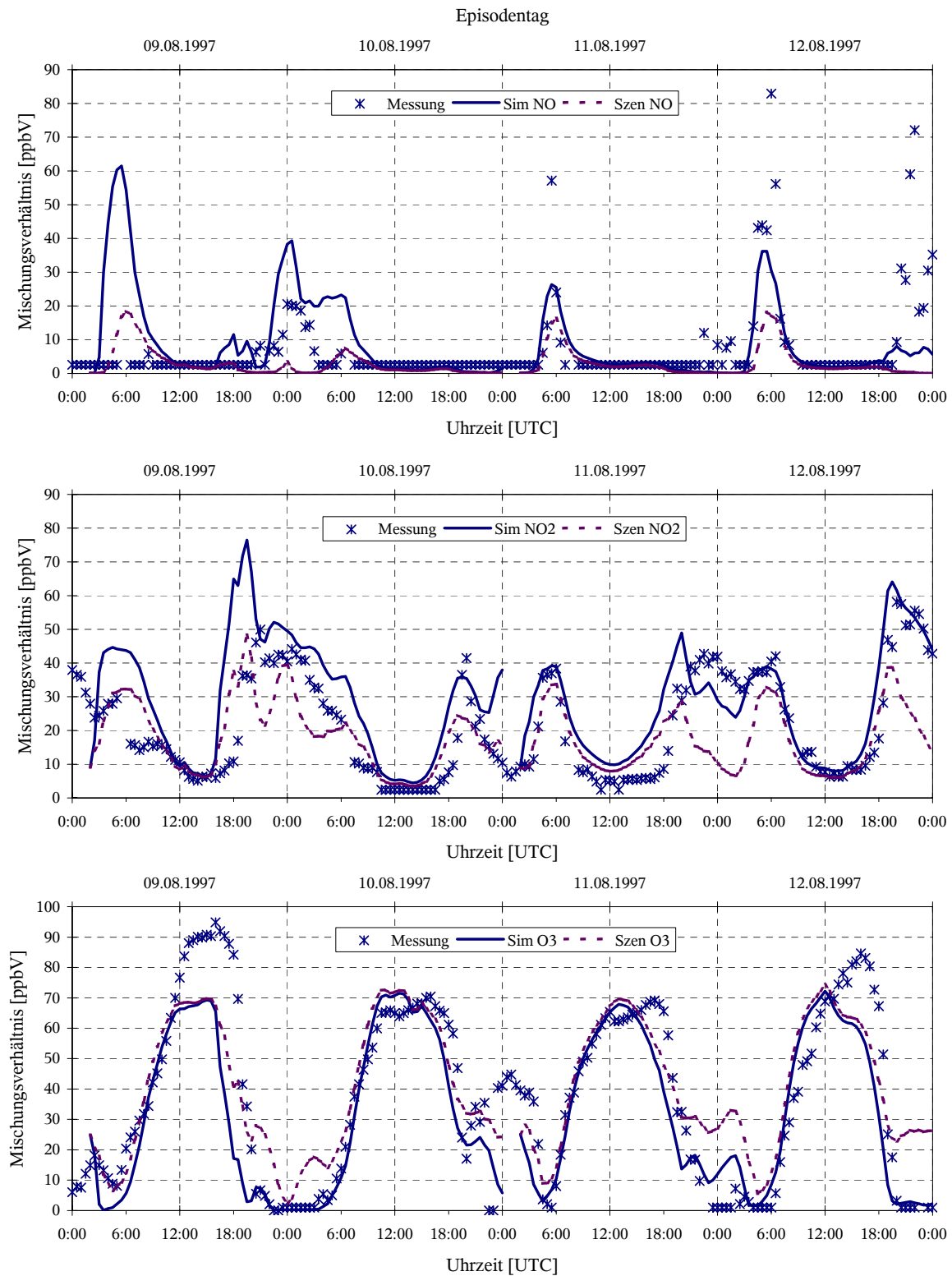




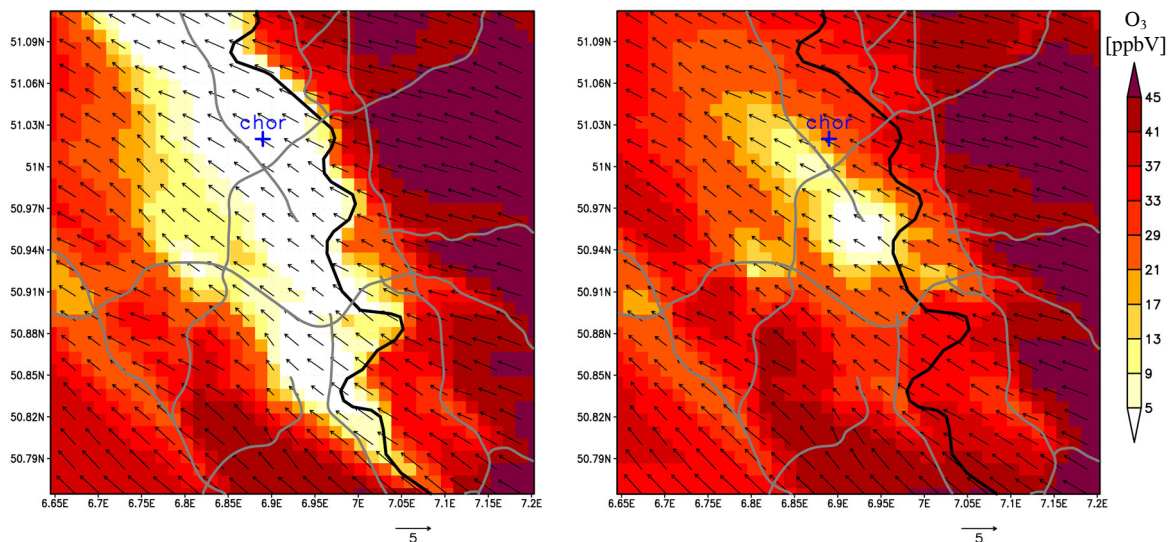
**Abbildung 4.24:** Mittlere  $\text{NO}_x$ -Emissionen des Verkehrs für das Basiszenario am Wochenende. Dargestellt sind die Emissionen des Straßenverkehrs (LUA und ZAIK-Daten, maskiert) sowie die Schiffsemissionen; links für den Wochentag Samstag (Gesamtmaximum: 36,9 kg/h, Maximum des Straßenverkehrs: 15,9 kg/h) und rechts für den Sonntag (Gesamtmaximum: 30,2 kg/h, Maximum des Straßenverkehrs: 17,1 kg/h). Die Farbskala ist für beide Abbildungen einheitlich gewählt.

Um den Einfluss des Schiffsverkehrs auf die resultierenden Konzentrationsfelder zu untersuchen, wurde ein Szenario ohne Schiffsemissionen berechnet. *Abbildung 4.25* zeigt den Vergleich zwischen den Messwerten an der Station Chorweiler und den Simulationen für den Basislauf sowie das Szenario an dem entsprechenden Gitterpunkt. Bei den  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen zeigt sich, dass die markante Abweichung zwischen Simulation und Messung im Basislauf am Wochenende (9.-10.08.1997) vermutlich auf die Verwendung der Schiffsemissionen zurückzuführen ist. An den Werktagen (11.-12.8.1997) werden die Messwerte durch den Basislauf passender repräsentiert. Dieses Ergebnis legt die Vermutung nahe, dass die Schiffsemissionen vor allem am Samstag von dem Emissionsmodell überschätzt werden. Ob auch noch die Verkehrsemissionen einen Anteil an der Fehlprognose haben, wird im nächsten Abschnitt untersucht.

Bei den Ozonverläufen liegen die Werte des Szenarienlaufs durchweg höher als im Basisfall. Dabei sind die Unterschiede in den Maximumwerten minimal, doch der weitere Verlauf zeigt interessanterweise eine deutliche Unterschätzung des nächtlichen Ozonabbaus. Am Abend des 12.08.1997 ist die Abweichung besonders groß.



**Abbildung 4.25:** Vergleich zwischen den Ergebnissen des Basisszenarios (Sim, durchgezogene Linie) und dem Szenario ohne Schiffsemissionen (Szen, gestrichelte Linie) für die unterste Modellschicht sowie den Messwerten an der TEMES-Station Chorweiler für NO (oben), NO<sub>2</sub> (Mitte) und Ozon (unten).



**Abbildung 4.26:** Ozonmischungsverhältnis [ppbV] und Horizontalwind in der untersten Modellschicht für den 12.08.1997 um 20 UTC. Links das Ergebnis des Basiszenarios und rechts die Simulation ohne Schiffsemissionen.

Abbildung 4.26 zeigt das Ozonmischungsverhältnis um 20 UTC für die beiden Simulationen. Zu diesem Zeitpunkt ist im Basislauf (*links*) deutlich ein Bereich sehr niedriger Ozonkonzentrationen im Lee des Rheins zu erkennen, aber auch der Verlauf der Autobahnen zeichnet sich im Konzentrationsfeld ab. Die Station Chorweiler liegt inmitten dieser markanten Zone. Bei der Simulation ohne Schiffsemissionen zeigt sich neben den niedrigeren Ozonwerten entlang der Autobahnen eine kleinere „Abluffbahn“ der Kölner Innenstadt mit geringen Ozonkonzentrationen. Die Station Chorweiler wird von diesem Bereich nur knapp verfehlt, so dass an dem entsprechenden Gitterpunkt ein Ozonmischungsverhältnis von ca. 23 ppbV simuliert wird anstelle von 2 ppbV im Basisfall. Von den übrigen Stationen innerhalb des Modellgebietes weisen insbesondere Langenfeld und Hürth (*vgl. Abbildung 4.1*) höhere Ozonwerte auf als z.B. Chorweiler. Diese Stationen werden in dem hier betrachteten Fall nicht im selben Maße von den  $\text{NO}_x$ -Emissionen beeinflusst. Insgesamt zeigt sich, dass nur mit Berücksichtigung der Emissionen des Schiffsverkehrs zwischen Sonnenunter- und Sonnenaufgang genügend Stickoxide in die Simulation eingebracht werden, um den beobachteten starken Ozonabbau nachzuvollziehen.

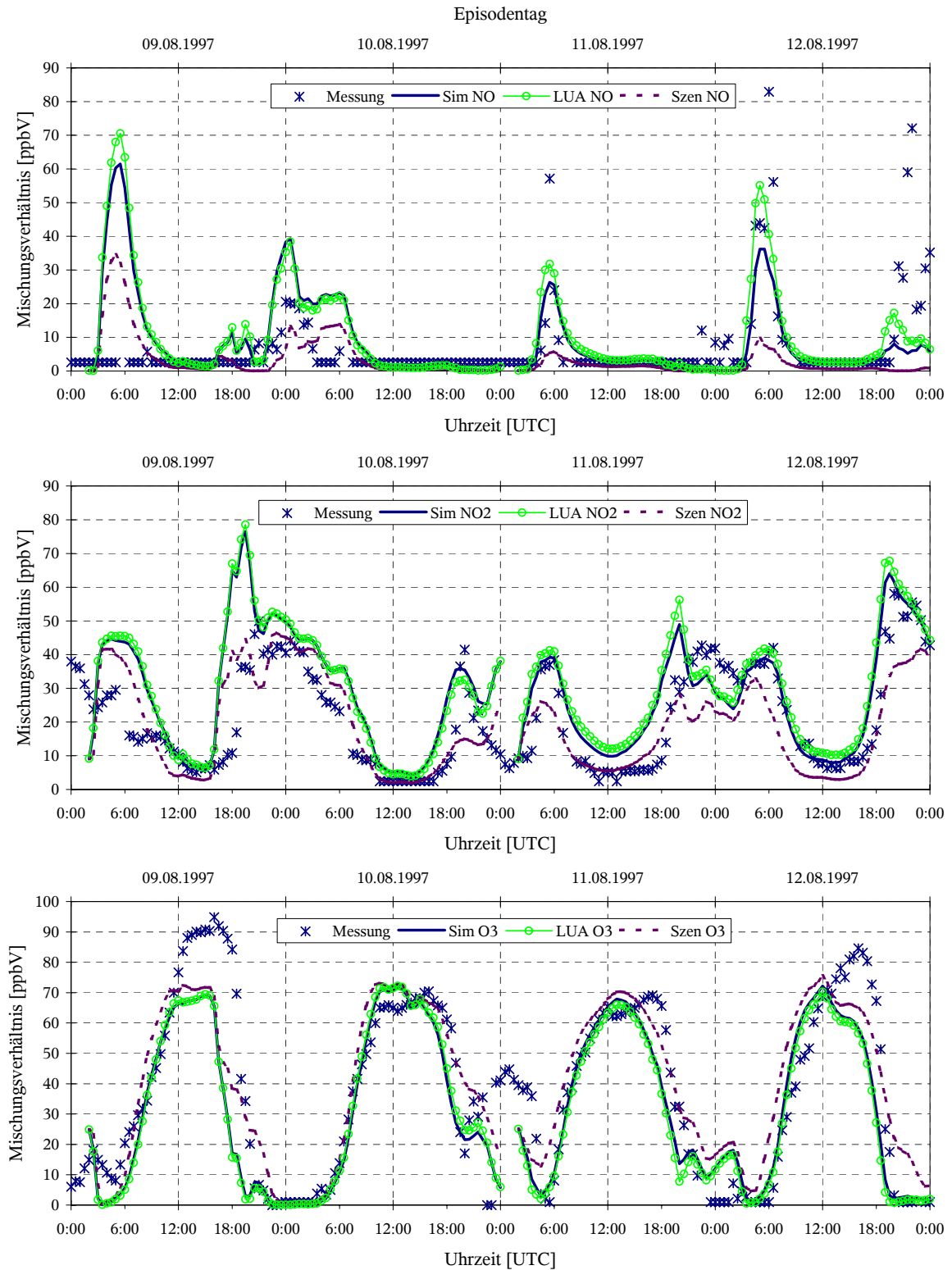
### Emissionen des Straßenverkehrs

Bevor Szenarien zu Änderungen der Emissionen des Straßenverkehrs berechnet werden, wird zunächst untersucht, welchen Einfluss die verwendeten kraftfahrzeugbedingten Emissionen auf das Basiszenario haben. Dazu wurde analog zu der Betrachtung bei den

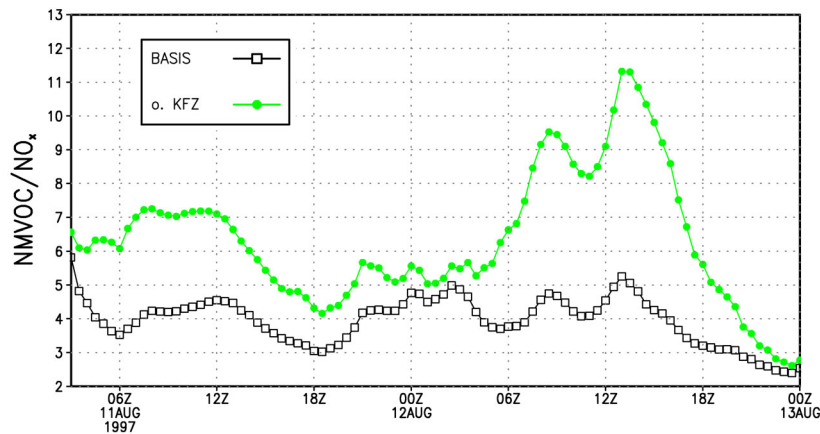
Schiffsemissionen ein Szenarienlauf ohne Berücksichtigung des Straßenverkehrs berechnet. Zusätzlich wurde eine Simulation nur auf Basis der Emissionsdaten des LUA durchgeführt, um die Unterschiede zwischen den beiden Datensätzen (ZAIK und LUA) bei der Berechnung der Immissionen zu untersuchen.

*Abbildung 4.27* zeigt den Vergleich zwischen den drei verschiedenen Simulationen und der Messung an der Station Chorweiler. Die Abweichungen zwischen den beiden Verkehrsdatensätzen sind bei Ozon nicht besonders ausgeprägt. Tagsüber unterscheiden sich die Werte bei den Spitzenkonzentrationen nur um 1-2% sonst bis 5%. Die stets negative Abweichung des LUA-Laufs ist auf das niedrigere NMHC/NO<sub>x</sub>-Verhältnis der Emissionsdaten zurückzuführen (*vgl. Kapitel 3.3*). Größere prozentuale Unterschiede treten nur bei sehr niedrigen Ozonwerten auf wie z.B. am 11.08.1997 um 19:30 UTC. Bei der Betrachtung von Gitterpunkten, die im Innenstadtbereich und damit direkt im ZAIK-Modellgebiet liegen, zeigen sich Differenzen in derselben Größenordnung. Auffälliger sind die Unterschiede dagegen bei den Stickoxiden. Besonders die NO-Werte des LUA-Laufs zur morgendlichen Hauptverkehrszeit weichen stark vom Basisszenario ab. Insgesamt betrachtet sind mit beiden Emissionsdatensätzen gute Simulationsergebnisse zur Modellierung sekundärer Schadstoffe auf der lokalen Skala zu erzielen. Die Daten des dynamischen Verkehrsmodells des ZAIK bilden somit eine gute Voraussetzung für Szenariensimulationen innerhalb des Stadtgebietes von Köln.

Die größten Unterschiede zum Referenzlauf Basisszenario zeigen sich im Vergleich zu der Simulation ohne Emissionen des Straßenverkehrs. Das Fehlen der kraftfahrzeugbedingten Emissionen führt ähnlich wie bei dem Lauf ohne Schiffsemissionen zu erhöhten Ozonwerten im gesamten Stadtgebiet, wobei in diesem Fall der Anstieg besonders an den letzten beiden Tagen noch deutlicher zu sehen ist. Der Transport von Schadstoffen aus anderen Regionen durch das übergeordnete Modell sorgt weiterhin für eine ausreichende Zufuhr an Ozonvorläufersubstanzen im gesamten Untersuchungsgebiet. Die lokale Reduktion der Verkehrsemissionen, die durch Stickoxide dominiert werden, führt dadurch zu einer Erhöhung des NMVOC/NO<sub>x</sub>-Verhältnis, so dass die Ozonbildung in diesem Fall begünstigt wird. In *Abbildung 4.28* zeigt sich dieser Effekt deutlich im Vergleich der beiden berechneten Verhältnisse für den Gitterpunkt der Station Chorweiler.



**Abbildung 4.27:** Vergleich zwischen den Ergebnissen des Basisszenarios (Sim, durchgezogene Linie), der Simulation nur mit LUA-Daten (LUA, Linie mit Kreisen) und dem Szenario ohne Emissionen des Straßenverkehrs (Szen, gestrichelte Linie) für die unterste Modellschicht sowie den Messwerten an der TEMES-Station Chorweiler für NO (oben), NO<sub>2</sub> (Mitte) und Ozon (unten).



**Abbildung 4.28:** Verlauf des NMVOC/NO<sub>x</sub>-Verhältnis am Gitterpunkt der Station Chorweiler für das Basisszenario und den Lauf ohne Emissionen von Kraftfahrzeugen während der Episode 2.

Auffällig ist an dem Lauf ohne Emissionen des Straßenverkehrs außerdem, dass trotz der geringeren Zufuhr von NO<sub>x</sub> die nächtlichen Ozonminima besser wiedergegeben werden als im Fall ohne Schiffsemissionen. Dies bestätigt die im vorigen Abschnitt dargelegte These von der enormen Bedeutung des Schiffsverkehrs für die lokale Immissionssituation im Stadtgebiet von Köln. Ohne Berücksichtigung des Straßenverkehrs werden die Stickoxide innerhalb des Modellgebietes meist unterschätzt. Eine Ausnahme bildet der Samstag, an dem die Werte morgens durch die Schiffsemissionen dominiert werden. Das Fehlen der Emissionen des Straßenverkehrs macht sich daher an diesem Tag bei NO nicht in demselben Ausmaß bemerkbar wie die Nichtberücksichtigung des Schiffsverkehrs. Der NO<sub>2</sub>-Verlauf am Samstagabend (09.08.1997) und in der darauffolgenden Nacht legt allerdings nahe, dass die Emissionsdaten beider Verkehrssektoren fast gleichermaßen Anteil haben an der Überschätzung durch die Simulation im Vergleich zu den Messwerten. Die bisherigen Emissionsdaten für den Samstag müssen daher auch im Zusammenhang mit der auffälligen Abweichung der Ozonwerte neben anderen möglichen Einflussfaktoren wie z.B. den meteorologischen Verhältnissen kritisch betrachtet werden.

### Zusammenfassung und Schlussfolgerungen aus den bisherigen Ergebnissen

Das in diesem Kapitel vorgestellte Basisszenario zeigt in Einzelfallstudien im Allgemeinen eine gute Übereinstimmung der berechneten Schadstoffkonzentrationen im Vergleich zu den Messwerten. Die grundlegenden meteorologischen und luftchemischen Verhältnisse werden durch das genestete Modellsystem auch auf der lokalen Skala im betrachteten Untersuchungszeitraum erfolgreich erfasst. Das CARLOS-System erweist sich daher als probates Mittel, um den Einfluss veränderter Emissionen auf das Schadstoffregime eines Stadtgebietes mittels Episodensimulationen zu untersuchen.

Die Betrachtung der beiden dominanten Verkehrssektoren innerhalb des Modellgebietes ergibt, dass bei schwachwindigen Hochdruckwetterlagen die Emissionen des Straßen- sowie des Schiffsverkehrs die Immissionssituation im Großraum Köln maßgeblich bestimmen. Dabei ist der Einfluss der markanten Linienquelle Rhein im Leebereich der Strömung besonders ausgeprägt. Die Emissionen des Straßenverkehrs sind aufgrund der feineren Netzstruktur dagegen eher diffuser Natur, doch an den Hauptverkehrsstraßen der Innenstadt und entlang der Autobahnen wird ihre Einwirkung anhand des Titrationseffektes von NO bei Sommersmogsituationen besonders deutlich.

Die verwendeten Emissionsdaten des Straßenverkehrs mit hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung sind zur Simulation des Sommersmogs auf der lokalen Skala gut geeignet. Die Modellergebnisse für das Wochenende stimmen in dem hier betrachteten Fall jedoch schlechter mit den Messwerten überein als an den übrigen Wochentagen. Bei dieser Betrachtung muss allerdings auch berücksichtigt werden, dass z.B. Mängel in der Simulation der meteorologischen Bedingungen und des Schadstofftransports aus dem übergeordneten Modell dabei ebenso eine Rolle spielen können wie für diesen Tag nicht repräsentative Emissionsdaten. Insbesondere bei Einzelfallsimulationen sind die Emissionsdaten sehr wichtig für die Ergebnisqualität. Ihr Einfluss im lokalen Bereich beschränkt sich jedoch im Fall der Verkehrsemissionen hauptsächlich auf die untersten Modellschichten, da die Emission bodennah stattfindet. Mit zunehmender Höhe verschwinden lokale emissionsbedingte Konzentrationsunterschiede und der Ferntransport von Schadstoffen gewinnt an Bedeutung.

