

Meteorologische Einflüsse auf die Konzentrationen feiner und grober atmosphärischer Aerosolpartikel in Deutschland

Von der Fakultät für Physik und Geowissenschaften
der Universität Leipzig
genehmigte

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

Doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)

vorgelegt von Diplom-Meteorologin Christa Engler
geboren am 21. Dezember 1980 in Bernburg

Gutachter: Prof. Dr. A. Wiedensohler
Prof. Dr. P.J.H. Builtjes

Tag der Verleihung: 17. Februar 2014

Diese Arbeit wurde gefördert durch das
Stipendienprogramm der Deutschen Bundesstiftung Umwelt (DBU)
unter dem Aktenzeichen AZ 20006/856.

Sie wurde angefertigt am
Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS),
Permoserstraße 15, 04318 Leipzig
unter der Betreuung durch
Prof. Alfred Wiedensohler und Dr. Wolfram Birmili.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Theoretischer Hintergrund	9
2.1. Quellen und Senken des urbanen und regionalen Aerosols	9
2.2. Feinstaub PM ₁₀ : gesetzliche Regelungen, Eigenschaften und Gesundheitseffekte	12
2.3. Meteorologische Aspekte im Zusammenhang mit Schadstoffen: Grundzüge der Grenzschichtmeteorologie	16
2.4. Rückwärtstrajektorien und Clusteranalyse	19
2.5. Schadstoffausbreitung: regionale Modellierung und Modellevaluierungen	21
3. Datensätze und Methoden	27
3.1. Datensätze	27
3.1.1. PM Massenkonzentrationen in Leipzig	27
3.1.2. PM Massenkonzentrationen deutschlandweit	29
3.1.3. Datensatz für den Modellvergleich	31
3.2. Datenauswertung	33
3.2.1. Das Verkehrs-Inkrement	33
3.2.2. Rückwärtstrajektorien-Clusteranalyse	34
4. Das Modellsystem COSMO-MUSCAT	37
4.1. Modellbeschreibung COSMO-MUSCAT	37
4.2. Setup	39
4.3. Beschreibung des Aerosolmoduls ext-M7	42
5. Die städtische PM₁₀ Belastung am Beispiel der Stadt Leipzig	47
5.1. Phänomenologie von PM ₁₀ in Leipzig	48
5.1.1. Grundlegendes Verhalten von PM ₁₀ in Leipzig	48
5.1.2. Überschreitungen des Tagesmittel-Grenzwertes	51
5.1.3. Saisonale Effekte	53
5.1.4. Chemische Zusammensetzung der ländlichen PM ₁₀ Hintergrundkonzentration	55
5.1.5. Meteorologische Einflüsse	56

5.2.	Rückwärtstrajektorien-Clusteranalyse	59
5.2.1.	Charakterisierung der Cluster	60
5.2.2.	PM ₁₀ Niveaus	60
5.2.3.	Beziehung zu Meteorologie und Spurengasen	61
5.2.4.	Chemische Zusammensetzung von PM ₁₀ im ländlichen Hinter- grund	63
5.3.	Diskussion der Ergebnisse für die Stadt Leipzig	65
5.3.1.	Lokale und regionale Beiträge	65
5.3.2.	Parallelen in Europa	65
5.3.3.	Ausblick	66
6.	Die regionale PM₁₀ Belastung in Deutschland	69
6.1.	Das Verkehrsinkrement	70
6.2.	Ergebnisse der Clusteranalyse	70
6.2.1.	meteorologische Beschreibung der einzelnen Cluster	72
6.2.2.	Die PM ₁₀ Belastung bei den unterschiedlichen Wetterlagen	74
6.2.3.	Überschreitungen des PM ₁₀ Grenzwertes	77
6.3.	Schlussfolgerungen	79
7.	Die regionale Belastung mit Schadstoffen	81
7.1.	Modellvergleich mit massenbasiertem Schema	81
7.2.	Emissionsparametrisierung	83
7.3.	Meteorologische Charakterisierung der Vergleichsepisode	85
7.4.	Validierung des Aerosol-Mikrophysik-Moduls ext-M7	89
7.4.1.	Vergleich von Partikelvolumen V_p -anzahl N und PM: R1 und R2 mit ext-M7	89
7.4.2.	Vergleich von Partikelvolumen V_p -anzahl N und Partikeldurch- messer D_p : R3 mit ext-M7	94
7.4.3.	Vergleich von Partikelvolumen V_p -anzahl N , Partikeldurchmes- ser D_p und chemischer Zusammensetzung: R4 mit ext-M7	97
7.5.	Fazit	106
8.	Zusammenfassung und Ausblick	107
	Referenzen	113
	A. Messtechnik	133
	B. Ergänzende Grafiken und Tabellen zu Kapitel 6	137
	C. Ergänzende Grafiken und Tabellen zu Kapitel 7	143
	Abbildungsverzeichnis	147