Die Untersuchungen zeigen weiterhin, dass die Ozonbildung im Modellgebiet wie bei vielen europäischen Städten VOC-limitiert ist (KLEMM *et al.* 2000). Das bedeutet, dass die NO<sub>x</sub>-Konzentration der Luftmasse hoch genug ist, um bei der vorhandenen Menge VOC einen limitierenden Effekt auf die Produktion von Ozon auszuüben (*vgl. auch Abbildung 4.45*). Die VOC-Limitierung der Luftmasse zeigt sich bei den Simulationen u.a. an dem deutlichen Anstieg der Ozonkonzentration mit abnehmendem lokalem Stickoxid-Angebot. Da das daraus resultierende Verhältnis von VOC/NO<sub>x</sub> lokal sehr variabel ist, sind auch die Abweichungen räumlich unterschiedlich ausgeprägt. Tagsüber beträgt die Differenz zum Basislauf innerhalb des Stadtgebietes ca. 1-5 ppbV, nachts ist der Unterschied aufgrund der verminderten Titration durch NO wesentlich größer. Eine Erhöhung von NO<sub>x</sub> des Verkehrssektors um 50% führt dagegen bei den Episodensimulationen zu einer leichten Abnahme der Ozonkonzentration in derselben Größenordnung. Eine Steigerung oder Verminderung der Kohlenwasserstoffe des Verkehrssektors um 50% hat insgesamt nur eine minimale Auswirkung auf die Ozonkonzentration (< ±1%) innerhalb des Modellgebietes.



## 4.5 Szenariensimulationen

Der Zusammenhang zwischen Verkehrsemissionen und Sommersmog ist schon seit längerer Zeit bekannt (vgl. *Kapitel 2.2.*) und viele Untersuchungen befassen sich mit Reduktionsszenarien zur Verbesserung der Luftqualität in städtischen Gebieten (siehe z.B. FENGER 1999). Zunächst galt es die Frage zu klären, welche Auswirkung die Reduktion einzelner Vorläufersubstanzen auf lokaler sowie auf regionaler Ebene hat, um eine effektive Ozonminderungsstrategie zu entwickeln. Viele Studien zeigen, dass eine merkliche Verringerung der Ozonkonzentrationen in städtischen Gebieten nur durch eine kombinierte Reduktion der Vorläufersubstanzen auf lokaler und auf regionaler Ebene zu bewerkstelligen ist (siehe z.B. MOUSSIOPOULOS *et al.* 2000). Lokale Fahrverbote haben sich dagegen vor Ort als unwirksames Mittel zur Reduktion hoher Ozonlevel erwiesen, da die advehierten Luftmassen aus weiterhin belasteten Regionen ausreichend Vorläufersubstanzen enthalten. Die Auswertung der Simulationen mit dem Basisszenario ohne Emissionen des Verkehrssektors bestätigt diesen Zusammenhang für den Großraum der Stadt Köln. Erst in einiger Entfernung vom Reduktionsgebiet machen sich niedrigere Schadstofflevel durch eine verminderte Bildung sekundärer Schadstoffe bemerkbar. Der photochemische Smog ist demnach in den meisten Gebieten Nordeuropas kein rein kleinskaliges Phänomen.

In diesem Abschnitt steht daher die Simulation von Szenarien im Vordergrund, die sich konkret mit der Veränderung von Emissionsstrukturen des Straßenverkehrs auf der lokalen Ebene befassen. Die Auswirkung von straßenbaulichen Maßnahmen auf die Verkehrsströme sowie die Problematik des induzierten Verkehrs soll anhand der Emissionsdaten des dynamischen Verkehrsmodells untersucht werden. Dabei werden weniger Reduktionsmaßnahmen entwickelt, sondern geprüft, ob das betrachtete Planungsvorhaben für das Stadtgebiet eine Verbesserung der Luftqualität bedeutet, oder nur eine Verschiebung der Immissionsschwerpunkte bewirkt. Außerdem wird erforscht, welchen Einfluss eine geänderte Zusammensetzung des Straßenverkehrs durch einen steigenden LKW-Anteil auf die Immissionssituation im Modellgebiet hat.

Auch die Auswirkung von Veränderungen der Verkehrsemissionen außerhalb des betrachteten Modellgebietes muss aufgrund der Advektion von Schadstoffen untersucht werden. Durch das Nestingverfahren wird das lokale Modellgebiet über die Randwertvorgabe von der Emissionssituation innerhalb des übergeordneten Modells beeinflusst. Lokale Änderungen der Emissionshöhe können daher nicht immer losgelöst von der Hintergrundbelastung durch advehiierte Schadstoffe betrachtet werden. Zur Erforschung der Auswirkung



von Emissionsänderungen sind daher auch kombinierte Szenarien (siehe z.B. auch KESSLER *et al.* 1999) notwendig.

Zur Übersicht werden vorab die in den nächsten Abschnitten definierten Szenarien tabellarisch zusammengefasst (*vgl. Tabelle 4.1*). Weitere Erläuterungen sind den entsprechenden Textabschnitten zu entnehmen. Die meteorologischen Bedingungen sind in allen Szenarien unverändert zum Basislauf. Eine Variation der Eingangsdaten findet lediglich auf Seiten der Emissionen statt. Die lokalen Szenarien (*vgl. Abschnitt 3.3.2*) des dynamischen Verkehrsmodells für den Großraum der Stadt Köln (Nest 3) werden teilweise mit Emissionsänderungen auf regionaler Ebene kombiniert, um die unterschiedlichen Einflussfaktoren auf den verschiedenen Skalen zu untersuchen. Dazu werden die von der EURAD-Gruppe des RIU definierten Szenarien ‚HITRAF‘ (Erhöhung der verkehrsbedingten Emissionen um 15%) und ‚LOWTRAF‘ (Reduktion der Verkehrsemissionen um 15%) für das Gebiet von NRW (Nest 2) verwendet. Auf der lokalen Skala werden die Daten des LUA an die ZAIK-Szenarien angepasst und für das Szenario in *Abschnitt 4.5.2* dementsprechend die Emissionen des Straßenverkehrs um 15% erhöht (LUA + 15%).

Szenario	Bereich	ZAIK	LUA	EURAD
4.5.1: Brückenszenario	lokal (Nest 3)	Szenario 1 Szenario 2	Basis	Basis
4.5.2: erhöhtes Verkehrsaufkommen	lokal (Nest 3)	Szenario 3 Szenario 4	LUA + 15%	Basis
	regional (Nest 2)	Basis	Basis	HITRAF
	regional und lokal	Szenario 3 Szenario 4	LUA + 15%	HITRAF
4.5.3: Variation des LKW-Anteils der Fahrzeugflotte	lokal (Nest 3)	LKW05 LKW10 LKW15 LKW20	Basis	Basis
4.5.4: reduziertes Verkehrsaufkommen	regional (Nest 2)	Basis	Basis	LOWTRAF

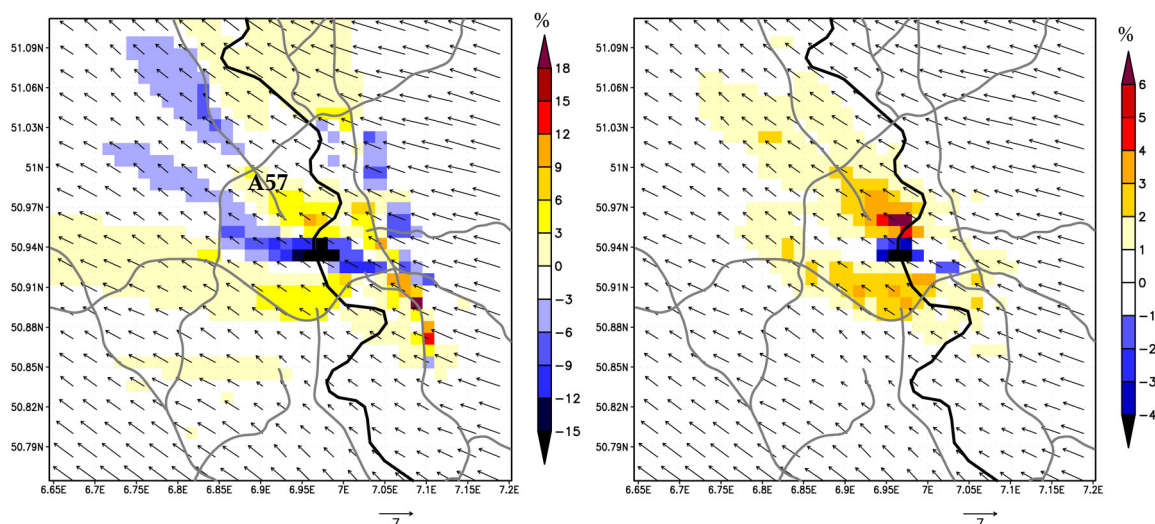
**Tabelle 4.1:** Übersicht der in dieser Arbeit präsentierten Szenariensimulationen. Zur Definition der ZAIK-Szenarien *vgl. auch Abschnitt 3.3.2*.

### 4.5.1 Brückenszenario (lokal)

Die ersten beiden Szenarien befassen sich wie in *Abschnitt 3.3.2* dargelegt mit den Auswirkungen von Verkehrslenkungsmaßnahmen innerhalb des Stadtgebietes von Köln. In Szenario 2 werden die beiden stark frequentierten Rheinbrücken in der Kölner Innenstadt für den Verkehr gesperrt. In Szenario 1 wird zudem eine Temporeduktion für alle Nicht-Autobahnen um 20 km/h vorgenommen. Die emissionsseitige Auswirkung dieser Szenario-

rien wurde bereits in *Kapitel 3* beschrieben (siehe auch *Abbildung 3.14* und *3.15*). Beide Szenarien beziehen sich auf den Wochentag Montag. Mittels einer Episodensimulation soll untersucht werden, wie sich diese lokalen Änderungen auf die Bildung sekundärer Schadstoffe auswirken.

Bei den primär emittierten Schadstoffen zeigt sich erwartungsgemäß zu den Hauptverkehrszeiten die größte Abweichung zwischen dem Basisszenario und den Szenariensimulationen. In *Abbildung 4.29* tritt der durch die Brückensperrung entlastete Innenstadtbereich in unmittelbarer Rheinnähe deutlich hervor. Doch entlang der Ausweichrouten, insbesondere am Autobahnring im Süden und im nördlichen Teil der Innenstadt sowie der A57, ist die Belastung durch den zusätzlichen KFZ-Verkehr größer als die Entlastung andernorts. Infolge der Brückensperrung findet also nicht nur eine reine Verlagerung der Immissions-schwerpunkte statt, sondern es kommt aufgrund der notwendig gewordenen Umwege insgesamt zu einer zusätzlichen Belastung durch verkehrsbedingte Emissionen.

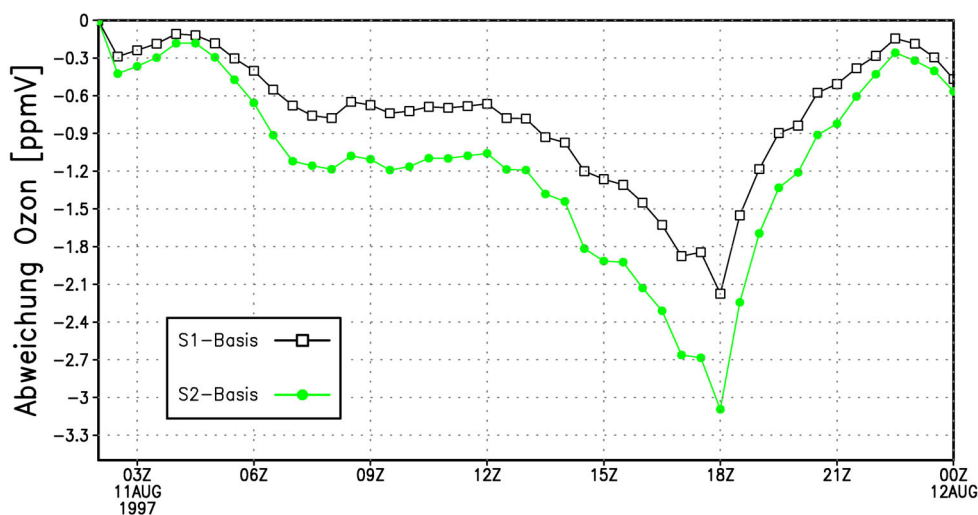


**Abbildung 4.29:** Relative Abweichung [%] von Szenario 1 zum Basisszenario (Montag) für NO (links) und NMVOC (rechts) für den 11.08.1997 um 5:30 UTC.

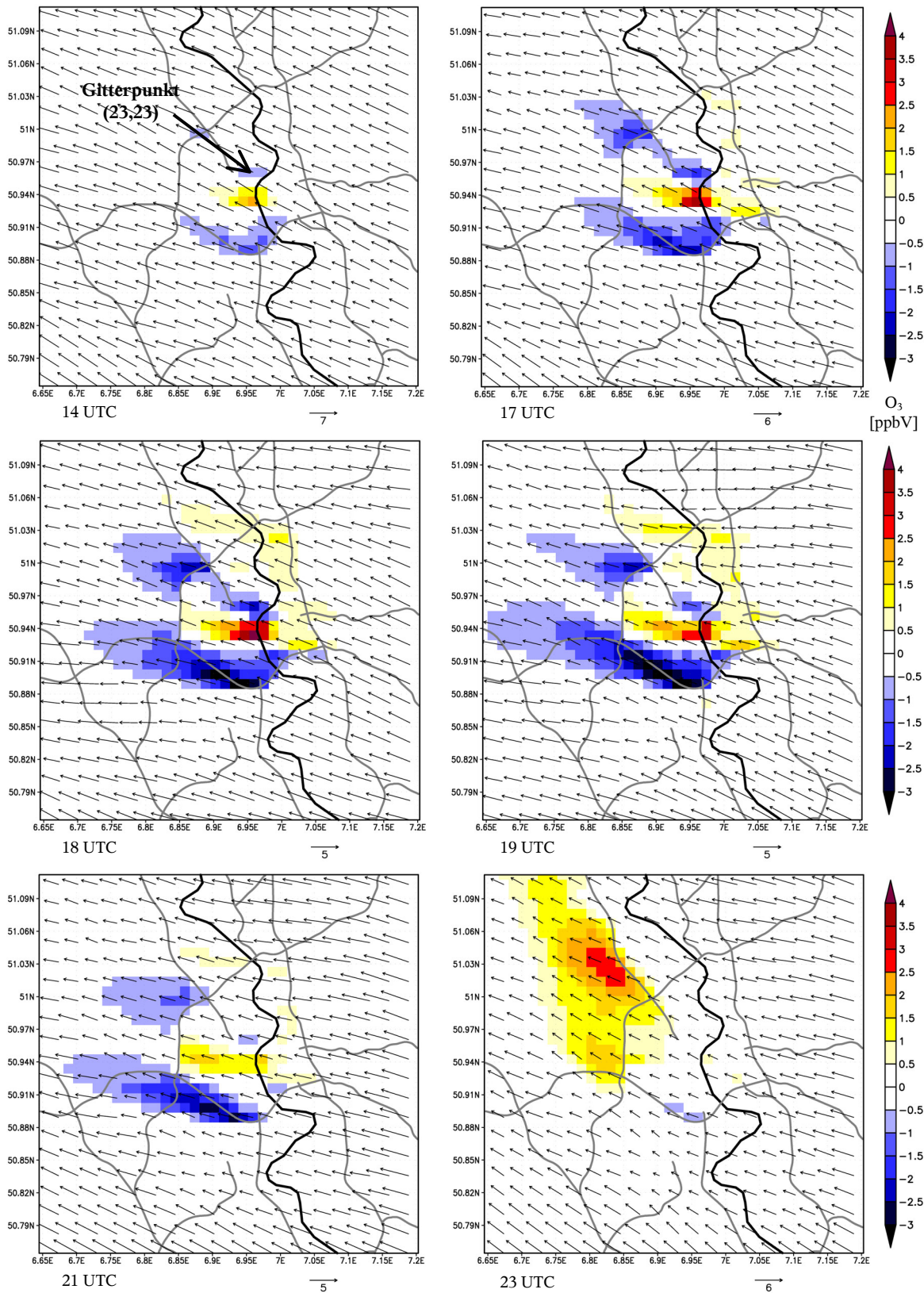
Die Abweichungen zwischen Szenario 1 und Szenario 2 sind insbesondere bei den sekundär gebildeten Schadstoffen nur gering. Die auffällige Erhöhung der Kohlenwasserstoffe durch die zusätzliche Temporeduktion in Szenario 1 macht sich durch die VOC-Limitierung der Luftmasse bei der Ozonbildung kaum bemerkbar. Die Auswirkung zeigt sich hauptsächlich im nördlichen Stadtgebiet sowie im Süden entlang der Autobahn und stromab davon tagsüber anhand von etwas höheren Ozonwerten im Vergleich zum Szenario 2. Die maximale Abweichung der Ozonkonzentration findet sich dementsprechend im

Bereich des Gitterpunktes (23,23) mit den Koordinaten  $6.96^\circ$  Ost und  $50.96^\circ$  Nord innerhalb der Kölner Innenstadt (siehe *Abbildung 4.30*).

Während bis zum Mittag die Unterschiede zwischen den beiden Szenarienläufen und dem Basisszenario bei den sekundären Schadstoffen eher gering und auf einen kleinen Bereich beschränkt sind, nehmen sie nach Sonnenhöchststand deutlich zu. *Abbildung 4.31* zeigt die Differenz der simulierten Ozonkonzentration zwischen Szenario 1 und dem Basisszenario für einige ausgewählte Zeitpunkte. Im zeitlichen Verlauf ist deutlich der verstärkte Ozonabbau entlang der Ausweichrouten zu erkennen. Der Einfluss des zusätzlichen Straßenverkehrs bleibt jedoch nicht nur auf den Nahbereich beschränkt sondern er breitet sich mit der Strömung in westlicher Richtung aus. Die prozentualen Abweichungen betragen bei Ozon bis zu  $-27\%$  bzw.  $+54\%$ , wobei diese Höchstwerte nur bei niedrigen Mischungsverhältnissen erreicht werden, wie sie z.B. gegen 23 UTC vorherrschen. An diesem Zeitpunkt zeigt sich eine auffällige Fahne erhöhter Ozonwerte, die sich innerhalb der nächsten Stunde abschwächt und nordwestlich aus dem Modellgebiet heraustransportiert wird. Sie ist die Folge des Ausbleibens zusätzlicher  $\text{NO}_x$ -Emissionen im Innenstadtbereich durch die Brückensperrung. Dadurch steht der Luftmasse im Szenarienfall weniger  $\text{NO}$  zum Ozonabbau zur Verfügung, so dass die Ozonwerte stromab der Innenstadt höher sind als im Basisszenario. Dieses Luftvolumen wird entsprechend der vorherrschenden Strömung weiter transportiert, wobei es außerhalb des Stadtgebietes noch einige Zeit seine charakteristischen Eigenschaften bewahrt und somit auch entfernte Bereiche beeinflusst.



**Abbildung 4.30:** Verlauf der Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses für den 11.08.1997 für Szenario 1 (S1) bzw. Szenario 2 (S2) – Basisszenario für den Gitterpunkt (23,23); zur Lage des Gitterpunktes siehe *Abbildung 4.31*.



**Abbildung 4.31:** Zeitlicher Verlauf des Horizontalwindes sowie der Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses [ppbV] (Szenario 1 – Basisszenario) in der untersten Modellschicht; in der zeitlichen Reihenfolge von links oben nach rechts unten um 14, 17, 18, 19, 21 und 23 UTC.

### 4.5.2 Erhöhtes Verkehrsaufkommen (regional und lokal) sowie Ausbau des Kölner Autobahnringes

In diesem Szenario wird die Auswirkung einer Erhöhung des Verkehrsaufkommens bzw. der verkehrsbedingten Emissionen sowohl auf lokaler als auch auf regionaler Ebene auf das chemische Regime innerhalb des Modellgebietes untersucht. Dabei wird neben der lokalen Erhöhung des Verkehrsaufkommens um 15% innerhalb des Stadtgebietes von Köln (Szenario 3 und 4 des ZAIK-Verkehrsmodells, vgl. *Abschnitt 3.3.2*) in der Umgebung der Stadt eine Zunahme des Straßenverkehrs durch eine Erhöhung der verkehrsbedingten Emissionen (LUA-Datensatz) um 15% simuliert. Diese Annahme ist in Ermangelung geeigneter Daten als erste Näherung zu verstehen, denn die Ergebnisse des dynamischen Modells zeigen, dass eine Erhöhung des Verkehrsaufkommens um 15% nicht gleichbedeutend ist mit einem Anstieg der entsprechenden Emissionen um denselben Betrag (vgl. *Abbildung 3.14*). Zusätzlich werden auf regionaler Ebene innerhalb von NRW (Nest 2 des übergeordneten Modells) die verkehrsbedingten Emissionen ebenfalls um 15% erhöht. Mittels Episodensimulationen soll nun untersucht werden, wie sich die verschiedenen Szenarien auf die Bildung sekundärer Schadstoffe innerhalb des Modellgebietes auswirken.

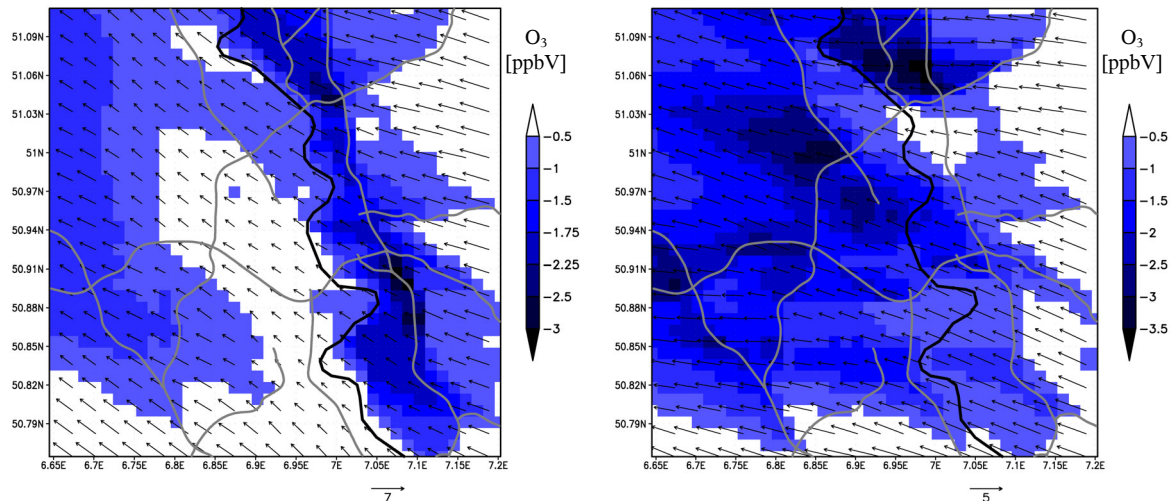
Fall 1	Basisszenario	ZAIK- und LUA-Verkehrsemissionen für Montag bzw. Dienstag
Fall 2	Nest 3 +15%	ZAIK-Szenario 3 bzw. 4 und Erhöhung der LUA-Emissionen um 15%
Fall 3	Nest 2 +15%	Erhöhung der Verkehrsemissionen im übergeordneten Modell um 15%
Fall 4	+15%	Erhöhung der Verkehrsemissionen in Nest 2 und 3 um 15% (Fall 2+3)

**Table 4.2:** Betrachtete Szenarien für die Episode 2 (im Fall 2 und 4 nur Montag 11.08.1997). Für Fall 3 und 4 wurde das eingangs beschriebene EURAD-Szenario ‚HITRAF‘ verwendet.

Eine Erhöhung der Verkehrsemissionen ausschließlich innerhalb von Nest 3 (Fall 2) bewirkt im Mittel über das gesamte Modellgebiet tagsüber nur eine minimale Abweichung der maximalen Ozonkonzentration ( $< -1\%$ ). Größere prozentuale Abweichungen (bis  $-8\%$ ) treten nur bei sehr niedrigen Ozonkonzentrationen morgens oder abends auf. Im Tagesverlauf zeigt sich zu diesen Zeiten besonders entlang der Autobahnen bzw. etwas stromab davon der Einfluss der erhöhten NO-Emissionen durch den zusätzlichen Verkehr anhand negativer Abweichungen des Ozonmischungsverhältnisses um bis zu 4 ppbV (siehe *Abbildung 4.32*). In dem vorherrschenden chemischen Regime führt demnach die lokale Erhöhung der verkehrsbedingten Emissionen (NO, CO und HC) unmittelbar innerhalb des Modellgebietes an diesem Tag nicht zu einer verstärkten Ozonbildung. Da CARLOS keine ‚two-way‘-Nestingmöglichkeit beinhaltet kann nicht ohne Weiteres überprüft werden, ob

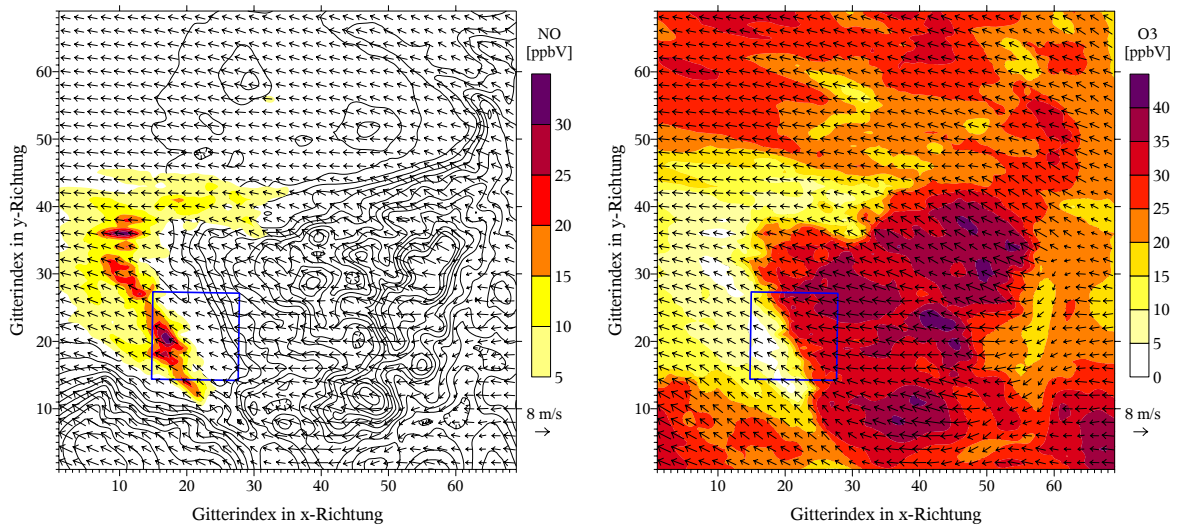


die erhöhten Emissionen weiter stromab im Nest 2 einen gegenteiligen Effekt bewirken. Im Folgenden wird daher untersucht, wie sich im umgekehrten Fall eine Erhöhung der verkehrsbedingten Emissionen stromauf auf das chemische Regime des lokalen Modellgebiets auswirkt.

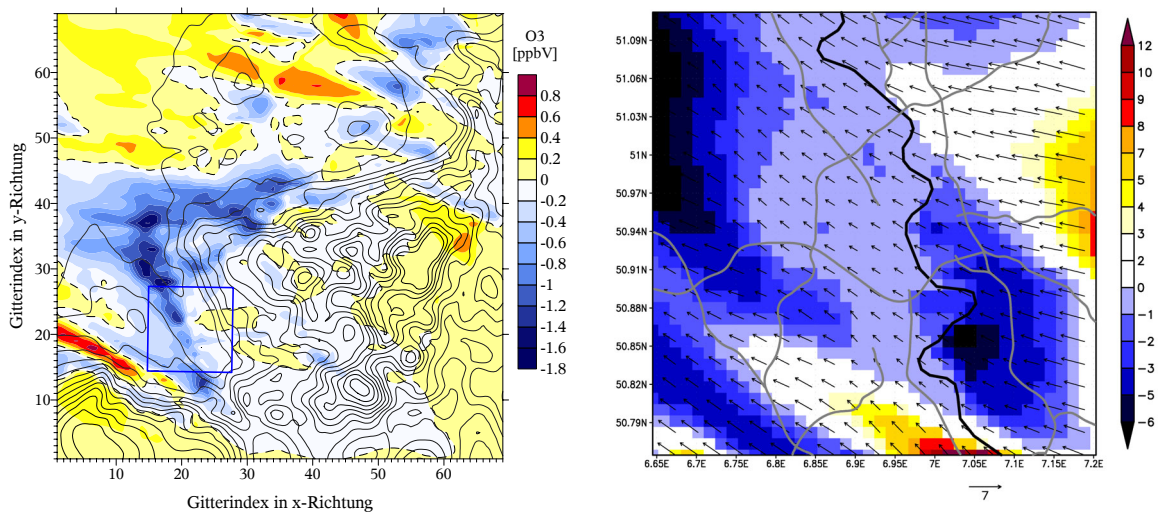


**Abbildung 4.32:** Horizontalwind und Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses (Fall 2 mit Szenario 4 - Basisszenario) in der untersten Modellschicht um 5:30 UTC (links) und 18:30 UTC (rechts) für den 11.08.1997.

In Fall 3 wurden die verkehrsbedingten Emissionen in ganz NRW um 15% erhöht (EURAD-Szenario ‚HITRAF‘ für Nest 2), während im lokalen Modellgebiet (Nest 3) dieselben Emissionsbedingungen vorherrschen wie beim Basislauf (Fall 1). Durch die Randwerte des übergeordneten Modells werden von außen die erhöhten Emissionswerte an das lokale Modellgebiet weitergegeben. Entsprechend der Strömungssituation erreichen Luftmassen aus dem Raum Bonn sowie Troisdorf und Siegburg im Laufe der Zeit das Gebiet der Stadt Köln. Den Eintrag der Luftmassen in das lokale Modellgebiet sowie den Effekt frischer NO-Emissionen auf die Ozonkonzentration veranschaulicht *Abbildung 4.33*. Das zur Hauptverkehrszeit (7h Ortszeit) hauptsächlich im Rhein-Ruhr-Bereich emittierte NO führt dort zu deutlich verminderten Ozonwerten im Vergleich zu den restlichen Gebieten in NRW. In der zu dieser Zeit noch niedrigen Grenzschicht werden die emittierten Schadstoffe noch nicht effektiv durchmischt, so dass der Anstieg des Straßenverkehrs in der NO-Konzentration morgens besonders deutlich sichtbar wird. Dementsprechend werden in den östlichen Teil des lokalen Modellgebietes bereits mit Ozon vorbelastete Luftmassen hintransportiert, während der westliche Teil durch primär emittierte Schadstoffe geprägt wird.



**Abbildung 4.33:** Horizontalwind in der untersten Modellschicht und Mischungsverhältnis von NO (links, mit unterlegter Modellorographie) bzw. Ozon (rechts) des CTM2-Laufs 'HITRAF' mit erhöhten Verkehrsemissionen für das Modellgebiet Nest 2 am 11.08.1997 um 5 UTC. Das Quadrat markiert das lokale Modellgebiet (Nest 3).



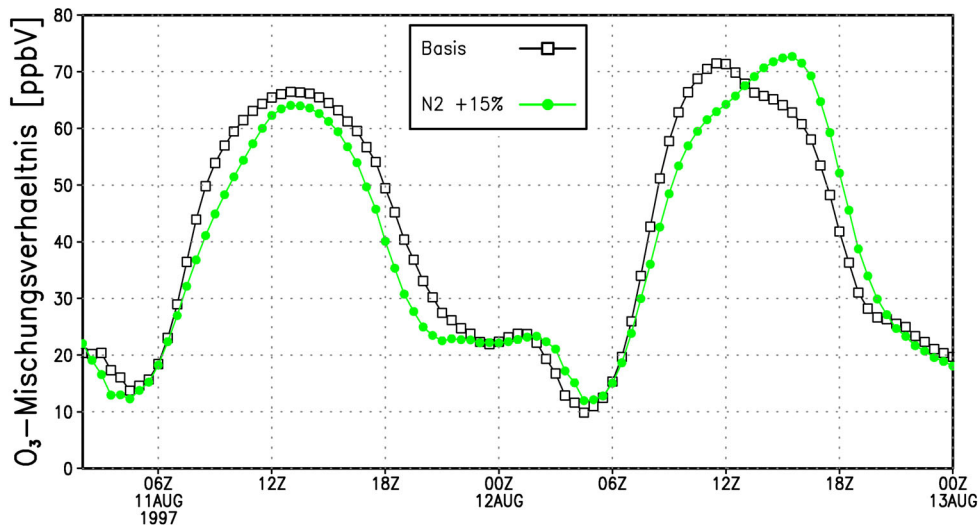
**Abbildung 4.34:** Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses Fall 3 – Basisszenario in der jeweils untersten Modellschicht für den 11.08.1997 um 5 UTC. Links für das Gebiet Nest 2 (CTM2-Simulation, mit unterlegter Orographie) und rechts für das Gebiet Nest 3 (CTM2F-Simulation, mit Darstellung des Horizontalwindes).

Durch den verstärkten Eintrag verkehrsbedingter Emissionen (insbesondere NO) wird im Szenarienlauf morgens der Abbau von Ozon entlang der Verkehrsschwerpunkte begünstigt. Im Fall 3 finden sich daher um 5 UTC in diesem Bereich etwas niedrigere Ozonmischungsverhältnisse im Vergleich zum Basislauf (siehe Abbildung 4.34, links). Dieser Effekt wird von dem lokalen Modell für das Gebiet Nest 3 verstärkt wiedergegeben (siehe Abbildung 4.34, rechts). Am östlichen und südlichen Modellrand von Nest 3 ist deutlich

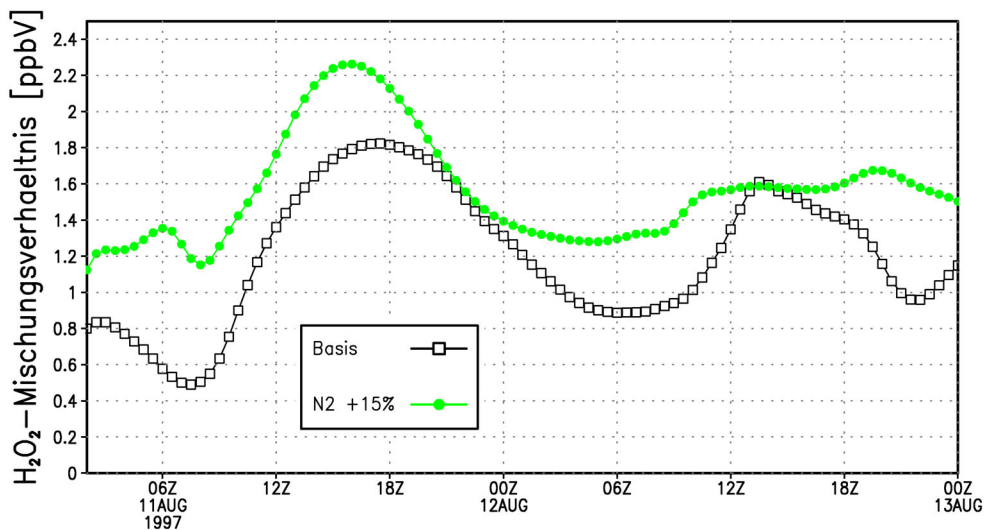
die Aufprägung erhöhter Ozonkonzentrationen durch das übergeordnete Modell zu erkennen. Zu Beginn des Modelllaufs findet eine dreidimensionale Initialisierung der chemischen Spezies im genesteten Modellgebiet durch das übergeordnete Modell statt. Im Verlauf der Simulation werden jedoch nur am Einströmrand die Konzentrationen innerhalb des Nestinggebietes durch das regionale Modell beeinflusst. Tagsüber führt das höhere Emissionsniveau in der CTM2-Simulation stromab in einiger Entfernung zu den Quellregionen zu einem Anstieg der Ozonkonzentration um meist bis zu 4 ppbV. Die maximale positive Abweichung der Szenariensimulation findet sich mit ca. 15 ppbV am Niederrhein nahe der niederländischen Grenze um 16 UTC am 12.08.1997.

Im zeitlichen Verlauf hat die Erhöhung der Verkehrsemissionen in Nest 2 eine sehr unterschiedliche Auswirkung auf die Konzentrationsverteilung der sekundären Schadstoffe innerhalb des lokalen Modellgebietes. Am ersten Tag der betrachteten Episode ergibt der Basislauf im Mittel tagsüber höhere bodennahe Ozonkonzentrationen. Im Laufe des zweiten Tages liefert der Szenarienlauf nachmittags höhere Werte, wobei die Maximalkonzentration zu einem wesentlich späteren Zeitpunkt erreicht wird als im Basislauf (*vgl. Abbildung 4.35*). Die höchste Effektivität der Ozonproduktion wird im Szenario also zeitversetzt erreicht. Innerhalb der Episode ist das chemische Regime der Luftmasse durch die veränderte Emissionslage weiter stromauf offenbar modifiziert. Im Vergleich zum Basislauf enthält die Luftmasse im Szenario mehr Wasserstoffperoxid, im photochemischen Smog ein Konkurrenzprodukt von Ozon. Insbesondere am ersten Tag wird im Szenarienlauf verstärkt  $\text{H}_2\text{O}_2$  gebildet, was eher typisch ist für ländliche,  $\text{NO}_x$ -limitierte Luftmassen (*vgl. Abbildung 4.36*). In der Simulation für den 12.08.1997 überwiegt nachmittags dagegen die Ozonproduktion. Durch die Variation der Randbedingungen, die das antreibende Modell CTM2 vorgibt, ändern sich jedoch nicht nur die bodennahen Verhältnisse im Nest 3. Es ist auch aufgrund der Durchmischung der Schadstoffe während des Transportprozesses eine wesentlich mächtigere Schicht betroffen (*vgl. Abbildung 4.37*). Für diese Änderungen innerhalb der Grenzschicht sind auch die vorausgegangenen Simulationen (Episoden 0 - 1) mitverantwortlich. Während sich die Erhöhung der Emissionen bei den primären Schadstoffen wie NO und NMVOC eher in den untersten Modellschichten bemerkbar macht, werden einige sekundär gebildete Stoffe mit längerer Lebensdauer wie z.B. PAN oder  $\text{H}_2\text{O}_2$  innerhalb der Grenzschicht (bis ca. 2000 m) verteilt und können weitere Strecken zurücklegen (*vgl. Abbildung 4.37*). Das auf einem weiten Gebiet erhöhte Verkehrsaufkommen bewirkt daher eine durchgreifendere Änderung der Schadstoffkonzentrationen, als es die lokale Änderung der Emissionen unmittelbar innerhalb des Modellgebietes vermag.





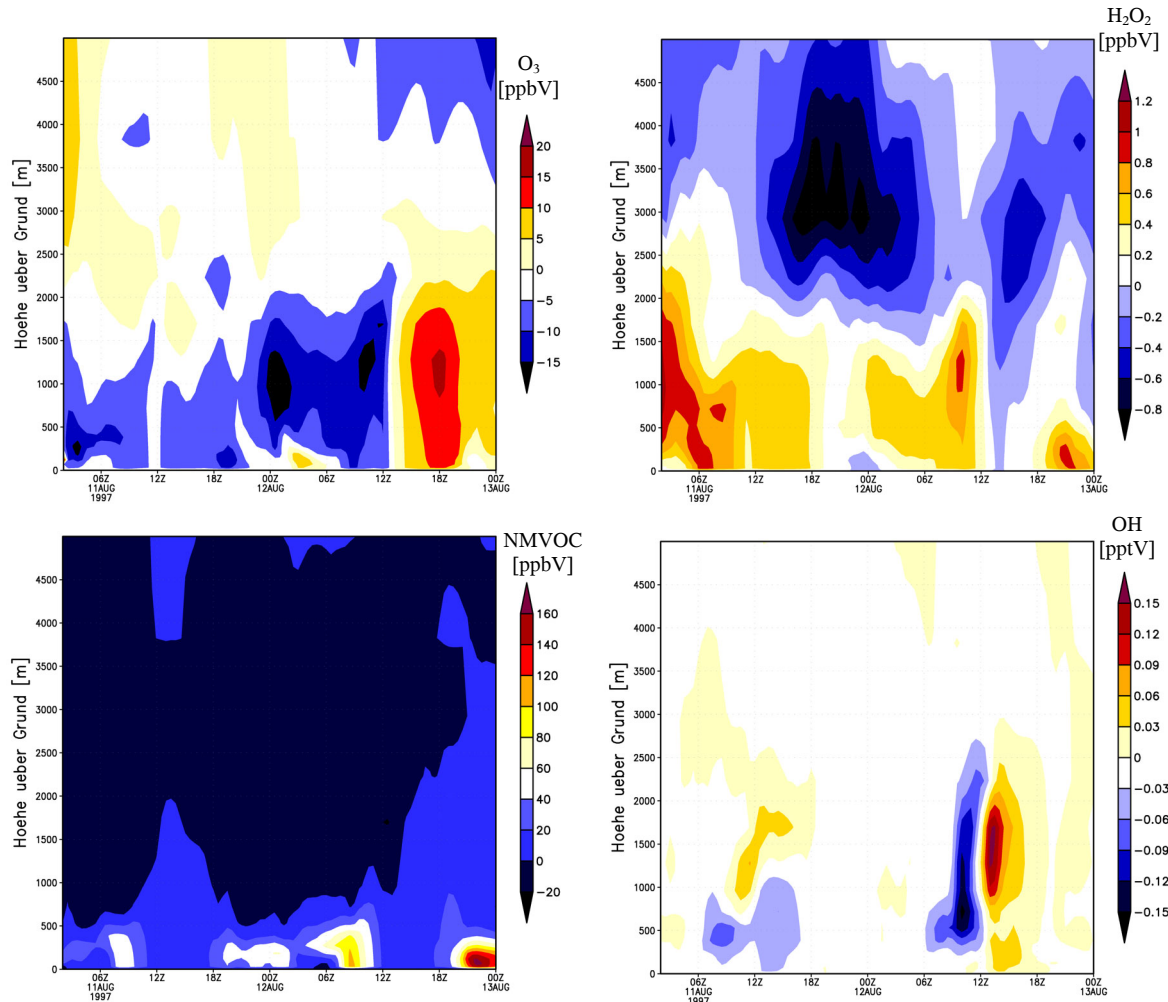
**Abbildung 4.35:** Flächenmittel des Ozonmischungsverhältnisses [ppbV] in der untersten Modellschicht im Nest 3 während der Episode 2 für den Basislauf und den Fall 3.



**Abbildung 4.36:** Flächenmittel des Mischungsverhältnisses von H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> [ppbV] in der untersten Modellschicht im Nest 3 während der Episode 2 für den Basislauf und den Fall 3.

Bei der kombinierten Erhöhung der Verkehrsemissionen in Gebiet N2 (NRW) und N3 (Großraum Köln) zeigt der Fall 4 (mit ZAIK-Szenario 4) im Vergleich zum Fall 2 zur Hauptverkehrszeit insbesondere am Nachmittag im Leebereich der Autobahnen und der Innenstadt um bis zu 4 ppbV niedrigere Ozonwerte. Dies entspricht in etwa der Abweichung, die sich bei der ausschließlich lokalen Änderung der Verkehrsemissionen (Fall 2 mit Szenario 4) ergibt. Der Ferntransport der Schadstoffe und das dadurch beeinflusste chemische Regime ist für die Bildung sekundärer Schadstoffe in diesem Fall ausschlaggebend, wobei diesem kleinskalige Effekte durch lokale Emissionen überlagert sind. Insgesamt

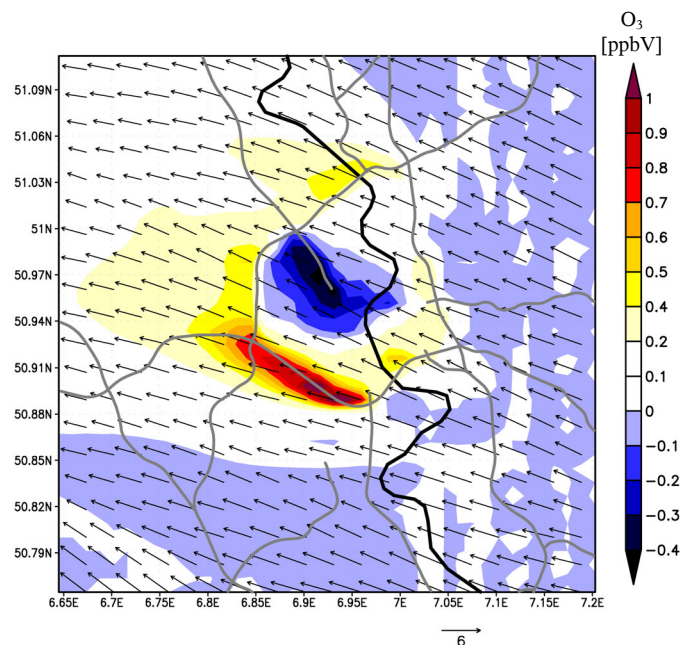
samt beträgt der Unterschied der simulierten Ozonmischungsverhältnisse (Basisszenario – Fall 4) beispielsweise an der Station Chorweiler tagsüber zwischen 5 und 13 ppbV.



**Abbildung 4.37:** Zeit-Höhen-Verlauf der Abweichung der Mischungsverhältnisse (Fall 3 – Basisszenario) im Nest 3 während des Zeitraums der Episode 2 von Ozon (links oben), H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, (rechts oben), NMVOC (links unten) und OH (abweichend in [pptV], rechts unten) am Gitterpunkt der Station Chorweiler. Am zweiten Tag ist in den Abbildungen deutlich der Wechsel zwischen der bevorzugten Bildung von H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> zu Ozon erkennbar. Dementsprechend ist am Nachmittag des 12.08.1997 die OH-Konzentration erhöht.

Dagegen sind die Abweichungen, die sich durch die Verwendung der unterschiedlichen ZAIK-Szenarien im Fall 4 ergeben, eher gering. Ohne Ausbau des Autobahnringes (Szenario 3) zeigen sich zu den Hauptverkehrszeiten entlang der Autobahnen höhere Ozonwerte als im Szenario 4. Die maximale Abweichung beträgt gegen 18 UTC 1,5 ppbV im Bereich zwischen den Autobahnkreuzen Köln West und Köln Süd. Durch den Autobahnausbau (Szenario 4) gewinnt dieser Verkehrsweg für die Fahrer des ZAIK-Simulationsmodells an Attraktivität (vgl. auch Abbildung 3.16). Die Umverteilung der Verkehrsströme ist deutlich

an der Abweichung der Ozonkonzentration zur nachmittäglichen Hauptverkehrszeit erkennbar (vgl. *Abbildung 4.38*), die sehr gut die Unterschiede in dem primär emittierten Stickoxid mit umgekehrten Vorzeichen widerspiegelt. Insbesondere der südwestliche Teil des Autobahnringes wird in Szenario 4 stärker von den Fahrern genutzt, wodurch dort der Ozonabbau intensiviert wird. Der Innenstadtbereich und die A57 dagegen verlieren an Attraktivität. Im Verkehrsmodell wird der Umweg über eine staufreie Autobahn bevorzugt, wenn er gegenüber der früheren Strecke eine Verkürzung der Reisezeit bedingt. Dadurch kommt es nicht zu der erwarteten Absenkung der Emissionen. Aufgrund des geschwindigkeitsabhängigen Verlaufs der Emissionsfaktoren hätte aufgrund des fehlenden ‚stop-and-go‘-Verkehrs insbesondere der Ausstoß an HC und CO vermindert werden sollen (vgl. *Abbildung 2.4*). Der Ausbau der Verkehrswege erscheint vor diesem Hintergrund zur Absenkung der Immissionsbelastung nicht als das Mittel der Wahl. Dennoch wird er von vielen Lokalpolitikern mit der Berufung auf positive umweltpolitische Aspekte eingefordert.



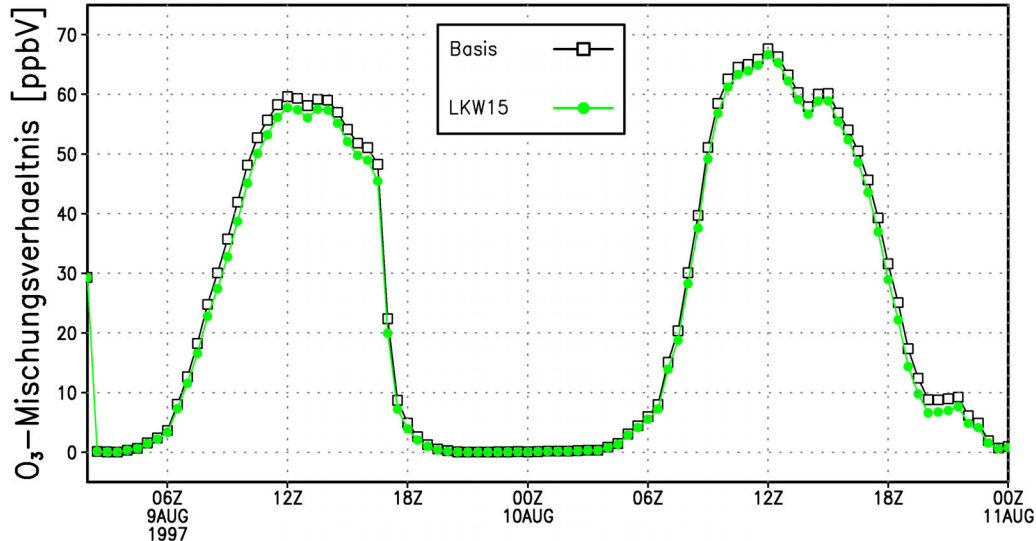
**Abbildung 4.38:** Horizontalwind und Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses [ppbV] in der untersten Modellschicht (Fall 4: Szenario 3 – Szenario 4) um 17 UTC für den 11.08.1997.

### 4.5.3 Variation der Zusammensetzung der Fahrzeugflotte (lokal)

In diesem Abschnitt wird im Gegensatz zu den obigen Untersuchungen nicht die räumliche Struktur oder unmittelbar die Höhe der Emissionen verändert, sondern ihre Zusammensetzung wird durch die Variation der Fahrzeugflotte modifiziert. Dieses Szenario basiert bzgl. der Variation des LKW-Anteils auf den Simulationen des dynamischen Verkehrsmodells

des ZAIK, und die Veränderungen der Emissionen beschränken sich demzufolge auf das Stadtgebiet von Köln (vgl. Kapitel 3.3). Die durchgeführten Simulationen sollen u.a. einen Beitrag zur Klärung der Frage liefern, ob die Abweichung der prognostizierten Ozonmaximumkonzentrationen im Fall vom 09.08.1997 zum Teil auf Emissionsdaten zurückzuführen ist, die nicht repräsentativ für die Verkehrszusammensetzung am Wochenende sind.

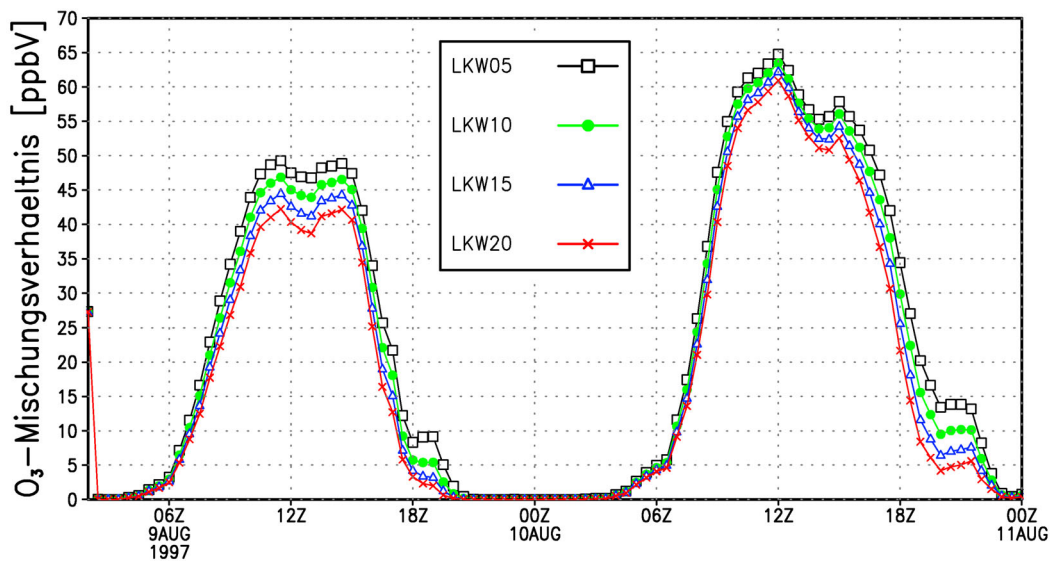
Für das Wochenende innerhalb des Untersuchungszeitraums (Episode 1, 09.-10.08.1997) wurden daher vier weitere Szenariensimulationen mit variierendem LKW-Anteil der Fahrzeugflotte durchgeführt (vgl. auch Tabelle 3.6). Ausgehend von 5% wurde der Anteil bis auf 20% angehoben. Wochentags liegt der LKW-Anteil im Bereich der Stadt Köln etwa bei 15%, so dass dieser Wert als Referenz zum Basiszenario dient. Die Simulation mit den Emissionsdaten des Szenarios LKW15 unterscheidet sich jedoch etwas von dem Basislauf, da hierfür vom ZAIK andere Emissionsfaktoren zugrunde gelegt wurden. Das Basiszenario liefert innerhalb des Stadtgebietes höhere Ozonmischungsverhältnisse (bis zu 4 ppbV), doch der Tagesverlauf ist vergleichbar (siehe Abbildung 4.39). Die Abweichungen zwischen den beiden Simulationen sind in diesem Fall jedoch unerheblich, da lediglich die relativen Veränderungen der einzelnen Szenarienläufe untereinander betrachtet werden.



**Abbildung 4.39:** Verlauf des Ozonmischungsverhältnisses während der Episode 1 in der untersten Modellschicht am Gitterpunkt (23,23) in der Innenstadt von Köln (vgl. auch Abbildung 4.31) für des Basislauf und das Szenario mit einem LKW-Anteil von 15% (LKW15).

Die Szenarien zeigen besonders am ersten Tag einen deutlichen Anstieg der Ozonkonzentration mit sinkendem LKW-Anteil (siehe Abbildung 4.40). Bezüglich der beobachteten Variation scheint fast ein linearer Zusammenhang zwischen den Ozonwerten und der Flot-

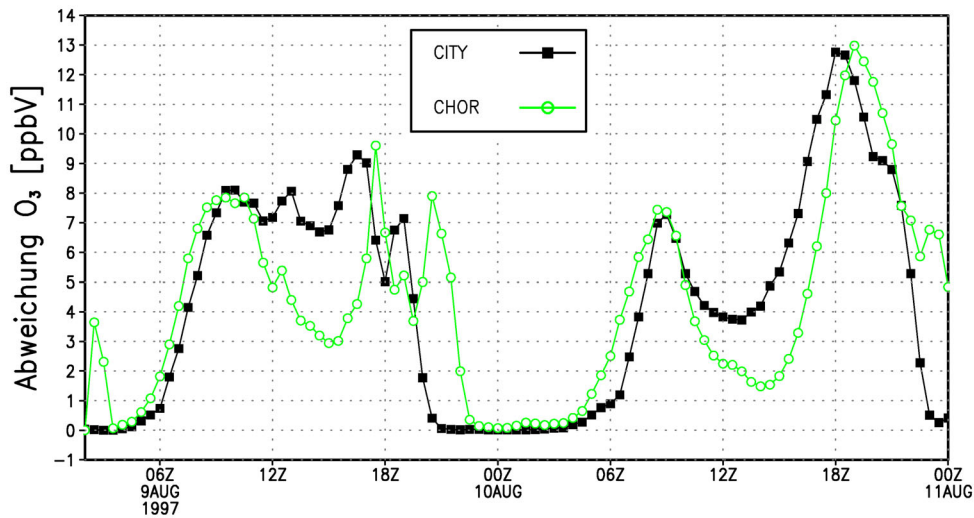
tenzusammensetzung zu bestehen. Dies ist hauptsächlich auf die Reduktion der  $\text{NO}_x$ -Emissionen aufgrund des sinkenden LKW-Anteil zurückzuführen, wodurch lokal weniger Ozon abgebaut wird. Aber auch die damit zusammenhängende Erhöhung des Verhältnisses  $\text{NMVOC}/\text{NO}_x$  begünstigt die Ozonbildung. Die veränderte Zusammensetzung der Emissionen führt außerdem zu einem früheren Einsetzen der Nettoproduktion und insgesamt wirkt der Ozonverlauf etwas breiter.



**Abbildung 4.40:** Verlauf des Ozonmischungsverhältnisses während der Episode 1 in der untersten Modellschicht am Gitterpunkt CITY (23,20) in der Innenstadt von Köln für die vier Szenarien mit unterschiedlichem LKW-Anteil.

Besonders deutlich zeigt sich der Unterschied zwischen den Szenarien LKW05 und LKW20 in der Innenstadt am Gitterpunkt (23,20) mit den Koordinaten  $6.96^\circ$  Ost und  $50.94^\circ$  Nord (vgl. *Abbildung 4.41*). Insbesondere am ersten Tag ist die Ozonkonzentration in diesem Bereich tagsüber durchgehend um 7-8 ppbV erhöht. Doch auch an der etwas außerhalb gelegenen Station Chorweiler finden sich im Lee der Stadt tagsüber erhöhte Ozonwerte. Die erzielte positive Abweichung der Ozonkonzentration reicht jedoch nicht aus, um die Diskrepanz von über 20 ppbV zwischen simulierten und gemessenen Werten im Basisfall nennenswert zu verbessern. Wie bereits in *Abschnitt 4.5.2* zeigt sich auch hier, dass der Einfluss der lokalen Verkehrsemissionen innerhalb des Modellgebietes zwar erheblich ist, die Immissionssituation aber durch den großräumigen Transport der Schadstoffe ebenfalls geprägt wird. Eine eingehendere Betrachtung des Phänomens auf regionaler Skala auch im Hinblick auf die verwendeten Emissionsdaten ist daher unerlässlich.





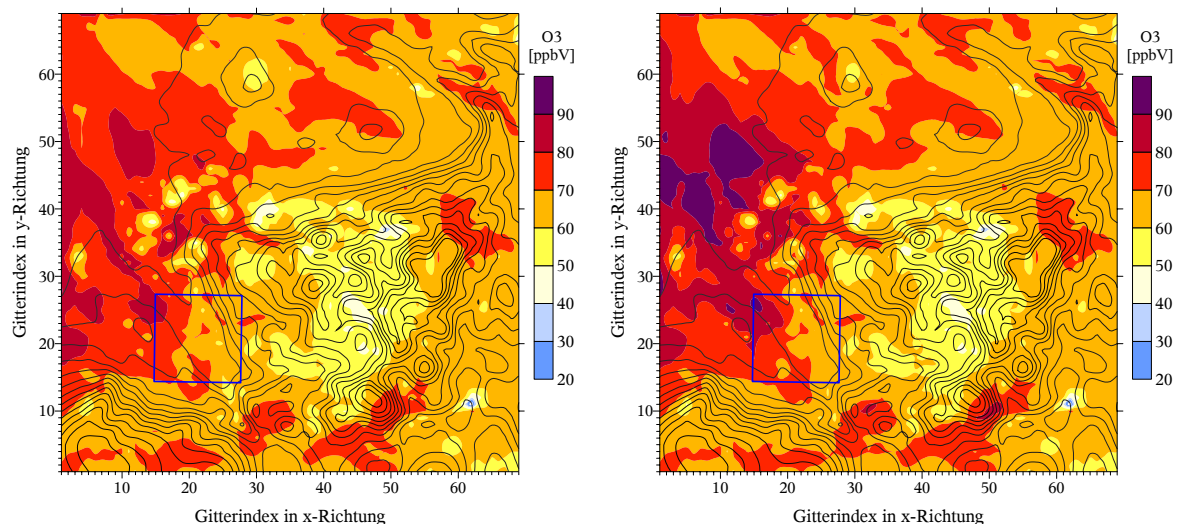
**Abbildung 4.41:** Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses (LKW05 – LKW20) im Verlauf der Episode 1 für den Gitterpunkt CITY (23,20) und Chorweiler (18,30).

#### 4.5.4 Reduziertes Verkehrsaufkommen (regional)

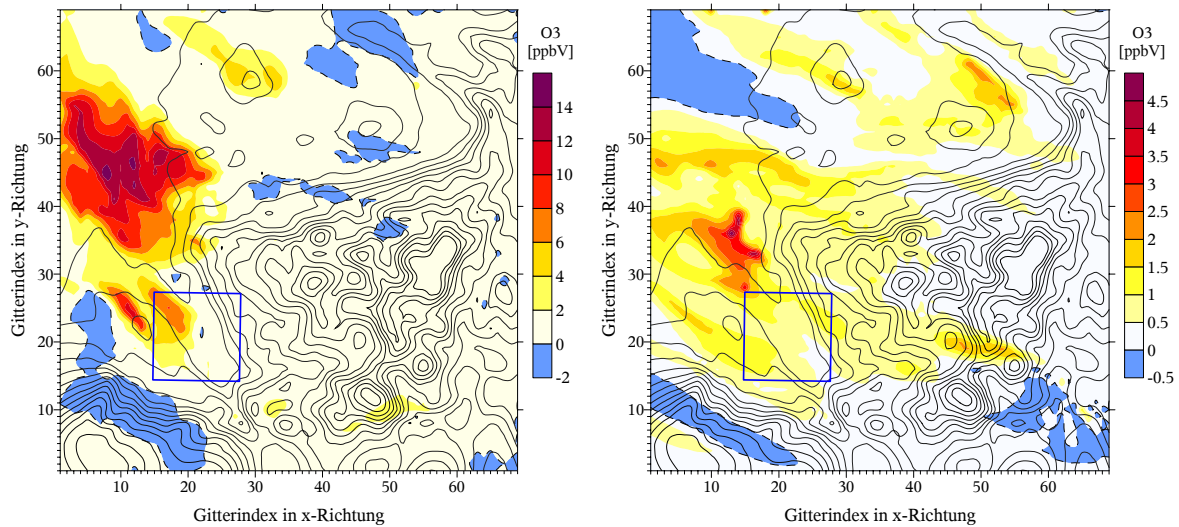
Allein durch die Berücksichtigung der lokalen Veränderung des Verkehrsaufkommens und seiner Zusammensetzung sind die auffälligen Unterschiede zwischen den simulierten und gemessenen Ozonwerten am 09.09.1997 für die lokale Skala nicht zu beheben. Dies war auch nicht zu erwarten, denn eine negative Abweichung zeigt sich bereits in den übergeordneten Modellsimulationen („coarse grid“ bis Nest 2) und geht einher mit einer deutlichen Überschätzung der  $\text{NO}_x$ -Konzentration. Die Tatsache, dass es sich bei diesem Tag um einen Samstag handelt, wirft die Frage nach einem Wochengang der Ozonkonzentration auf, wie sie sich in *Abbildung 4.7* andeutet. Mehrere Studien, die sich mit der Ergründung systematischer Unterschiede zwischen den gemessenen Ozonkonzentrationen an Werktagen und Wochenenden in den Sommermonaten befassen, ergeben je nach Untersuchungsgebiet keine eindeutigen Ergebnisse. PONT & FONTAN (2001) fanden für einige Großstädte in Frankreich keine signifikanten Abweichungen, wohingegen sich bei BRÖNNIMANN & NEU (1997) für die Schweiz unter bestimmten meteorologischen Bedingungen am Wochenende höhere Ozonwerte zeigten. PRYOR & STEYN (1995) weisen für ein Gebiet in Kanada einen deutlichen Wochengang der Ozonkonzentration mit einer signifikanten Erhöhung am Wochenende nach. Als Ursache für die höheren Ozonwerte an den Wochenenden (vergleichbare meteorologische Bedingungen vorausgesetzt) wird die Reduktion der primären Schadstoffe und insbesondere NO angesehen. In der durch Ferntransport weiterhin belasteten Atmosphäre findet verstärkt eine Nettoproduktion statt, da aufgrund des

verminderten Titrationseffektes lokal weniger Ozon abgebaut werden kann. Insbesondere das verminderte Verkehrsaufkommen an diesen Tagen hat großen Anteil an der Reduktion dieser ambivalenten Vorläufersubstanz. Die Nichtlinearität der ozonbildenden Prozesse ist daher ein Hauptproblem bei der Suche nach geeigneten Minderungsstrategien, die auf allen betrachteten Skalen die gewünschte Wirksamkeit besitzen.

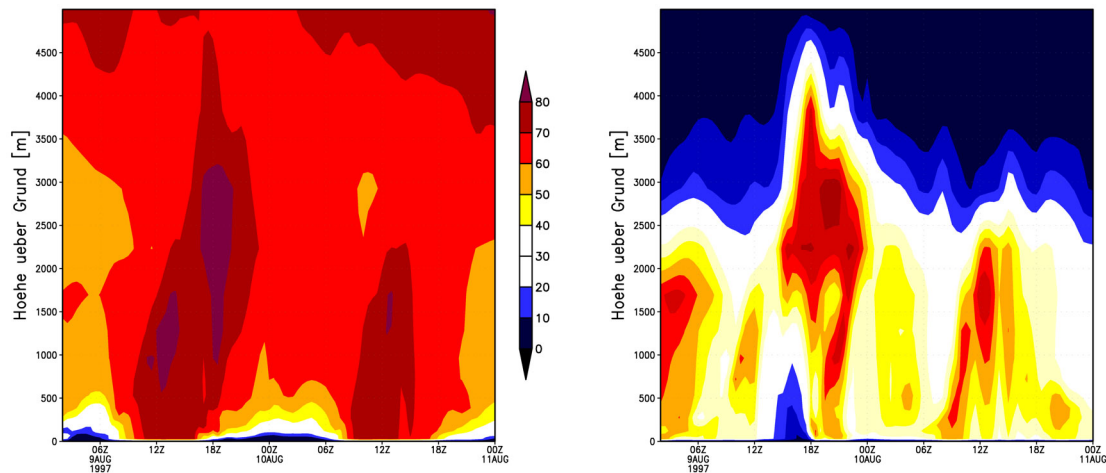
Zur Untersuchung des Effekts eines regional reduzierten Verkehrsaufkommens am Wochenende auf die Ozonkonzentration im Großraum Köln wurde analog zu dem in *Abschnitt 4.5.2* beschriebenen Szenario eine Reduktion der Verkehrsemissionen um 15% innerhalb des Modellgebietes Nest 2 (NRW) vorgenommen (EURAD-Szenario ‚LOWTRAF‘). Dies ist ein grober Ansatz um den beobachteten Rückgang der Verkehrsstärke mit einer Emissionsminderung zu verbinden, wobei hier die Auswirkung einer geänderten Verkehrszusammensetzung nicht berücksichtigt wird. Im Vergleich zum EURAD-Basislauf zeigt sich bei dem Reduktionsszenario ein deutlicher Anstieg der Ozonkonzentration stromab des Ruhrgebiets am Nachmittag in der Simulation für den 09.08.1997 (*siehe Abbildung 4.42*). Aber auch innerhalb von Nest 3 ist besonders im Nordwesten die Ozonkonzentration um über 6 ppbV erhöht (*siehe Abbildung 4.43, links*). In einem Teil des Modellgebiets würde sich dadurch im Szenarienfall eine Annäherung der Simulationsergebnisse des übergeordneten Nests 2 an die gemessenen Werte z.B. an der Station Chorweiler (ca. 94 ppbV um 16 UTC) ergeben.



**Abbildung 4.42:** Ozonmischungsverhältnis in der untersten Schicht mit unterlegter Modelltopographie des CTM2-Laufs Basis (links) und des Laufs mit reduzierten Verkehrsemissionen (rechts) für das Modellgebiet Nest 2 am 09.08.1997 um 16 UTC. Das Quadrat markiert das lokale Modellgebiet (Nest 3).



**Abbildung 4.43:** Differenz des Ozonmischungsverhältnisses des CTM2-Laufs mit reduzierten Verkehrsemissionen auf regionaler Ebene EURAD ‚LOWTRAF‘ – Basislauf in der untersten Modellschicht für das Modellgebiet Nest 2 am 09.08.1997 (links) und am 10.08.1997 (rechts) jeweils um 16 UTC.



**Abbildung 4.44:** Zeit-Höhen-Verlauf der Mischungsverhältnisse [ppbV] von Ozon (links) und PAN (rechts) im Szenario EURAD ‚LOWTRAF‘ im lokalen Modellgebiet (Nest 3) während der Zeiträume der Episode 1 am Gitterpunkt der Station Chorweiler.

Die ozonbildenden Prozesse reagieren im Modell am Samstag sehr sensitiv auf Veränderungen der Emissionen, wogegen am Sonntag der Effekt wesentlich geringer ist (vgl. *Abbildung 4.43, rechts*). Am 09.08.1997 war der Wind sehr schwach, so dass tagsüber thermisch induzierte Windsysteme das Strömungsbild prägten. Bei dieser Wetterlage zeigen sich in den Windfeldern der beiden meteorologischen Modelle leicht konvergente bzw. divergente Strukturen mit wechselnden Richtungen, begleitet von sehr variablen Vertikal-



bewegungen. Die in der Luftmasse enthaltenen Schadstoffe verbleiben während der Chemie-Transport-Rechnung somit länger an einem Ort. Die auffallend hohen Ozonwerte am Samstag scheinen daher durch das Zusammenwirken mehrerer Faktoren bedingt zu sein. Eine Ursache ist die Akkumulation von Ozon und anderen Photooxidantien während der vorausgegangenen Schönwetterperiode in höheren Schichten. Tagsüber kann zusätzlich zu der dadurch verstärkten photochemischen Bildung mit dem Ansteigen der Mischungsschicht dieses Reservoir angezapft werden und durch vertikale Umverteilung und turbulenter Austausch ein hoher Ozonlevel auch in Bodennähe gelangen (vgl. *Abbildung 4.44*). Als zweite Komponente begünstigen die besonderen meteorologischen Bedingungen mit einer nahezu stagnierenden Luftmasse zusätzlich zu der Absinkbewegung innerhalb des Hochs die ozonbildenden Prozesse. Ein weiterer Grund ist die veränderte Emissionssituation. Die Reduktion der verkehrsbedingten  $\text{NO}_x$ -Emissionen vermindert den in Ballungsräumen besonders wirksamen Titrationseffekt, so dass netto die Ozonproduktion überwiegt. Dabei spielen lokale Veränderungen ebenso eine Rolle wie die Verhältnisse auf der regionalen Skala. Für Berechnungen auf lokaler Ebene sind die Vorgaben des übergeordneten Modells daher mitausschlaggebend für die Güte der Simulation. In Chemie-Transport-Modellen sollten auch aus diesem Grund sowohl auf regionaler als auch auf lokaler Skala nicht nur zeitlich und räumlich hochaufgelöste sondern auch nach Wochentagen differenzierte und vor allem repräsentative Emissionsdaten verwendet werden.

### **Zusammenfassung und Schlussfolgerungen aus den Szenariensimulationen**

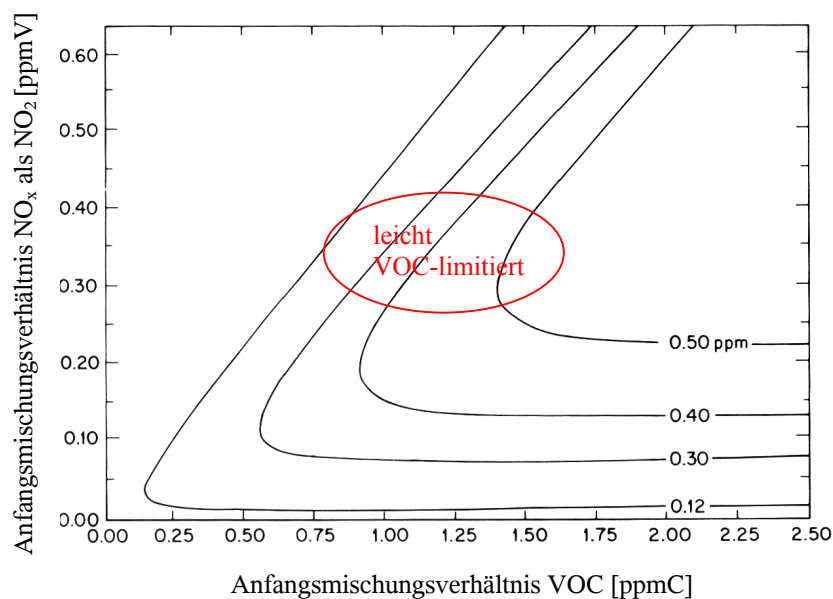
Die in diesem Kapitel präsentierten Szenariensimulationen zeigen deutlich, dass die Immissionssituation im Großraum Köln maßgeblich durch Verkehrsemissionen beeinflusst wird, und wie sensitiv das chemische Regime auf emissionsseitige Änderungen reagiert. Mit Hilfe des genesteten Modellsystems CARLOS können diese Effekte auf unterschiedlichen räumlichen Skalen erfasst und analysiert werden. Die Emissionsdaten des dynamischen Verkehrsmodells bieten dabei die Möglichkeit, die Auswirkung veränderter Verkehrsströme durch Planungsvorhaben oder Lenkungsmaßnahmen auf die Bildung und Verteilung sekundärer Schadstoffe im Bereich des Stadtgebietes von Köln zu untersuchen.

Das „Brückenszenario“ zeigt, dass reine Verkehrsumlenkungsmaßnahmen nicht nur lediglich eine Verlagerung der Immissionsschwerpunkte sondern auch eine zusätzliche Belastung durch verkehrsbedingte Emissionen bewirken können. Aufgrund der Brückensperrung sind die Fahrer gezwungen längere Umwege in Kauf zu nehmen. Dadurch kommt es zu einem Anstieg der Gesamtemissionen innerhalb des Modellgebietes, und im Leebereich der Ausweichrouten gelangen die Schadstoffe infolge der Transportprozesse über einen

lokalen Einflussbereich hinaus und können ein ausgedehnteres Gebiet beeinflussen. Das Szenario 1 führt außerdem zu der Schlussfolgerung, dass ein Tempolimit auf Straßen innerhalb eines Stadtgebietes bei eher niedrigen Geschwindigkeiten aufgrund des gegensätzlichen Verhaltens der Emissionsfaktoren (vgl. *Abbildung 2.4*) nach diesen Ergebnissen kein geeigneter Ansatz zur Reduktion der Belastung durch verkehrsbedingte Schadstoffe ist. Bei höheren Geschwindigkeiten, wie sie auf Autobahnen gefahren werden, ist die Sachlage jedoch eine andere, die zukünftigen Untersuchungen vorbehalten bleiben muss.

Im dritten Szenario, der Variation der Zusammensetzung der Verkehrsflotte in dem dynamischen Verkehrsmodell, wird die Auswirkung des stark skalenabhängigen Verhältnisses VOC/NO<sub>x</sub> besonders deutlich. Letzteres wird erst durch Simulationen auf der höchsten Auflösungsstufe adäquat erfasst. Entlang der Autobahnen zeigt sich lokal eine deutliche Erhöhung der Ozonkonzentration bei sinkendem LKW-Anteil der Fahrzeugflotte. Die Ergebnisse weisen außerdem auf die Bedeutung der Berücksichtigung der Verkehrszusammensetzung an unterschiedlichen Wochentagen für die Modellierung der lokalen Immissionssituation hin. Ein wachsender LKW-Anteil, wie er u.a. auch durch die EU-Osterweiterung erwartet wird, beinhaltet zudem einen Anstieg der NO<sub>x</sub>- und Rußemissionen. Im Gegensatz zu dem ausschließlich in Sommersmogepisoden sekundär gebildeten Ozon sind diese primären Schadstoffe ganzjährig im Blickpunkt der Umweltämter, da die Einhaltung der EU-Richtlinien in verkehrsreichen Gebieten zur Zeit nicht immer gewährleistet ist.

Die schon im Basisszenario festgestellte, leichte VOC-Limitierung der Luftmasse innerhalb des Großraums von Köln wird durch die ZAIK-Szenarien mit erhöhtem Verkehrsaufkommen bestätigt. Dementsprechend hat der dadurch verursachte Anstieg der verkehrsbedingten Emissionen innerhalb des Modellgebiets keine verstärkte Ozonbildung zur Folge. Lokal führt die Titration durch zusätzlich emittiertes NO besonders entlang der Autobahnen sogar zu einer Absenkung der Ozonwerte. Den Zusammenhang zwischen der Konzentration der Vorläufersubstanzen NO<sub>x</sub> sowie VOC und der Ozonbildung veranschaulicht *Abbildung 4.45*. Diese lokalen Szenarien verdeutlichen ebenfalls die Problematik des induzierten Verkehrs. Die hier erzielten Ergebnisse zeigen, dass der Ausbau des Kölner Autobahnringes aufgrund der Attraktivitätssteigerung durch die Zeitersparnis infolge reduzierter Staus eine verstärkte Nutzung dieses Verkehrsweges mit sich bringt. In dem dynamischen Verkehrsmodell wird der emissionsmindernde Effekt eines störungsfreien Verkehrsflusses durch den induzierten Verkehr überkompensiert. Das für diesen Ausbau oft von Politikern vorgebrachte Argument positiver Auswirkungen auf die Umwelt muss vor diesem Hintergrund wohl eher kritisch betrachtet werden.



**Abbildung 4.45:** Ozon-Isoplethenplot. Dargestellt ist die maximal erreichbare  $O_3$ -Konzentration während einer bestimmten Zeitspanne, in der Einstrahlung erfolgt, bei einer definierten Ausgangskonzentration der Ozonvorläufersubstanzen  $NO_x$  [ppmV als  $NO_2$ ] und VOC [ppmC]. Bei den VOC wird das Mischungsverhältnis für jede Spezies mit der jeweiligen Anzahl der enthaltenen C-Atome multipliziert, anschließend aufsummiert und mit der Einheit ppmC angegeben. Quelle: nach SEINFELD (1986).

Die Szenarien mit erhöhten sowie reduzierten Verkehrsemissionen auf regionaler Ebene verdeutlichen die Bedeutung der Advektion von Luftmassen für die Bildung sekundärer Schadstoffe. Bei der Beurteilung von Minderungsmaßnahmen können die Auswirkungen lokaler Emissionsszenarien nicht unabhängig von den Änderungen der Randbedingungen betrachtet werden. Bei der kombinierten Erhöhung der Verkehrsemissionen auf regionaler und lokaler Ebene um 15% zeigt sich in den Simulationen ein dominierender Effekt des Eintrags der Schadstoffe aus dem übergeordneten Modell. Die Verfrachtung der zusätzlichen Schadstoffe bewirkt besonders am ersten Simulationstag eine Absenkung der Ozonkonzentration, die durch die lokale Emissionserhöhung lediglich örtlich verstärkt wird. Die regionalen Szenarien veranschaulichen außerdem die Schwierigkeiten emissionsmindernder Maßnahmen aufgrund der hochgradig nichtlinearen Prozesse bei der Bildung von Ozon. Durch die Reduktion der  $NO_x$ -Emissionen im ‚LOWTRAF‘-Szenario kommt es in den meist VOC-limitierten Ballungsgebieten zu einer verstärkten Netto-Ozonproduktion, während die ländlichen Gebiete eher unbeeinflusst bleiben. Im ‚HITRAF‘-Szenario führt die Erhöhung der Verkehrsemissionen dagegen insbesondere in Quellferne (also meist  $NO_x$ -limitierten Bereichen) zu einem Anstieg der Ozonkonzentration.

## 5 Schlussbetrachtungen und Ausblick

Besonders in urbanen Ballungsräumen mit einer Agglomeration von Industrieansiedlungen ist die Belastung von Mensch und Umwelt durch anthropogene Schadstoffe trotz emissionsmindernder Maßnahmen immer noch hoch. Das in dieser Arbeit weiter entwickelte und für exemplarische Fallstudien eingesetzte Programmsystem CARLOS ermöglicht die umfassende Betrachtung der Zusammenhänge zwischen der Emission von Schadstoffen, ihrer Umwandlung und Ausbreitung in der Atmosphäre sowie der daraus resultierenden Konzentrationsverteilung. Mit Hilfe von Episodensimulationen konnte der Einfluss der Emissionen des Verkehrssektors auf die Immissionsituation im Großraum Köln analysiert werden.

Der Schwerpunkt lag dabei auf der Berechnung sekundärer Schadstoffe während einer Sommersmogepisode, da der Verkehr sämtliche an der photochemischen Bildung von Ozon beteiligten Vorläufersubstanzen emittiert. Infolge der prognostizierten Zunahme des Straßenverkehrs erfordern die verkehrsbedingten Emissionen auch in diesem Zusammenhang besondere Beachtung. Die zunehmende Mobilität der Bevölkerung ist dabei ebenso ein treibender Faktor wie der steigende Anteil des Straßengüterverkehrs. Daher wurden räumlich und zeitlich hochaufgelöste Daten eines dynamischen Verkehrsmodells verwendet, um mittels der Simulation von Szenarien die Auswirkung veränderter Emissionsstrukturen auf die Luftqualität innerhalb des Stadtgebietes von Köln zu untersuchen.

Die Ergebnisse des Basisszenarios zeigen markant die Bedeutung der lokalen Schiffsemissionen für den in Rheinnähe sehr früh einsetzenden Abbau des Ozons bei sommerlichen Strahlungswetterlagen durch den Eintrag von Stickoxiden. Aber auch entlang der Autobahnen und im Innenstadtbereich zeigt sich der Titrationseffekt des emittierten NO deutlich durch niedrige Ozonkonzentrationen. Die Szenariensimulationen unterstreichen dagegen die Bedeutung des Ferntransports von Schadstoffen insbesondere für die Bestimmung der bodennahen Ozonkonzentration, da sie das chemische Regime der Luftmasse auch in größeren Höhen maßgeblich beeinflussen. Durch die Anwendung eines genesteten Modellsystems konnten Veränderungen der Emissionen des Straßenverkehrs sowohl auf regionaler als auch auf lokaler Ebene auf ihre unterschiedlichen Auswirkungen hin untersucht werden. Die lokalen Szenarien auf Basis des dynamischen Verkehrsmodells weisen auf die unerwünschten Effekte hin, die durch verkehrspolitische Maßnahmen verursacht werden können. Der Ausbau des Kölner Autobahnringes erscheint nach diesen Ergebnissen auf-

grund des induzierten Verkehrs zur Emissionsminderung ungeeignet. Auch Verkehrslenkungsmaßnahmen können unter Umständen eine erhöhte Schadstoffbelastung bewirken.

An dieser Stelle sei jedoch darauf hingewiesen, dass es sich bei den hier vorgestellten Ergebnissen um die Auswertung von Einzelfallsimulationen handelt. Es wurde lediglich eine Sommersmogepisode betrachtet, die durch beständige meteorologische Bedingungen gekennzeichnet war. Die Schlussfolgerungen aus den durchgeführten Berechnungen können strenggenommen nur auf vergleichbare Wetterlagen übertragen werden und besitzen nicht unbedingt Allgemeingültigkeit. Weitere Untersuchungen, die sich auf unterschiedliche Strömungs- und Wettersituationen beziehen, wären daher wünschenswert und könnten mit CARLOS durchgeführt werden. Auch die Bestimmung von Jahreskenngrößen, die oft zur Beurteilung der Luftqualität verwendet werden, ist innerhalb dieses Modellsystems ein möglicher Ansatz zur Analyse emissionsbedingter Veränderungen.

Ein komplexes Modellsystem wie CARLOS besteht aus vielen Modulen, von denen jedes einzelne viele Verbesserungsmöglichkeiten in sich birgt. Die durchgeführten Sensitivitätsstudien verdeutlichen den Einfluss der meteorologischen Randbedingungen auf die Chemie-Transport-Rechnungen. Dabei ist insbesondere auf die korrekte Modellierung des Feuchtehaushalts der Atmosphäre zu achten, da dieser sowohl die dynamischen als auch die chemischen Prozesse beeinflusst. Hier könnte durch die Verwendung der neuesten Modellversion des MM5 mit einem komplexeren Bodenmodell der Unsicherheitsfaktor Bodenfeuchte verringert werden. Weiterhin muss die Verwendung des Chemie-Mechanismus RADM2 zur Simulation von Sommersmogepisoden überdacht werden. Der aktuellere RACM-Mechanismus (STOCKWELL *et al.* 1997) gilt in diesem Bereich als sehr vielversprechend.

Abschließend kann jedoch festgestellt werden, dass die Güte der Emissionsdaten mitentscheidend ist für die Ergebnisqualität. Dabei ist es allerdings oft nicht ausreichend, innerhalb des betrachteten Modellgebietes repräsentative Daten zu verwenden, sondern durch den Ferntransport der Schadstoffe müssen dem Modell auch an den Rändern geeignete Werte vorgegeben werden. Die Wechselwirkung zwischen meteorologischen Faktoren und den emissionsbestimmten luftchemischen Prozessen wurde besonders an dem betrachteten Wochenende deutlich. Hier zeigt sich, dass nicht nur allein der zeitliche Verlauf der Verkehrsemissionen, sondern auch der Wochengang der anderen Emittentengruppen genauer berücksichtigt werden sollte. Eine weitere Verbesserung der den Modellrechnungen zugrundeliegenden Emissionsdaten wäre daher erstrebenswert.

## Literaturverzeichnis

- ARAKAWA, A. & V.R. LAMB (1977): Computational design of the basic dynamical processes of the UCLA general circulation model, *Methods in Computational Physics*, Vol. 17., Academic Press, pp. 173-265.
- ASSELIN, R. (1972): Frequency filter for time-integrations, *Monthly Weather Review*, No. 100, pp. 487-490.
- ATKINSON, R. (2000): Atmospheric chemistry of VOCs and NO<sub>x</sub>, *Atmospheric Environment*, 34, pp. 2063-2101.
- AUSTAL2000: Ein Lagrangesches Partikelmodell nach der Richtlinie VDI 3945 Blatt 3 im Rahmen des Anhang 3 der TA Luft 2002, <http://austal2000.de/>.
- BAUER, S.E. & B. LANGMANN (2002): An atmosphere-chemistry model on the meso-scale: model description and evaluation, *Atmospheric Environment*, 36, pp. 2187-2199.
- BAUM, H. & T. GEIBLER (2001): Nutzen-Kosten-Analyse des Ausbaus des Kölner Autobahnringes, *Studie im Auftrag der Industrie- und Handelskammer zu Köln, Institut für Verkehrswissenschaft an der Universität zu Köln*.
- BAUMBACH, B. (1996): Air Quality Control, Springer-Verlag, 490 pp.
- BERLINER WETTERKARTE: Amtsblatt des Instituts für Meteorologie, Wissenschaftliche Einrichtung 03 im Fachbereich Geowissenschaften der Freien Universität Berlin, Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10, 12165 Berlin.
- BERMEJO, R. & A. STANIFORTH (1992): The Conversion of Semi-Lagrangian Advection Schemes to Quasi-Monotone Schemes, *Mon. Weather Rev.*, 120, pp. 2622-2632.
- BHUMRALKAR, C.M. (1975): Numerical Experiments on the Computation of Ground Surface Temperature in an Atmospheric General Circulation Model, *Journal of Applied Meteorology*, 14, pp. 1246-1258.
- BORN, K. (1989): FOOT – Ein Dreischichtenmodell auf der Basis von REWIMET zur Simulation der dynamischen Grenzschicht, *Diplomarbeit am Meteorologischen Institut der Universität Bonn*.

- BOUBEL, R.W., D.L. FOX, D.B. TURNER, A.C. STERN (1994): Fundamentals of Air Pollution, 3<sup>rd</sup> edition, Academic Press, Inc., 574pp.
- BOTT, A. (1989): A positive definite advection scheme obtained by nonlinear renormalization of the advective fluxes, *Mon. Weather Rev.*, **117**, pp. 1006-1015.
- BRIMBLECOMBE, P. (1996): Air Composition & Chemistry, Cambridge environmental chemistry series |6, 2<sup>nd</sup> edition, Cambridge University Press, 253 pp.
- BRÖNNIMANN, S. & U. NEU (1997): Weekend-Weekday Differences of Near-Surface Ozone Concentrations in Switzerland for Different Meteorological Conditions, *Atmospheric Environment*, **31**, pp. 1127-1135.
- BRÜCHER, W. (1997): Numerische Studien zum Mehrfachnesting mit einem nicht-hydrostatischen Modell, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 119.
- BRÜCHER, W., M.J. KERSCHGENS, C. KESSLER, A. EBEL (1999a): Modelling of Regional and Local Air Pollution Based on Dynamical Simulation of Traffic. In W. Brilon, F. Huber, M. Schreckenberg, H. Wallentowitz (Hrsg.) "Traffic and Mobility", Springer Verlag, pp. 225-240.
- BRÜCHER, W., T. SPERLING, F. STEFFANY, M. KERSCHGENS (1999b): WiTraK – Windfeld-, Transport- und Klimatologie-Programmsystem, Version 2.5, Benutzeranleitung, *Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*.
- BRÜCHER, W., C. KESSLER, M.J. KERSCHGENS, A. EBEL (2000): Simulation of traffic-induced air pollution on regional to local scales. *Atmospheric Environment*, Vol. **34** (27), pp. 4675-4681.
- BRÜCHER, W., S. SOGALLA, M.J. KERSCHGENS (2003): FOOT3DK-Handbuch, Modell, Tools und Klimatologiemodul, Vorläufige Dokumentation für Version 3.10, *Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*.
- BUNDES-IMMISSIONSSCHUTZGESETZ (BIMSCHG, 1990): in der Fassung der Bekanntmachung vom 14. Mai 1990, BGBl I, S. 880.
- BUNDESMINISTERIUM FÜR VERKEHR, BAU- UND WOHNUNGSWESEN (BMVBW, 2000): Klimaschutzprogramm der Bundesregierung, Bericht des Arbeitskreises II Verkehr zum Fünften Bericht der Interministeriellen Arbeitsgruppe „CO<sub>2</sub>-Reduktion“ (IMA CO<sub>2</sub>-Reduktion) vom 18. November 2000, <http://www.bmvbw.de/>.

- CHANG, J.S., R.A. BROST, I.S.A. ISAKSEN, S. MADRONICH, P. MIDDLETON, W.R. STOCKWELL, C.J. WALCEK (1987): A three-dimensional Eulerian acid deposition mode: physical concepts and formation, *J. Geophys. Res.*, **92**, pp. 14681-14700.
- CHEN, F. & J. DUDHIA (2001): Coupling an advanced land-surface/hydrology model with the Penn State/NCAR MM5 modeling system. Part I: Model implementation and sensitivity. *Mon. Wea. Rev.*, **129**, pp. 569-585.
- DEARDORFF, J.W. (1978): Efficient Prediction of Ground Surface Temperature and Moisture, With Inclusion of a Layer of Vegetation, *J. Geophys. Research*, **83**, pp. 1889-1903.
- DERWENT, R.G., M.E. JENKIN, S.M. SAUNDERS, M.J. PILLING (1998): Photochemical ozone creation potentials for organic compounds in northwest Europe calculated with a master chemical mechanism, *Atmos. Environ.*, **32**, pp. 2429-2441.
- DEUTSCHER WETTERDIENST (DWD): Frankfurter Straße 135, Postfach 100465, 63076 Offenbach; <http://www.dwd.de/>.
- DIE GROßWETTERLAGEN EUROPAS: Amtsblatt des Deutschen Wetterdienstes, Frankfurter Straße 135, Postfach 100465, 63076 Offenbach.
- DUDHIA, J. (1996): A multi-layer soil temperature model for MM5, Preprint from the Sixth PSU/NCAR Mesoscale Model Users' Workshop; erhältlich unter <http://www.mmm.ucar.edu/mm5/lsm/lsm-docs.html>.
- DUDHIA, J., D. GILL, Y.-R. GUO, K. MANNING, W. WANG, V. COLLIN (1999): PSU/NCAR Mesoscale Modeling System, Tutorial Class Notes and User's Guide: MM5 Modeling System Version 2.
- EBEL, A., H. ELBERN, H. HASS, H.J. JAKOBS, M. MEMMESHEIMER, M. LAUBE, A. OBERREUTER, G. PIEKORZ (1996): Europäisches Ausbreitungs- und Depositionsmodell, Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben 07 EU 783 A/4 des Bundesministers für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie, Juni 1996.
- EBEL, A., H. ELBERN, H. FELDMANN, H.J. JAKOBS, C. KESSLER, M. MEMMESHEIMER, A. OBERREUTER, G. PIEKORZ (1997): Air Pollution Studies with the EURAD Model System (3): EURAD – European Air Pollution Model System, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 120.



- EISSFELDT, N. & R. SCHRADER (2002): Calculation of street traffic emissions with a queuing model, *J. of Computational Technologies*, Vol. 7, pp. 5-15.
- EISSFELDT, N. (2004): Vehicle-based modelling of traffic: Theory and application to environmental impact modelling, *Dissertation am Zentrum für Angewandte Informatik der Universität zu Köln*.
- EMEP: Co-operative programme for monitoring and evaluation of long range transmission of air pollutants in Europe, <http://www.emep.int/>.
- EMISSIONSKATASTER LUFT NORDRHEIN-WESTFALEN 1996/97 (1999): Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Wallneyer Straße 6, 45133 Essen.
- EUROPEAN CENTER FOR MEDIUM RANGE WEATHER FORECASTS (ECMWF): Shinfield Park Reading, RG2 9AX, United Kingdom.
- FENGER, J. (1999): Urban air quality, *Atmospheric Environment*, Vol. 33, pp. 4877-4900.
- FISCHER, B. (2000): Implementierung eines langwelligen Strahlungsschemas in eine mesoskaliges Strömungsmodell, *Diplomarbeit am Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*.
- GAWRON, C. (1998a): An iterative algorithm to determine the dynamic user equilibrium in a traffic simulation model, *International Journal of Modern Physics*, C 9 (3), pp. 393-407.
- GAWRON, C. (1998b): Simulation-based traffic assignment, *Dissertation am Zentrum für Angewandte Informatik der Universität zu Köln*.
- GERSTENGARBE, F.W., P.C. WERNER, U. RÜGE (1999): Katalog der Großwetterlagen Europas nach P. Hess und H. Brezowski 1881-1992, 5. Aufl., Potsdamer Institut für Klimafolgenforschung, Potsdam, 138 S.
- GRAEDEL, T.E., D.T. HAWKINS, L.D. CLAXTON (1986): Atmospheric Chemical Compounds, Sources, Occurrence, and Bioassay, academic Press, Inc., 732 pp.
- GRELL, G., J. DUDHIA, D. STAUFFER (1994): A description of the Fifth-Generation Penn State/NCAR Mesoscale Model (MM5), NCAR Technical Note, NCAR/TN-398+STR, National Center of Atmospheric Research, Boulder, Colorado.
- GROSS, A. & W.R. STOCKWELL (2003): Comparison of the EMEP, RADM2 and RACM Mechanisms, *J. of Atmos. Chemistry*, 44, pp. 151-170.

- HASS, H. (1991): Description of the EURAD Chemistry-Transport-Model Version 2, (CTM2). *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 83.
- HENNIG, A. (2002): Sensitivitätsstudien zur Erstellung von Schadstoffklimatologien, *Diplomarbeit am Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*.
- HESTVEDT, E., Ø. HOV, I.S.A. ISAKSEN (1978): Quasi-steady state approximation in air pollution modelling: comparison of the two numerical schemes for oxidant prediction, *Int. J. Chem. Kinet.*, **10**, pp. 971-994.
- HOBBS, P.V. (Hrsg., 1993): *Aerosol – Cloud – Climate Interactions*, Academic Press, Inc., 233 pp.
- HOBBS, P.V. (1995): *Basic Physical Chemistry for the Atmospheric Sciences*, Cambridge University Press, 206 pp.
- HONG, S.-Y. & H.-L. PAN (1996): Nonlocal boundary layer vertical diffusion in a Medium-Range Forecast model, *Monthly Weather Review*, No. **124**, pp. 2322-2339.
- HÜBENER, H., M. SCHMIDT, M. SOGALLA, M. KERSCHGENS (2004): Simulating Evapotranspiration in a Semi-Arid Environment, *Theoretical and Applied Climatology*, accepted for publication.
- IFEU: Institut für Energie- und Umweltforschung Heidelberg, <http://www.ifeu.de/>.
- ILGEN, E., N. KARFICH, K. LEVSEN, J. ANGERER, P. SCHNEIDER, J. HEINRICH, H.-E. WICHMANN, L. DUNEMANN, J. BEGEROW (2001): Aromatic hydrocarbons in the atmospheric environment: Part I. Indoor versus outdoor sources, the influence of traffic, *Atmos. Environ.*, **35**, pp. 1235-1252.
- INFRAS (1999): HBEFA Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs, Version 1.2, Umweltbundesamt Berlin und INFRAS AG, Bern.
- INSTITUT FÜR KRAFTFAHRWESEN AACHEN (IKA): RWTH Aachen, Templergraben 55, 52056 Aachen, <http://www.ika.rwth-aachen.de/>.
- IRVING, P.M. (Hrsg., 1991): *Acid deposition: state of science and technology*, Vol. 1, Emissions, Atmospheric Processes, and Deposition, U.S. National Acid Precipitation Assessment Program, Washington, DC.

- JACOBSEN, I. & E. HEISE (1982): A New Economic Method for the Computation of the Surface Temperature in Numerical Model, *Beitr. Phys. Atmosph.*, **55**, pp. 128-141.
- KESSELMEIER, J. & M. STAUDT (1999): Biogenic Volatile Organic Compounds (VOC): An Overview on Emission, Physiology and Ecology, *J. of Atmos. Chemistry*, **33**, pp. 23-88.
- KESSLER, C., W. BRÜCHER, M. MEMMESHEIMER, M.J. KERSCHGENS, A. EBEL (1999): Interaction of Traffic and Other Anthropogenic Emissions in Polluted Regions and their Environment. In W. Brilon, F. Huber, M. Schreckenberg, H. Wal-lentowitz (Hrsg.) "Traffic and Mobility" Springer Verlag, S. 241-257.
- KESSLER, CH., W. BRÜCHER, M. MEMMESHEIMER, M. KERSCHGENS, EBEL A. (2001): Simulation of Air Pollution with nested models in North Rhine-Westphalia, *Atmospheric Environment*, Vol **35**, Supplement 1, pp. 3-12.
- KEULER, K.-G. (1990): Simulation orographisch beeinflusster Fronten mit einem Front-Skala Modell, Teil 1: Modellentwicklung, *Bonner Meteorologische Abhandlungen*, **37**, 128pp.
- KLEMM, O., W.R. STOCKWELL, H. SCHLAGER, M. KRAUTSTRUNK (2000): NO<sub>x</sub> or VOC Limitation in East German Ozone Plumes?, *Journal of Atm. Chemistry*, **35**, pp 1-18.
- KRAUß, S. (1998): Microscopic modeling of traffic flow: Investigation of collision free vehicle dynamics, *Dissertation am Zentrum für Angewandte Informatik der Universität zu Köln*.
- KRÄMER, U., T. KOCH, U. RANFT, J. RING, H. BEHRENDT (2000): Traffic-related pollution is associated with atopy in children living in urban areas, *Epidemiology*, **11**, pp. 64 – 70.
- KURTENBACH, R., R. ACKERMANN, K.H. BECKER, A. GEYER, J.A.G. GOMES, J.C. LÖRZER, U. PLATT, P. WIESEN (2002): Verification of the Contribution of Vehicular Traffic to the Total NMVOC Emissions in Germany and the Importance of the NO<sub>3</sub> Chemistry in the City Air, *J. Atmos. Chemistry*, **42**, pp. 395-411.
- LANDESUMWELTAMT NORDRHEIN-WESTFALEN (LUA NRW): Jahresberichte, TEMES-Daten und Emissionskataster, Wallneyer Straße 6, 45133 Essen; <http://www.lua.nrw.de/>.

- LANGMANN, B. & S.E. BAUER (2002): On the Importance of Reliable Background Concentrations of Ozone for Regional Scale Photochemical Modelling, *J. of Atmos. Chemistry*, **42**, pp. 71-90.
- LOUIS, J.-F. (1979): A Parametric Model of Vertical Eddy Flux in the Atmosphere, *Boundary Layer Meteorology*, **17**, pp. 187-202.
- LÜBKERT, B. & W. SCHÖPP (1989): A model to calculate natural VOC emissions from forests in Europe. IIASA WP-89-082.
- MADRONICH, S. (1987): Photodissociation in the atmosphere, 1. actinic flux and the effects of ground reflections and clouds, *J. Geophys. Res.*, **92**, No. D8, pp. 9740-9752.
- MARSDEN, G., M. BELL, S. REYNOLDS (2001): Towards a real-time microscopic emissions model, *Trans. Res. D*, Vol. 6, pp. 37-60.
- MEMMESHEIMER, M., J. TIPPKE, A. EBEL, H. HASS, H.J. JAKOBS, M. LAUBE (1991): On the use of EMEP emission inventories for European scale air pollution modelling with the EURAD model. Proceedings of the EMEP workshop on Photooxidant Modelling for Long-Range Transport in Relation to Abatement Strategies, Berlin, 16.-19. April 1991, pp. 307-324.
- MEMMESHEIMER, M., M. ROEMER, A. EBEL (1997): Budget calculations for ozone and its precursors: seasonal and episodic features based on model simulations, *Journal of Atmospheric Chemistry*, Vol. **28**, No. 1, pp. 283-317.
- MESINGER, F. & A. ARAKAWA (1976): Numerical Methods used in Atmospheric Models, Garp Publication Series, Vol. 17, WMO-ICSU Joint Organizing Committee, pp. 1-64.
- MOUSSIOPOULOS, N., W. OEHLER, K. ZELLNER (1989): Kraftfahrzeugemissionen und Ozonbildung, Springer Verlag, 134 S.
- MOUSSIOPOULOS, N., P. SAHM, P.M. TOURLOU, R. FREIDRICH, D. SIMPSON, M. LUTZ (2000): Assessing ozone abatement strategies in terms of their effectiveness on the regional and urban scales, *Atm. Env.*, **34**, pp. 4691-4699.
- NIXON, S.C., Y.J. REES, J.A. GUNBY, N. MOUSSIOPOULOS (1999): Ambient air quality, pollutant dispersion and transport models, European Environment Agency (EEA), Topic report No 19/1996, <http://reports.eea.eu.int/>.

- NOILHAN, J. & S. PLANTON (1989): A simple parameterization of land surface processes for meteorological models, *Mon. Wea. Rev.*, No. **117**, pp.536-549.
- OKE, T.R. (1987): *Boundary Layer Climates*, 2<sup>nd</sup> edition, University Press, Cambridge.
- PEREGO, S. (1996): Ein numerisches Modell zur Simulation des Sommersmogs, *Geographica Bernensia*, Universität Bern, G47, 202 S.
- PETRY, J.P (1993): Zur Wahl der Anfangskonzentrationen für die numerische Modellierung regionaler troposphärischer Schadstofffelder, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 89.
- PIELKE, R.A. (1984): *Mesoscale Meteorological Modeling*, Academic Press, Orlando, 102 pp.
- PIELKE, R.A. & M. ULIASZ (1998): Use of Meteorological Models as Input to Regional and Mesoscale Air Quality Models – Limitations and Strengths, *Atmospheric Environment*, Vol. **32**, No. 8, pp. 1455-1466.
- PLACET, M., C.O. MANN, R.O. GILBERT, M.J. NIEFER (2000): Emissions of ozone and precursors from stationary sources: A critical review, *Atmos. Environ.*, **34**, pp. 2183-2204.
- PONT, V. & J. FONTAN (2001): Comparison between weekend and weekday ozone concentration in large cities in France, *Atm. Env.*, **35**, pp. 1527-1535.
- PRYOR, S.C. & D.G. STEYN (1995): Hebdomadal and Diurnal Cycles in Ozone Time Series from the Lower Fraser Valley, B.C., *Atmospheric Environment*, **29**, pp. 1007-1019.
- PROGNOS AG: Aeschenplatz 7, CH-4010 Basel, <http://www.prognos.com/>.
- RAN, B. & D. BOYCE (1996): *Modeling Dynamic Transportation Networks*, Springer Verlag.
- REISNER, J., R.M. RASMUSSEN, R. BRUINTJES (1998): Explicit forecasting of super-cooled liquid water in winter storm using the MM5 model, *Quarterly J. Roy. Meteorol. Soc.*, No. **124**, pp. 1071-1107.
- RHEINISCHES INSTITUT FÜR UMWELTFORSCHUNG (RIU): EURAD-Projekt, Aachener Straße 201-209, 50931 Köln, <http://www.eurad.uni-koeln.de/>.

- RUGGABER, A., R. DUGLI, T. NAKAJIMA (1994): Modelling of radiation quantities and photolysis frequencies in the troposphere, *Journal of Atmospheric Chemistry*, **18**, pp. 171-210.
- SAITO, K. (1991): A Numerical Study of the Local Downslope Wind "Yamaji-kaze" in Japan – Part 3: Numerical Simulation of the 27 September 1991 Windstorm with a Non-hydrostatic Multi-nested Model, *J. Meteorol. Soc. Japan*, **72**, pp. 301-329.
- SAWYER, R.F., R.A. HARLEY, S.H. CADLE, J.M. NORBECK, R. SLOTT, H.A. BRAVO (2000): Mobile sources critical review: 1998 NARSTO assessment, *Atm. Env.*, **34**, pp. 2161-2181.
- SCHNEIDER, C., C. KESSLER, N. MOUSSIOPOULOS (1997): Influence of Emission Input Data on Ozone Level Predictions for the Upper Rhine Valley, *Atmospheric Environment*, Vol. **31**, No. 19, pp. 3187-3205.
- SCHULZ, T. (2004): *Persönliche Mitteilungen*, Auskunft zu rasterquadratbezogenen Emissionsdaten 2000 für NRW, Landesumweltamt NRW.
- SEINFELD, J.H. (1986): Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution, John Wiley & Sons, Inc., 738 pp.
- SENTUC, F.-N. (2000): Entwicklung und Anwendung eines Programmsystems zur Trajektorienberechnung in der planetaren Grenzschicht, *Diplomarbeit am Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*.
- SENTUC, F.-N. & W. BRÜCHER (2004): CARLOS-Programmdokumentation, *Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*.
- SHAPIRO, R. (1971): The Use of Linear Filtering as a Parameterization of Atmospheric Diffusion, *J. Atmos. Sci.*, No. **28**, pp. 523-531.
- SLEMR, F., G. BAUMBACH, P. BLANK, U. CORSMEIER, F. FIEDLER, R. FREIDRICH, M. HABRAM, N. KALTHOFF, D. KLEMP, J. KÜHLWEIN, K. MANNSCHRECK, M. MÖLLMANN-COEARS, K. NESTER, H.-J. PANITZ, P. RABL, J. SLEMR, U. VOGT, B. WICKERT (2002): Evaluation of Modeled Spatially and Temporally Highly Resolved Emission Inventories of Photochemical Precursors for the City of Augsburg: The Experiment EVA and Its Major Results, *J. Atmos. Chemistry*, **42**, pp. 207-233.

- SHEFFI, Y. (1985): Urban Transportation Networks: Equilibrium Analysis with Mathematical Programming Methods, Prentice Hall.
- SOGALLA, M. & M.J. KERSCHGENS (2001): Berechnung lokaler Niederschlagsfelder zur Parametrisierung der nassen Deposition auf der Basis größer-skaliger Wettervorhersagemodelle, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 144.
- SOULHAC, L., C. PUEL, O. DUCLAUX, R.J. PERKINS (2003): Simulations of atmospheric pollution in Greater Lyon as example of the use of nested models, *Atmos. Env.*, **37**, pp. 5147-5156.
- STEFFANY, F. (1995): Verfahren zur Diagnose und Prognose anthropogener Klimamodifikationen in der Meso- und Mikroskala, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 103.
- STOCKWELL, W.R., P. MIDDLETON, J.S. CHANG (1990): The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *J. Geophys. Res.*, **95**, pp. 16343-16367.
- STOCKWELL, W.R., F. KIRCHNER, M. KUHN, S. SEEFELD (1997): A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling, *J. Geophys. Res.*, **102**, pp. 25847-25879.
- TA-LUFT (1986, 2002): Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft).
- UMWELTBUNDESAMT (UBA, 2001): Nationales Programm der Bundesrepublik Deutschland nach Art. 6 der Richtlinie 2001/81/EG vom 23. Oktober 2001 über nationale Emissionshöchstmenge für bestimmte Luftschadstoffe, Postfach 330022, 14191 Berlin.
- UMWELTBUNDESAMT (2003): Hintergrundinformation Sommersmog (Mai 2003), <http://www.umweltbundesamt.de/>.
- UMWELTBUNDESAMT (2004): Umweltdaten Deutschland Online, <http://www.env-it.de/umweltdaten/>.
- VARDOULAKIS, S., B.E.A. FISHER, K. PERICLEOUS, N. GONZALEZ-FLESCA (2003): Modelling air quality in street canyons: a review, *Atmos. Env.*, **37**, pp. 155-182.

VERWER, J. (1994): Gauss-Seidel iteration for stiff ODEs from chemical kinetics, *SIAM Journal on Scientific Computing*, **15**, pp. 1234-1250.

WARNECK, W. (1988): Chemistry of the Natural Atmosphere, International Geophysics Series, 41, Academic Press, Inc., 757 pp.

WILLIAMS, M.D., G. THAYER, M.J. BARTH, L.L. SMITH (1999): The TRANSIMS Approach to Emissions Estimation, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, LA-UR-99-471.

ZENGER, A. (1998): Atmosphärische Ausbreitungsmodellierung, Grundlagen und Praxis, Springer-Verlag, 159 S.

ZENTRUM FÜR ANGEWANDTE INFORMATIK DER UNIVERSITÄT ZU KÖLN (ZAIK): Working Group Traffic Simulation, <http://www.zaik.uni-koeln.de/AFS/traffic/>.



## Anhang A: Symbole für Stoffe und Stoffgruppen

### Anhang A.1: Volumen- und Massenkonzentration

Gasförmige Luftbeimengungen werden in der Atmosphärenchemie häufig als Mischungsverhältnis (auch Volumenkonzentration genannt) z.B. in ppbV („parts-per-billion by volume“) angegeben, da diese Größe unabhängig von Druck und Temperatur ist (siehe auch WARNECK 1988). Die meisten Grenz- oder Orientierungswerte beziehen sich dagegen auf die Angabe der Masse eines Spurengases pro Luftvolumen z.B. in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Um Massenkonzentration und Mischungsverhältnis miteinander vergleichen zu können kann folgende Umrechnungsformel für ein beliebiges Gas  $i$  mit der Molmasse  $M_i$  verwendet werden:

$$c_i (\mu\text{g} / \text{m}^3) = \rho_{\text{Luft}} (\text{kg} / \text{m}^3) \frac{M_i}{M_{\text{Luft}}} \times c_i (\text{ppb}) \quad (\text{A.1})$$

mit  $\rho_{\text{Luft}} = p / RT$  Dichte der Luft bei Druck  $p$  und Temperatur  $T$ ;  $R$  ist die Gaskonstante.

### Anhang A.2

Bezeichnungen der im Gasphasenchemiemechanismus RADM2 verwendeten anorganischen Substanzen.

Name	Substanz	chem. Formel
NO2	Stickstoffdioxid	$NO_2$
NO	Stickstoffmonoxid	$NO$
HONO	salpetrige Säure	$HNO_2$
NO3	Stickstofftrioxid	$NO_3$
N2O5	Distickstoffpentoxid	$N_2O_5$
HNO3	Salpetersäure	$HNO_3$
HNO4	Persalpetersäure	$HNO_4$
O3	Ozon	$O_3$
H2O2	Wasserstoffperoxid	$H_2O_2$
SO2	Schwefeldioxid	$SO_2$
SULF	Schwefelsäure	$H_2SO_4$
CO	Kohlenmonoxid	$CO$
CO2	Kohlendioxid	$CO_2$
O3P	Sauerstoff (Grundzustand)	$O^{3P}$
O1D	Sauerstoff (angeregter Zust.)	$O^{1D}$
HO	Hydroxylradikal	$HO$
HO2	Hydroperoxyradikal	$HO_2$
O2	Sauerstoff	$O_2$
N2	Stickstoff	$N_2$
H2O	Wasser	$H_2O$

## Anhang A.3

Bezeichnungen der im Gasphasenchemiemechanismus RADM2 verwendeten organischen Substanzen. Bei Stoffgruppen ist die Formel eines typischen Vertreters angegeben.

Name	Substanz oder Gruppe	chem. Formel
CH4	Methan	$CH_4$
ETH	Ethan	$C_2H_6$
HC3	Alkane 1	$C_nH_{2n+2} (n=2.9)$
HC5	Alkane 2	$C_nH_{2n+2} (n=4.8)$
HC8	Alkane 3	$C_nH_{2n+2} (n=7.9)$
OL2	Ethen	$C_2H_4$
OLT	Alkene 1	$C_nH_{2n} (n=3.8)$
OLI	Alkene 2	$C_nH_{2n} (n=4.8)$
ISO	Isopren	$C_5H_8$
TOL	Aromaten 1 (u.a. Toluole)	$CH_3C_6H_5$
CSL	Phenole/Kresole	$HOC_6H_4CH_3$
XYL	Aromaten 2 (u.a. Xylole)	$(CH_3)_2C_6H_4$
HCHO	Formaldehyd	$HCHO$
ALD	höhere Aldehyde	$CH_3CHO$
KET	Ketone	$C_nH_{2n+1}COCH_3 (n=1,2)$
GLY	Glyoxal	$(CHO)_2$
MGLY	Methylglyoxal	$CH_3COCHO$
DCB	unges. Dicarbyone	$C_nH_{2n+1}(CHO)_2 (n=2)$
PAN	Peroxyacetylnitrat	$CH_3CO_3NO_2$
TPAN	TPAN	$CHOCH = CHCO_3NO_2$
ONIT	andere organ. Nitrate	$C_nH_{2n+1}ONO_2 (n=4)$
OP1	Methylhydrogenperoxid	$CH_3OOH$
OP2	höhere organ. Peroxide	$C_nH_{2n+1}OOH (n=2)$
PAA	Persäuren	$CH_3COOOH$
ORA1	Ameisensäure	$HCOOH$
ORA2	höhere organische Säuren	$CH_3COOH$
ACO3	Acetylperoxyradikal	$CH_3 - CO_3$
	<b>Peroxyradikal aus:</b>	
MO2	CH4	$C_nH_{2n+1}O_2 (n=1)$
ETHP	ETH	$C_nH_{2n+1}O_2 (n=2)$
HC3P	HC3	$C_nH_{2n+1}O_2 (n=2.9)$
HC5P	HC5	$C_nH_{2n+1}O_2 (n=4.8)$
HC8P	HC8	$C_nH_{2n+1}O_2 (n=7.9)$
OL2P	OL2	$OHC_nH_{2n}O_2 (n=2)$
OLTP	OLT	$OHC_nH_{2n}O_2 (n=3.8)$
OLIP	OLI	$OHC_nH_{2n}O_2 (n=4.8)$
TOLP	TOL	$OHCH_3C_6H_5O_2$
XYLP	XYL	$OH(CH_3)_2C_6H_4O_2$
KETP	KET	$R - CO - R - O_2$
TCO3		$H(CO)CH = CHCO_3$
OLN	aus Reaktion Alkene-NO3	
XNO2	weitere organ. Nitrate	
XO2	Operator-Radikal	

## Anhang B: Der RADM2-Gasphasenmechanismus

Der Gasphasenmechanismus nach STOCKWELL *et al.* (1990):

(Die Anordnung der Reaktionen erfolgt entsprechend der im CTM gewählten Nummerierung.)

### Photolyse-Reaktionen \*

				Ratenkonstante**
001	NO <sub>2</sub> + hv	→	O <sub>3</sub> P + NO	0.463E+00
002	O <sub>3</sub> + hv	→	O <sub>1</sub> D + O <sub>2</sub>	0.102E-02
003	O <sub>3</sub> + hv	→	O <sub>3</sub> P + O <sub>2</sub>	0.253E-01
004	HONO + hv	→	OH + NO	0.833E-01
005	HNO <sub>3</sub> + hv	→	OH + NO <sub>2</sub>	0.165E-04
006	HNO <sub>4</sub> + hv	→	HO <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub>	0.275E-03
007	NO <sub>3</sub> + hv	→	NO + O <sub>2</sub>	0.121E+01
008	NO <sub>3</sub> + hv	→	NO <sub>2</sub> + O <sub>3</sub> P	0.981E+01
009	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> + hv	→	OH + OH	0.340E-03
010	HCHO + hv	→	H <sub>2</sub> + CO	0.199E-02
011	HCHO + hv	→	HO <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub> + CO	0.131E-02
012	ALD + hv	→	MO <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub> + CO	0.213E-03
013	OP <sub>1</sub> + hv	→	HCHO + HO <sub>2</sub> + OH	0.334E-03
014	OP <sub>2</sub> + hv	→	ALD + HO <sub>2</sub> + OH	0.334E-03
015	PAA + hv	→	MO <sub>2</sub> + CO <sub>2</sub> + OH	0.953E-04
016	KET + hv	→	ACO <sub>3</sub> + ETHP	0.364E-04
017	GLY + hv	→	0.13 HCHO + 1.87 CO	0.299E-02
018	GLY + hv	→	0.45 HCHO + 1.55 CO + 0.80 HO <sub>2</sub>	0.310E-04
019	MGLY + hv	→	ACO <sub>3</sub> + HO <sub>2</sub> + CO	0.867E-04
020	DCB + hv	→	0.98 HO <sub>2</sub> + 0.02 ACO <sub>3</sub> + TCO <sub>3</sub>	0.258E-03
021	ONIT + hv	→	0.20 ALD + 0.80 KET + HO <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub>	0.477E-06

### Thermische Reaktionen

				Ratenkonstante**
001	O <sub>3</sub> P + O <sub>2</sub>	→	O <sub>3</sub>	0.221E+02
002	O <sub>3</sub> P + NO <sub>2</sub>	→	NO + O <sub>2</sub>	0.144E+05
003	O <sub>1</sub> D + N <sub>2</sub>	→	O <sub>3</sub> P + N <sub>2</sub>	0.384E+05
004	O <sub>1</sub> D + O <sub>2</sub>	→	O <sub>3</sub> P + O <sub>2</sub>	0.598E+05
005	O <sub>1</sub> D + H <sub>2</sub> O	→	OH + OH	0.325E+06
006	O <sub>3</sub> + NO	→	NO <sub>2</sub> + O <sub>2</sub>	0.270E+02
007	O <sub>3</sub> + OH	→	HO <sub>2</sub> + O <sub>2</sub>	0.101E+03
008	O <sub>3</sub> + HO <sub>2</sub>	→	OH + 2.00 O <sub>2</sub>	0.304E+01

009	HO2 + NO	→	NO2 + OH	0.122E+05
010	HO2 + NO2	→	HNO4	0.205E+04
011	HNO4	→	HO2 + NO2	0.526E+01
012	HO2 + HO2	→	H2O2	0.445E+04
013	HO2 + HO2 + H2O	→	H2O2	0.246E+00
014	H2O2 + OH	→	HO2 + H2O	0.249E+04
015	NO + OH	→	HONO	0.719E+04
016	NO + NO + O2	→	NO2 + NO2	0.710E-09
017	O3 + NO2	→	NO3	0.472E-01
018	NO3 + NO	→	NO2 + NO2	0.415E+05
019	NO3 + NO2	→	NO + NO2 + O2	0.597E+00
020	NO3 + HO2	→	HNO3 + O2	0.369E+04
021	NO3 + NO2	→	N2O5	0.187E+04
022	N2O5	→	NO2 + NO3	0.334E+01
023	N2O5 + H2O	→	2.00 HNO3	0.295E-05
024	OH + NO2	→	HNO3	0.169E+05
025	OH + HNO3	→	NO3 + H2O	0.217E+03
026	OH + HNO4	→	NO2 + H2O + O2	0.687E+04
027	OH + HO2	→	H2O + O2	0.147E+06
028	OH + SO2	→	SULF + HO2	0.131E+04
029	CO + OH	→	HO2 + CO2	0.355E+03
030	CH4 + OH	→	MO2 + H2O	0.125E+02
031	ETH + OH	→	ETHP + H2O	0.406E+03
032	HC3 + OH	→	0.83 HC3P + 0.17 HO2 + 0.009 HCHO + 0.075 ALD + 0.025 KET + H2O	0.192E+04
033	HC5 + OH	→	HC5P + 0.25 XO2 + H2O	0.714E+04
034	HC8 + OH	→	HC8P + 0.75 XO2 + H2O	0.150E+05
035	OL2 + OH	→	OL2P	0.126E+05
036	OLT + OH	→	OLT P	0.426E+05
037	OLI + OH	→	OLIP	0.996E+05
038	TOL + OH	→	0.75 TOLP + 0.25 CSL + 0.25 HO2	0.913E+04
039	XYL + OH	→	0.83 XYLP + 0.17 CSL + 0.17 HO2	0.412E+05
040	CSL + OH	→	0.10 HO2 + 0.90 XO2 + 0.90 TCO3 - 0.90 OH	0.591E+05
041	HCHO + OH	→	HO2 + CO + H2O	0.133E+05
042	ALD + OH	→	ACO3 + H2O	0.239E+05
043	KET + OH	→	KETP + H2O	0.146E+04
044	GLY + OH	→	HO2 + 2.00 CO + H2O	0.170E+05
045	MGLY + OH	→	ACO3 + CO + H2O	0.251E+05
046	DCB + OH	→	TCO3 + H2O	0.414E+05
047	OP1 + OH	→	0.50 MO2 + 0.50 HCHO + 0.50 OH	0.148E+05
048	OP2 + OH	→	0.50 HC3P + 0.50 ALD + 0.50 OH	0.148E+05
049	PAA + OH	→	ACO3 + H2O	0.148E+05

050	PAN + OH	→	HCHO + NO <sub>3</sub> + XO <sub>2</sub>	0.203E+03
051	ONIT + OH	→	HC <sub>3</sub> P + NO <sub>2</sub>	0.374E+04
052	ISO + OH	→	OLTP	0.148E+06
053	ACO <sub>3</sub> + NO <sub>2</sub>	→	PAN	0.759E+04
054	PAN	→	ACO <sub>3</sub> + NO <sub>2</sub>	0.219E-01
055	TCO <sub>3</sub> + NO <sub>2</sub>	→	TPAN	0.694E+04
056	TPAN	→	TCO <sub>3</sub> + NO <sub>2</sub>	0.219E-01
057	MO <sub>2</sub> + NO	→	HCHO + HO <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub>	0.113E+05
058	HC <sub>3</sub> P + NO	→	0.75 ALD + 0.25 KET + 0.09 HCHO + 0.036 ONIT + 0.964 NO <sub>2</sub> + 0.96 HO <sub>2</sub>	0.567E+04
060	HC <sub>5</sub> P + NO	→	0.38 ALD + 0.69 KET + 0.08 ONIT + 0.92 NO <sub>2</sub> + 0.92 HO <sub>2</sub>	0.567E+04
062	HC <sub>8</sub> P + NO	→	0.32 ALD + 1.06 KET + 0.04 HCHO + 0.24 ONIT + 0.76 NO <sub>2</sub> + 0.76 HO <sub>2</sub>	0.567E+04
064	OL <sub>2</sub> P + NO	→	1.60 HCHO + HO <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub> + 0.20 ALD	0.567E+04
065	OLTP + NO	→	ALD + HCHO + HO <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub>	0.567E+04
066	OLIP + NO	→	HO <sub>2</sub> + 1.45 ALD + 0.28 HCHO + 0.10 KET + NO <sub>2</sub>	0.567E+04
067	ACO <sub>3</sub> + NO	→	MO <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub>	0.113E+05
068	TCO <sub>3</sub> + NO	→	NO <sub>2</sub> + 0.92 HO <sub>2</sub> + 0.89 GLY + 0.11 MGLY + 0.05 ACO <sub>3</sub> + 0.95 CO + 2.00 XO <sub>2</sub>	0.378E+04
069	TOLP + NO	→	NO <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub> + 0.17 MGLY + 0.16 GLY + 0.70 DCB	0.567E+04
070	XYLP + NO	→	NO <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub> + 0.45 MGLY + 0.806 DCB	0.567E+04
071	ETHP + NO	→	ALD + HO <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub>	0.113E+05
072	KETP + NO	→	MGLY + NO <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub>	0.113E+05
073	OLN + NO	→	HCHO + ALD + 2.00 NO <sub>2</sub>	0.113E+05
074	HCHO + NO <sub>3</sub>	→	HO <sub>2</sub> + HNO <sub>3</sub> + CO	0.891E+00
075	ALD + NO <sub>3</sub>	→	ACO <sub>3</sub> + HNO <sub>3</sub>	0.353E+01
076	GLY + NO <sub>3</sub>	→	HNO <sub>3</sub> + HO <sub>2</sub> + 2.00 CO	0.891E+00
077	MGLY + NO <sub>3</sub>	→	HNO <sub>3</sub> + ACO <sub>3</sub> + CO	0.353E+01
078	DCB + NO <sub>3</sub>	→	HNO <sub>3</sub> + TCO <sub>3</sub>	0.353E+01
079	CSL + NO <sub>3</sub>	→	HNO <sub>3</sub> + XNO <sub>2</sub> + 0.50 CSL	0.325E+05
080	OL <sub>2</sub> + NO <sub>3</sub>	→	OLN	0.163E+00
081	OLT + NO <sub>3</sub>	→	OLN	0.256E+02
082	OLI + NO <sub>3</sub>	→	OLN	0.181E+04
083	ISO + NO <sub>3</sub>	→	OLN	0.858E+03
084	OL <sub>2</sub> + O <sub>3</sub>	→	HCHO + 0.42 CO + 0.40 ORA <sub>1</sub> + 0.12 HO <sub>2</sub>	0.129E-02

085	OLT + O3	→	0.53 HCHO + 0.50 ALD + 0.33 CO + 0.20 ORA1 + 0.20 ORA2 + 0.23 HO2 + 0.22 MO2 + 0.10 OH + 0.06 CH4	0.558E-02
086	OLI + O3	→	0.18 HCHO + 0.72 ALD + 0.10 KET + 0.23 CO + 0.06 ORA1 + 0.29 ORA2 + 0.09 CH4 + 0.26 HO2 + 0.31 MO2 + 0.14 OH	0.596E-01
087	ISO + O3	→	0.53 HCHO + 0.50 ALD + 0.33 CO + 0.20 ORA1 + 0.20 ORA2 + 0.23 HO2 + 0.22 MO2 + 0.10 OH	0.708E-02
088	HO2 + MO2	→	OP1	0.890E+04
089	HO2 + ETHP	→	OP2	0.890E+04
090	HO2 + HC3P	→	OP2	0.890E+04
091	HO2 + HC5P	→	OP2	0.890E+04
092	HO2 + HC8P	→	OP2	0.890E+04
093	HO2 + OL2P	→	OP2	0.890E+04
094	HO2 + OLTP	→	OP2	0.890E+04
095	HO2 + OLIP	→	OP2	0.890E+04
096	HO2 + KETP	→	OP2	0.890E+04
097	HO2 + ACO3	→	PAA	0.890E+04
098	HO2 + TOLP	→	OP2	0.890E+04
099	HO2 + XYLP	→	OP2	0.890E+04
100	HO2 + TCO3	→	OP2	0.890E+04
101	HO2 + OLN	→	ONIT	0.890E+04
102	MO2 + MO2	→	1.50 HCHO + HO2	0.587E+03
103	MO2 + ETHP	→	0.75 HCHO + HO2 + 0.75 ALD	0.432E+03
104	MO2 + HC3P	→	0.75 HCHO + HO2 + 0.15 ALD + 0.6 KET	0.649E+02
105	MO2 + HC5P	→	0.77 HCHO + HO2 + 0.41 ALD + 0.75 KET	0.525E+02
106	MO2 + HC8P	→	0.80 HCHO + HO2 + 0.46 ALD + 1.39 KET	0.448E+02
107	MO2 + OL2P	→	1.55 HCHO + HO2 + 0.35 ALD	0.432E+03
108	MO2 + OLTP	→	1.25 HCHO + HO2 + 0.75 ALD	0.432E+03
109	MO2 + OLIP	→	0.89 HCHO + HO2 + 0.73 ALD + 0.55 KET	0.263E+02
110	MO2 + KETP	→	0.75 HCHO + HO2 + 0.75 MGLY	0.525E+02
111	MO2 + ACO3	→	HCHO + 0.50 HO2 + 0.50 MO2 + 0.50 ORA2	0.148E+04

112	MO2 + TOLP	→	HCHO + 2.00 HO2 + 0.17 MGLY + 0.16 GLY + 0.70 DCB	0.263E+02
113	MO2 + XYLP	→	HCHO + 2.00 HO2 + 0.45 MGLY + 0.806 DCB	0.263E+02
114	MO2 + TCO3	→	0.50 HCHO + 0.50 ORA2 + 0.445 GLY + 0.055 MGLY + 0.025 ACO3 + 0.475 CO + 0.46 HO2 + XO2	0.989E+03
138	MO2 + OLN	→	1.75 HCHO + .5HO2 + ALD + NO2	0.263E+02
115	ETHP + ACO3	→	ALD + 0.50 HO2 + 0.50 MO2 + 0.50 ORA2	0.525E+03
116	HC3P + ACO3	→	0.2 ALD + 0.8 KET + 0.50 HO2 + 0.50 ORA2 + 0.50 MO2	0.154E+03
117	HC5P + ACO3	→	0.14 ALD + 0.75 KET + 0.50 HO2 + 0.50 ORA2 + 0.50 MO2	0.130E+03
118	HC8P + ACO3	→	0.1 ALD + 0.9 KET + 0.50 HO2 + 0.50 ORA2 + 0.50 MO2	0.111E+03
119	OL2P + ACO3	→	0.80 HCHO + 0.60 ALD + 0.50 HO2 + 0.50 ORA2 + 0.50 MO2	0.525E+03
120	OLTP + ACO3	→	ALD + 0.50 HCHO + 0.50 HO2 + 0.50 ORA2 + 0.50 MO2	0.525E+03
121	OLIP + ACO3	→	0.725 ALD + 0.55 KET + 0.14 HCHO + 0.50 HO2 + 0.50 MO2 + 0.50 ORA2	0.649E+02
122	KETP + ACO3	→	MGLY + 0.50 HO2 + 0.50 ORA2 + 0.50 MO2	0.649E+02
123	ACO3 + ACO3	→	2.00 MO2	0.368E+04
124	ACO3 + TOLP	→	0.8 MGLY + 0.2 GLY + 0.70 DCB + HO2+ MO2	0.649E+02
125	ACO3 + XYLP	→	MO2 + MGLY + 0.806 DCB + HO2	0.649E+02
126	ACO3 + TCO3	→	MO2 + 0.92 HO2 + 0.89 GLY + 0.11 MGLY + 0.05 ACO3 + 0.95 CO + 2.00 XO2	0.223E+04
127	XO2 + HO2	→	OP2	0.890E+04
128	XO2 + MO2	→	HCHO + HO2	0.525E+02
129	XO2 + ACO3	→	MO2	0.130E+03
130	XO2 + XO2	→		0.111E+01
131	XO2 + NO	→	NO2	0.113E+05

132	XNO <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub>	→	ONIT	0.113E+05
133	XNO <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub>	→	OP <sub>2</sub>	0.890E+04
134	XNO <sub>2</sub> + MO <sub>2</sub>	→	HCHO + HO <sub>2</sub>	0.525E+02
135	XNO <sub>2</sub> + ACO <sub>3</sub>	→	MO <sub>2</sub>	0.130E+03
136	XNO <sub>2</sub> + XNO <sub>2</sub>	→		0.111E+01
139	ACO <sub>3</sub> + OLN	→	HCHO + ALD + 0.50 ORA <sub>2</sub> + NO <sub>2</sub> + 0.50 MO <sub>2</sub>	0.649E+02
140	OLN + OLN	→	2.00 HCHO + 2.00 ALD + 2.00 NO <sub>2</sub>	0.111E+01

\* Die Photolyserraten wurden berechnet für Meereshöhe am 21. Juni, 40° N und einem Zenitwinkel von 40°.

\*\* Die Ratenkonstanten gelten für den Standarddruck von 1 atm und einer Temperatur von 298 K. Sie sind in Einheiten von  $\text{ppm}^{-1} \text{min}^{-1}$  für eine Reaktion zweiter Ordnung und  $\text{ppm}^{-2} \text{min}^{-1}$  für eine Reaktion dritter Ordnung dargestellt.



## Anhang C: Das Bodenmodell in FOOT3DK

Der Bodenwärmestrom  $B$  wird im Modell FOOT3DK mit dem Extended-Force-Restore-Modell (EFR) nach JACOBSEN & HEISE (1982) berechnet, das eine Weiterentwicklung des Force-Restore-Konzeptes (FR — siehe z.B. BHUMRAKAR 1975) darstellt.

$B$  kann über einen Gradientansatz aus der vertikalen Temperaturverteilung im Erdboden abgeleitet werden:

$$B = -\lambda \partial_z T \quad (\text{C.1})$$

Die Änderung des Temperaturprofils im Erdboden ergibt sich aus der Wärmetransportgleichung unter Vernachlässigung der horizontalen Energieflüsse:

$$\rho c \partial_t T = -\partial_z B = -\partial_z (\lambda \partial_z T) \quad (\text{C.2})$$

Hierbei ist zu beachten, dass die Vertikalkoordinate  $z$  im Boden so definiert ist, dass sie nach unten zunimmt.

FR-Modelle vereinfachen die Behandlung der Energiebilanz am Erdboden in zweierlei Hinsicht. Zum einen wird auf ein aufwendiges mehrschichtiges Modell zur zeitlichen Integration von (C.2) verzichtet und stattdessen nur eine Bodenschicht betrachtet. Zum anderen wird der Bodenwärmestrom nicht aus (C.1) abgeleitet, sondern als Residuum der Energiebilanzgleichung bestimmt:

$$B = Q - H - E \quad (\text{C.3})$$

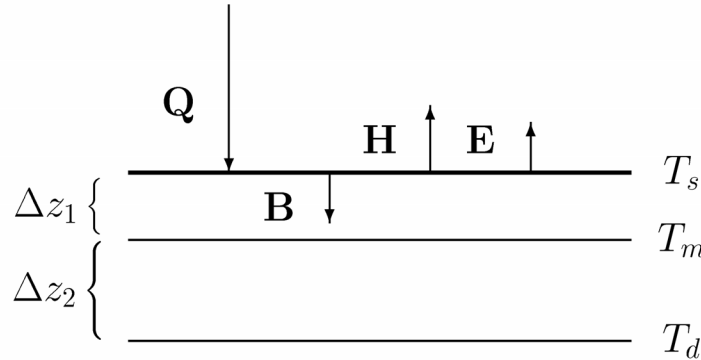
Damit werden iterative Verfahren für die Oberflächentemperatur umgangen, die notwendig werden, wenn die unabhängig voneinander bestimmten Komponenten der Energiebilanz die Gleichung (C.3) nicht erfüllen.

Über die Eindringtiefe  $D$  der Tageswelle ( $\omega_d = 2\pi / d$ )

$$D = \sqrt{\frac{2\lambda}{\rho c \omega_d}} \quad (\text{C.4})$$

kann die Schichtdicke des FR-Modells so optimiert werden, dass es für eine Sinuswelle des Bodenwärmestroms mit  $\tau = 1$  d die Oberflächentemperatur  $T_s$  ohne Amplituden- oder Phasenfehler wiedergibt. Um den Fehler des Modells auch für den Antrieb mit einer anderen Frequenz (z.B. Jahresgang) gering zu halten, hat DEARDORFF (1978) das FR-Modell um eine prognostische Gleichung für die Temperatur am Unterrand der Schicht erweitert.

Jacobsen & Heise (1982) haben diesen Ansatz abermals erweitert, um den Amplituden- und Phasenfehler zu minimieren und den Gleichungssatz auf eine Form zu bringen, die einem Zweischichten-Modell entspricht (siehe Abbildung C.1).



**Abbildung C.1:** Skizze der Vertikalstruktur des Bodenmodells.

Die Bestimmungsgleichungen des EFR-Modells für die Temperaturtendenzen an der Oberfläche und zwischen den beiden Bodenschichten lauten

$$\partial_t \vartheta_s = -\alpha_s \vartheta_s + \beta_s \vartheta_m + \gamma_s B \quad (\text{C.5})$$

$$\partial_t \vartheta_m = -\alpha_m \vartheta_m + \beta_m \vartheta_s \quad (\text{C.6})$$

mit

$$\vartheta_s = T_s - T_d \quad (\text{C.7})$$

$$\vartheta_m = T_m - T_d \quad (\text{C.8})$$

$$T_d = \text{const.} \quad (\text{C.9})$$

$$\alpha_s = \omega_1 + \omega_2 + \sqrt{\omega_1 \omega_2} \quad (\text{C.10})$$

$$\alpha_m = \sqrt{\omega_1 \omega_2} \quad (\text{C.11})$$

$$\beta^2 = \beta_s \beta_m = (\omega_1 + \omega_2) \sqrt{\omega_1 \omega_2} \quad (\text{C.12})$$

$$\gamma_s = \frac{2}{\rho c} \left( \frac{1}{D_1} + \frac{1}{D_2} \right) \quad (\text{C.13})$$

Das Verhältnis der Koeffizienten  $\beta_s$  und  $\beta_m$  ist dabei beliebig, wird aber so gewählt, dass die Temperaturen  $T_m$  und  $T_d$  physikalisch den Tiefen  $\Delta z_1$  und  $\Delta z_1 + \Delta z_2$  zugeordnet werden können.

$$\delta = \sqrt{\omega_1 / \omega_2} \quad (\text{C.14})$$

$$\Delta z_1 = \frac{D_1}{1 + \delta} \quad (\text{C.15})$$

$$\Delta z_2 = \frac{\Delta z_1}{\delta} \left[ \frac{1 + \delta + \delta^2}{\sqrt{1 + \delta^2}} e^{\frac{\delta}{1+\delta}} - \delta \right] \quad (\text{C.16})$$

$$\beta_s = \omega_1 \sqrt{1 + \delta^2} e^{\frac{\delta}{1+\delta}} \quad (\text{C.17})$$

$$\beta_m = \omega_1 \delta \sqrt{1 + \delta^2} e^{-\frac{\delta}{1+\delta}} \quad (\text{C.18})$$

Ursprünglich ist das EFR-Modell für eine gute Wiedergabe der Tageswelle ( $\tau_1 = 1 \text{ d}$ ) und einer längerfristigen synoptischen ( $\tau_2 \approx 5 \text{ d}$ ) oder jährlichen ( $\tau_2 = 1 \text{ a}$ ) Welle konzipiert, kann aber grundsätzlich auch mit anderen Kombinationen von  $\tau_1$  und  $\tau_2$  betrieben werden.

Da FOOT3DK vor allem für kurze Prognosezeiträume ( $\approx 1 \text{ d}$ ) konzipiert wurde, ist das Bodenmodell so konfiguriert, dass eine gute Wiedergabe von Effekten mit kürzerer Frist gewährleistet ist. Die gewählten Zeitskalen betragen hier  $\tau_1 = 3 \text{ h}$  und  $\tau_2 = 1 \text{ d}$ .

Die prognostische Behandlung der Bodenfeuchte stützt sich ebenfalls auf das Force-Restore-Konzept. Sie basiert auf dem Bodenmodell von NOILHAN & PLANTON (1989), wobei zur Anpassung an die Struktur von FOOT3DK geringfügige Änderungen vorgenommen wurden.

Als prognostische Größen werden der Wassergehalt in einer dünnen Oberflächenschicht des Bodens  $W_g$ , einer mittleren Bodenschicht  $W_2$  sowie die Zwischenspeicherung des Wassers auf Pflanzenoberflächen  $W_r$  betrachtet. Aufgrund der Einteilung des Bodenwassergehaltes in  $W_g$  und  $W_2$  werden sowohl schnelle Fluktuationen im oberflächennächsten Wassergehalt bis in den Minutenbereich (z.B. durch Niederschlag) als auch der Tagesgang des Bodenwassergehaltes erfasst. Als wesentliche Elemente (*siehe Abbildung 3.2*) enthält die Modellkomponente die Zusammenhänge zwischen den Speichertermen  $W_g$ ,  $W_2$  und  $W_r$  und den Oberflächen-Feuchteflüssen  $E_g$  (Verdunstung aus dem Boden),  $E_r$  (Verdunstung von Pflanzenoberflächen) und  $E_{tr}$  (Evapo-Transpiration der Pflanzen) sowie der Niederschlagsrate  $P$ .  $W_g$  ist dabei nicht nur von der Oberflächen-Feuchtebilanz abhängig, sondern auch über einen Restore-Term  $R$  an  $W_2$  gekoppelt. Dieser beschreibt den Wasseraustausch zwischen den Schichten  $d_g$  und  $d_2$ . Die turbulenten Flüsse werden ihrerseits von  $W_g$ ,  $W_2$  und  $W_r$  beeinflusst. Die Tendenzgleichungen für  $W_g$  und  $W_2$  lauten:

$$\partial W_g = \frac{C_1}{\rho_w d_g} (P_g - E_g) - \frac{C_2}{\tau} (W_g - W_{geq}) \quad 0 \leq W_g \leq W_{sat} \quad (\text{C.19})$$

$$\partial_t W_2 = \frac{1}{\rho_w d_2} (P_g - E_g - E_{tr}) \quad 0 < W_2 \leq W_{sat} \quad (\text{C.20})$$

Dabei sind  $W_g$  und  $W_2$  durch den (bodentypabhängigen, vgl. *Tabelle C.1*) Sättigungswert des Bodens  $W_{max}$  begrenzt.  $\rho_w$  bezeichnet die Dichte des Wassers,  $P_g$  den Niederschlagsanteil, der den Erdboden erreicht. Die Koeffizienten  $C_1$  für den Force-Term und  $C_2$  für den Restore-Term in (C.19) sind wie folgt definiert:

$$C_1 = C_{1\,sat} \left( \frac{W_{sat}}{E_g} \right)^{\frac{b}{2}+1} \quad (\text{C.21})$$

$$C_2 = C_{2\,ref} \left( \frac{W_2}{W_{sat} - W_2 + 10^{-2}} \right) \quad (\text{C.22})$$

Die Koeffizienten  $C_{1\,sat}$ ,  $C_{2\,ref}$  und  $b$  hängen hierbei vom Bodentyp ab (vgl. *Tabelle C.1*). Der Zahlenwert  $10^{-2}$  in (C.22) dient der Beschränkung von  $C_2$  im Sättigungsbereich von  $W_2$ . Die Konstanten in (C.19) und (C.20) haben die Werte  $d_g = 9$  cm,  $d_2 = 1$  m und  $\tau = 1$  d. Für den Gleichgewichts-Wassergehalt  $W_{geq}$ , bei dem der Restore-Term in (C.19) verschwindet, gilt folgende empirische Beziehung:

$$\frac{W_{geq}}{W_{sat}} = a \left( \frac{W_2}{W_{sat}} \right)^p \left( 1 - \left( \frac{W_2}{W_{sat}} \right)^{8p} \right) \quad (\text{C.23})$$

Hierbei sind  $a$  und  $p$  wiederum bodentypabhängige Koeffizienten (vgl. *Tabelle C.1*).

Bodentyp Kennzahl	Fels 2	Sand 3	Sandlehm 4	Lehm 5	Tonlehm 6	Ton 7	Torf 8
$W_{sat} \left[ \frac{\text{cm}^3}{\text{cm}^3} \right]$	$10^{-3}$	0.395	0.435	0.451	0.477	0.482	0.863
$W_{wilt} \left[ \frac{\text{cm}^3}{\text{cm}^3} \right]$	$10^{-4}$	0.0677	0.1142	0.1547	0.22	0.2864	0.3947
$\Psi_{sat}$ [m]	- 1.0	- 0.12	- 0.218	- 0.478	- 0.45	- 0.405	- 0.356
$C_{1sat}$ [-]	$10^{-3}$	0.082	0.132	0.191	0.23	0.342	0.25
$C_{2ref}$ [-]	$10^{-3}$	3.1	1.8	0.8	0.6	0.3	0.8
$a$ [-]	1.0	0.387	0.219	0.148	0.11	0.083	0.1
$b$ [-]	1.0	4.05	4.9	5.39	7.5	11.4	8.0
$p$ [-]	1.0	4.0	4.0	6.0	8.0	12.0	12.0

**Tabelle C.1:** Bodentypabhängige Parameter.

Die Tendenzgleichung für den Wassergehalt in der Pflanzenschicht  $W_r$  lautet:

$$\partial_t W_r = P_r - E_r \quad 0 < W_r \leq W_{r \max} \quad (\text{C.24})$$

Der maximal mögliche Wassergehalt der Pflanzenschicht wird angegeben durch  $W_{r \max} = 0.2 \text{ veg } LAI$  [kg/m<sup>2</sup>]. Hierbei bezeichnen *veg* den Grad der Vegetationsbedeckung und *LAI* den Blattflächenindex (d.h. das Verhältnis von Blattoberfläche zur vegetationsbedeckten Grundfläche). *veg* und *LAI* sind landnutzungsabhängig. Sie werden dem Modell mit einem Kataster, das u.a. auch die Orographiehöhen enthält, vorgegeben. Sie gelten für mitteleuropäische, nontalpine Verhältnisse. Sommerwerte werden vom 22. April bis 8. Oktober verwendet, Winterwerte vom 22. Oktober bis 8. April. In der jeweils zweiwöchigen Übergangsphase wird zwischen Winter- und Sommerwerten linear interpoliert. Anhand des Vegetations-Bedeckungsgrades ist der Niederschlag  $P$  in  $P_r = \text{veg } P$  für die Vegetation und  $P_g = P - P_r = (1 - \text{veg}) P$  für den vegetationsfreien Boden zerlegbar.

Die prognostische Behandlung der Bodenfeuchte ermöglicht die vom sensiblen Wärmefluss unabhängige Parametrisierung des Flusses latenter Wärme  $E$ . Hierzu wird  $E$  in die Teilflüsse  $E_g$  (Bodenanteil),  $E_r$  (Vegetations-Oberflächenanteil) und  $E_{tr}$  (Anteil der Pflanzen-Evaporation) zerlegt:

$$E = E_g + E_r + E_{tr} \quad (\text{C.25})$$

Die Teilflüsse werden über die folgenden Beziehungen parametrisiert:

$$E_g = (1 - \text{veg}) \rho L_v \frac{1}{R_a} (h_u q_s(T_s) - q_1) \quad (\text{C.26})$$

$$E_r = \text{veg} \rho L_v \frac{\delta_r}{R_a} (q_s(T_s) - q_1) \quad (\text{C.27})$$

$$E_{tr} = \text{veg} \rho L_v \frac{1 - \delta_r}{R_a + R_s} (q_s(T_s) - q_1) \quad (\text{C.28})$$

Hierbei beschreiben die beiden Faktoren  $h_u$  und  $\delta_r$  den Einfluss von  $W_g$  und  $W_r$  auf  $E_g$  und  $E_r$ :

$$h_u = \begin{cases} \frac{1}{2} \left( 1 - \cos \left( \pi \frac{W_g}{W_{fl}} \right) \right) & : W_g \leq W_{fl} \\ 1 & : W_g > W_{fl} \end{cases} \quad (\text{C.29})$$

$$\delta_r = \left( \frac{W_r}{W_{r\max}} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (\text{C.30})$$

$W_{fl} = 0.75 W_{sat}$  wird üblicherweise als Feldkapazität bezeichnet. Alle drei Flussanteile sind abhängig von der potentiellen Verdunstung  $q_s(T_s) - q_l$ , wobei  $q_s(T_s)$  die spezifische Sättigungsfeuchte am Boden und  $q_l$  die spezifische Feuchte in der untersten Luftschicht bezeichnen, sowie vom aerodynamischen Widerstand  $R_a$ . Die Evapotranspiration hängt zusätzlich von stomatalen Widerstand  $R_s$  ab:

$$R_s = \min \left( R_{s\max}, \frac{R_{s\min}}{LAI} F_1 F_2^{-1} F_3^{-1} F_4^{-1} \right) \quad (\text{C.31})$$

Dabei ist der minimale stomatale Widerstand  $R_{s\min}$  vom Vegetationstyp abhängig. Der maximale stomatale Widerstand  $R_{s\max}$  hat den einheitlichen Wert  $5000 \text{ s m}^{-1}$ . Durch die Faktoren  $F_1$  bis  $F_4$  werden die Einflüsse von Strahlung, Bodenwassergehalt, Luftfeuchte und Lufttemperatur auf das Verhalten der Stomata parametrisiert. Der Strahlungseinfluss ist durch  $F_1$  wie folgt formuliert:

$$F_1 = \frac{1 + f}{f + \frac{R_{s\min}}{R_{s\max}}} \quad (\text{C.32})$$

$$f = \frac{1.1 Q_s}{LAI Q_{sl}} \quad (\text{C.33})$$

Dabei ist  $Q_{sl}$  als Begrenzungsfaktor des Strahlungseinflusses (Strahlungsbeiwert) ebenfalls vegetationsabhängig. Der Einfluss des Bodenwassergehalts ist in  $F_2$  zusammengefasst:

$$F_2 = \begin{cases} 1 & : W_2 > W_{fl} \\ \frac{W_2 - W_{wilt}}{W_{fl} - W_{wilt}} & : W_{wilt} < W_2 \leq W_{fl} \\ 0 & : W_2 \leq W_{wilt} \end{cases} \quad (\text{C.34})$$

Hierbei bedeutet  $W_{wilt}$  den Welkepunkt, d.h. die Schwelle, unterhalb derer die Vegetation kein Wasser aus dem Boden ziehen kann. Sie ist abhängig vom Bodentyp (vgl. *Tabelle C.1*). Durch  $F_3$  wird der Einfluss des atmosphärischen Sättigungsdefizits parametrisiert:

$$F_3 = \frac{1}{1 + 0.0004 Pa^{-1} p_s (q_s(T_s) - q_l)} \quad (\text{C.35})$$

Schließlich gibt  $F_4$  den Einfluss der Lufttemperatur auf  $R_s$  wieder:

$$F_4 = 1 - 0.0016 K^{-2} (298 K - T_1)^2 \quad (\text{C.36})$$

Die prognostische Behandlung der Bodenfeuchte ermöglicht auch, den Einfluss des Bodenwassergehalts auf die Wärmekapazität  $c$  und die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  des Bodens in folgender Form zu berücksichtigen (vgl. z.B. PIELKE 1984):

$$c = (1 - W_{sat}) c_i + W_2 c_{H_2O} \quad (\text{C.37})$$

$$\lambda = \begin{cases} 418 \exp[-(\log|\psi| + 2.7)] & : \log|\psi| \leq 5.1 \\ 0.171 J s^{-1} m^{-1} K^{-1} & : \log|\psi| > 5.1 \end{cases} \quad (\text{C.38})$$

Dabei bezeichnet  $c_i$  die Wärmekapazität des kompakten Bodens, die in FOOT3DK in Abhängigkeit von der Landnutzung bestimmt wird.  $\psi$  bezeichnet das hydraulische Potential und errechnet sich aus:

$$\psi = \psi_{sat} \left( \frac{W_{sat}}{W_2} \right)^b \quad (\text{C.39})$$

Hierbei ist  $\psi_{sat}$  wiederum ein bodentypabhängiger Parameter (vgl. *Tabelle C.1*).

Eine ausführliche Beschreibung des Bodenfeuchtemodells ist NOILHAN & PLANTON (1989) zu entnehmen. Weitere Informationen zum Modell FOOT3DK finden sich bei BRÜCHER *et al.* (2003).

# Danksagung

An erster Stelle möchte ich Herrn Prof. Dr. M. J. Kerschgens für die Vergabe dieser interessanten Arbeit sowie die Anregungen und Diskussionen während der Betreuung danken. Herrn Prof. Dr. P. Speth danke ich für die Übernahme des Korreferats.

Darüber hinaus gilt mein Dank den Mitarbeitern des Landesumweltamtes NRW in Essen sowie der EURAD-Gruppe, die mir nicht nur die für diese Arbeit benötigten Eingangsdaten zur Verfügung gestellt haben, sondern auch für diesbezügliche Fragen stets hilfsbereite Ansprechpartner waren.

Den Mitarbeitern des Regionalen Rechenzentrums der Universität zu Köln und insbesondere Herrn Dipl.-Phys. V. Winkelmann danke ich für die Bereitstellung von Rechenzeit auf den zentralen Serversystemen sowie für die Unterstützung bei der Bewältigung der von mir erzeugten Datenmengen.

Weiterhin möchte ich mich bei allen jetzigen und ehemaligen KollegInnen bedanken, sowohl aus der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. M. J. Kerschgens als auch aus den oberen Etagen des Instituts, die für eine angenehme Arbeitsatmosphäre gesorgt haben.

Mein ganz persönlicher Dank richtet sich an meine beiden Mitstreiter von der SFB-Arbeitsgruppe B3: Herrn Dipl.-Phys. Nils Eissfeldt, der die Berechnungen mit dem dynamischen Verkehrsmodell FASTLANE durchgeführt hat, und Herrn Dipl.-Phys. Martin Lubrichs, der mir die Daten der regionalen EURAD-Modellkette zur Verfügung gestellt hat. Wir waren ein tolles Team und unsere B3-Treffen waren stets eine Quelle neuer Ideen und Impulse.

Zu guter Letzt bedanke ich mich bei meiner Familie und meinen Freunden und ganz besonders bei meinem Mann Martin Kloock, der mich auch in stressigen Phasen ertragen, mich bei allem unterstützt und immer wieder neu motiviert hat.

Diese Arbeit entstand im Rahmen des Sonderforschungsbereiches 419 und wurde zuletzt im Rahmen des Forschungsvorhabens KE 594/4-1 von der DFG gefördert.



**Mitteilungen des Instituts für Geophysik und Meteorologie  
Universität zu Köln**

zuletzt erschienen:

- Heft 137 Müller, Martin  
Elektromagnetik an Vulkanen – Die Anwendung der Long-Offset Transient Electromagnetics (LOTEM) Methode an den Vulkanen Vesuv (Italien) und Merapi (Java, Indonesien) (2000)
- Heft 138 Saur, Joachim  
Plasma Interaction of Io and Europa with the Jovian Magnetosphere (2000)
- Heft 139 Tokano, Tetsuya  
Simulation of Titan's Atmosphere by a General Circulation Model (2000)
- Heft 140 Petrat, Lutz  
Zweidimensionale Inversion von Long Offset Transient Electromagnetics-Daten (2000)
- Heft 141 Baier, Frank  
Entwicklung und Anwendung eines adjungierten Modells zur Simulation des Ozonhaushaltes der Stratosphäre während realer Episoden (2000)
- Heft 142 Rätz, Stefan  
Ein dreidimensionales Finite Elemente Programm zur Simulation elektromagnetischer Oberflächen- und Bohrlochverfahren (2000)
- Heft 143 Helwig, Stefan L.  
VIBROTEM – Ein Vergleich zu Long-Offset Transient Electromagnetic (LOTEM) in Theorie und Praxis (2000)
- Heft 144 Sogalla, Martin und Kerschgens, Michael  
Berechnung lokaler Niederschlagsfelder zur Parameterisierung der nassen Deposition auf der Basis größer-skaliger Wettervorhersagemodelle (2001)
- Heft 145 Kunz, Heike  
Der Einfluss von Fronten auf das Ozonbudget der mittleren und unteren Troposphäre – Fallstudie mittels objektiver Frontenanalyse – (2001)
- Heft 146 Klawa, Matthias  
Extreme Sturmereignisse in Deutschland: Entwicklung, Zusammenhang mit der Nordatlantischen Oszillation und Auswirkungen auf die Versicherungswirtschaft (2001)
- Heft 147 Hönig, Mark  
Entwicklung und Anwendung von Auswertalgorithmen für die induzierte Polarisation im Zeitbereich in bis zu drei Dimensionen (2002)

- Heft 148 Raddatz, Thomas  
Hoch- und ultrahochfrequente Variabilität im nordhemisphärischen Winter (2002)
- Heft 149 Krüger, Andreas  
Statistische Regionalisierung des Niederschlags für Nordrhein-Westfalen auf Grundlage von Beobachtungsdaten und Klimaszenarien (2002)
- Heft 150 Recher, Stephan  
Drei-dimensionale Erkundung von Altlasten mit Radiomagnetotellurik (2002)
- Heft 151 Ginete Pinto, Joaquim Jose  
Influence of large-scale atmospheric circulation and baroclinic waves on the variability of Mediterranean rainfall (2002)
- Heft 152 Knippertz, Peter  
Niederschlagsvariabilität in Nordwestafrika und der Zusammenhang mit der großskaligen atmosphärischen Zirkulation und der synoptischen Aktivität (2003)
- Heft 153 Heibey, Walter  
Das Weltraumwetter jenseits der Erdbahn (2003)
- Heft 154 Reiner, Andreas  
Synoptische Wellenstörungen und mesoskalige Konvektionsniederschläge in der westafrikanischen Sahel- und Sudanzone (2003)
- Heft 155 Klasen, Dagmar  
Variational assimilation of stratospheric remote sounding data by an adjoint chemistry-transport-model (2003)
- Heft 156 von Oertzen, Jörg  
Global modelling of comets: Nucleus, neutral and ionized coma of comets 67P/Churyumov-Gerasimenko and 46P/Wirtanen (2003)
- Heft 157 Commer, Michael  
Three-dimensional inversion of transient electromagnetic data: A comparative study (2004)
- Heft 158 Reiner, Peggy  
Einfluss der Vertikalverteilung des Wasserdampfes auf den Lebenszyklus intrasaisonaler Konvektionsschwankungen über dem tropischen Indopazifik (2004)
- Heft 159 Sentuc, Florence-Nathalie  
Der Einfluss lokaler Verkehrsemissionen auf die Immissionssituation im Großraum Köln – Episoden- und Szenariensimulationen mit einem genesteten Modellsystem – (2004)

## Erklärung

Ich versichere, dass ich die von mir vorgelegte Dissertation selbstständig angefertigt, die benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben und die Stellen der Arbeit – einschließlich Tabellen, Karten und Abbildungen –, die anderen Werken im Wortlaut oder dem Sinn nach entnommen sind, in jedem Einzelfall als Entlehnung kenntlich gemacht habe; dass diese Dissertation noch keiner anderen Fakultät oder Universität zur Prüfung vorgelegen hat; dass sie – abgesehen von unten angegebenen Teilpublikationen – noch nicht veröffentlicht worden ist sowie, dass ich eine solche Veröffentlichung vor Abschluss des Promotionsverfahrens nicht vornehmen werde.

Die Bestimmungen dieser Promotionsordnung sind mir bekannt. Die von mir vorgelegte Dissertation ist von Herrn Prof. Dr. Michael J. Kerschgens betreut worden.

*Florence-Nathalie Sentuc*

### **Teilpublikationen:**

#### Tagungsbeitrag:

F.-N. Sentuc, N. Eissfeldt, M. Luberichs, M. Kerschgens, R. Schrader, A. Ebel: Investigating the Impact of Traffic Based Emissions on Urban Air Pollution with a Nested Model System, published 2002 in: Proceedings of the Fourth Symposium on the Urban Environment in Norfolk, Virginia (USA), p. 225-226. Issued by the American Meteorological Society, Boston, USA, DAAMEN (VT) 5/02-550, 2002.