Tabellenverzeichnis	149
Abkürzungen	151
Symbole	155

1 Einleitung

Partikelförmige Feststoffe oder Flüssigkeiten, welche sich im luftgetragenen Zustand in der Atmosphäre befinden jedoch nicht überwiegend aus Wasser bestehen, werden als atmosphärische Aerosolpartikel bezeichnet. Diese können durch ein breites Spektrum natürlicher oder anthropogener Emissionen, regional oder global und mit unterschiedlich hohen Anzahl- oder Massenkonzentrationen in die Atmosphäre freigesetzt werden. Je nach Art, Stärke und räumlicher Anordnung dieser Quellen entsteht eine räumlich und zeitlich stark variable Verteilung atmosphärischer Partikel mit unterschiedlichen Eigenschaften. Durch eine Vielzahl an physikalischen oder chemischen Prozessen können diese Partikel auch direkt in der Atmosphäre gebildet, transportiert oder umgewandelt werden. Während ihrer verhältnismäßig kurzen Verweildauer von wenigen Stunden bis wenigen Wochen können sie direkt oder indirekt mit der solaren oder terrestrischen Strahlung interagieren und auf diese Weise das Klima auf regionaler oder globaler Skala beeinflussen [Ramanathan et al. 2001]: Lichtstreuungseffekte führen zu einer erhöhten Reflexion kurzwelliger Strahlung in den Weltraum und somit zu einer mittleren klimatischen Abkühlung. Absorptionseffekte bestimmter Aerosoltypen wie Ruß führen hingegen zu einer erhöhten Umwandlung des Lichtes in Wärme und somit zu einer mittleren klimatischen Erwärmung. Die Aktivierung von Partikeln zu Wolkentropfen hängt zu einem gewissen Grad von den vorhandenen Partikelkonzentrationen und -eigenschaften ab und beeinflusst über die Strahlungseigenschaften von Wolken auch hier die terrestrische Strahlungsbilanz. So konnte in den 1970' er Jahren gezeigt werden, dass eine erhöhte Anzahl von Partikeln auch zu einer erhöhten Anzahl von Wolkentröpfchen führt, wodurch die Tropfengröße (bei gleichbleibendem Flüssigwassergehalt LWC) abnimmt [Twomey 1974, 1977]. Hierdurch erhöht sich jedoch auch die Wolkenalbedo und die Lebensdauer der Wolken sowie die Niederschlagsbildung verändern sich [Albrecht 1989]. Die aerosolbedingten Wolken- und Klimaefekte können je nach Quellstärke und Verweildauer der Partikel regional unterschiedliche Trends aufweisen und sind zum gegenwärtigen Stand der Forschung noch mit bedeutenden Unsicherheiten behaftet.

Atmosphärische Aerosolpartikel können durch ihre Präsenz in der Atmosphäre direkte oder indirekte Wechselwirkungen mit Mensch und Natur, also dem gesamten Ökosystem haben. Auch wenn sich die Forschung auf dem Gebiet der atmosphärischen Aerosole in den letzten Jahren hauptsächlich mit Fragen nach dem Klimawandel und dem Effekt von Aerosolen auf das Klima auseinandergesetzt hat, so steht in der heutigen Aerosolforschung zunehmend die Diskussion von Luftqualität oder Gesundheitseffekten von Aerosolen im Mittelpunkt [Monks et al. 2009]. Mit epidemiologischen Methoden konnte nachgewiesen werden, dass erhöhte Außenluftkonzentrationen an Aerosolpartikeln zu einem vermehrten Vorkommen von Atemwegserkrankungen, Herz-Kreislaufkrankungen, sowie einer reduzierten Lebenserwartung in der Bevölkerung führen können und daher der öffentlichen Aufmerksamkeit bedarf [HEI Panel 2010]. Die Deposition von Partikeln oder Allergenen im menschlichen Atemtrakt kann allergische Reaktionen, Asthma oder im schlimmsten Fall sogar Lungenkrebs auslösen [z.B. Shiraiwa et al. 2012]. Dies bezieht sich nicht nur auf die Partikelmasse sondern auch auf die Anzahlkonzentration atmosphärischer Partikel, da zwischen dieser und menschlichen Gesundheitseffekten ein nachgewiesener Zusammenhang besteht [z.B. Pope III and Dockery 1999; Atkinson et al. 1999; Samet et al. 2000; Katsouyanni et al. 2001; Pope III et al. 2002].

Mitte der 1990'er Jahre führten neue Erkenntnis der Weltgesundheitsorganisation WHO zu einer EU-weiten Regulierung der Feinstaubkonzentration, die in Form der EU-Luftqualitätsrahmenrichtlinie 96/26/EC [1996] verabschiedet wurde, in welcher die europaweiten Immissionsgrenzwerte festgelegt wurden. Zu dieser Rahmenrichtlinie liegen bislang vier Tochterrichtlinien vor [1999/30/EC 1999; 2000/69/EC 2000; 2002/3/EC 2002; 2004/107/EC 2004]. Auf diese geht die aktuelle EU-Luftqualitätsrahmenrichtlinie 2008/50/EC [2008] zurück, welche im August 2010 durch die 39. Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes [39. BImSchV] in nationales Recht umgesetzt wurde. Konkret erfordert die Richtlinie von den Mitgliedsstaaten eine Überwachung der Außenluft an einer definierten Zahl von Messstellen pro Bevölkerungseinheit, und die Einhaltung von Jahresmittelwert- und Tagesmittelwertkriterien für die PM_{10} und $PM_{2,5}$ Massenkonzentration an diesen Messpunkten. Seit Inkrafttreten dieser Richtlinien hat sich gezeigt, dass vielerorts in Europa vor allem das Tagesmittelwertkriterium für PM_{10} schwer zu erfüllen ist. PM_{10} beschreibt die Gesamtmassenkonzentration von luftgetragenen Partikeln mit einem aerodynamischen Durchmesser (D_a) kleiner als $10\ \mu\text{m}$. Auch in Deutschland ist durch die Richtlinie konkreter Erklärungs- und Handlungsbedarf bei Kommunen, Landesumweltämtern und auch beim Umweltbundesamt entstanden. Eine präzise Zuordnung dieser Grenzwertüberschreitungen, etwa an bestimmte lokale Ursachen oder großräumige Prozesse hat sich wegen der diffusen Verteilung der Quellen und der Langlebigkeit bestimmter Komponenten des Feinstaubes als generell schwierig erwiesen. Maßnahmen zur Verringerung der Feinstaubbelastung erfordern jedoch ein Mindestverständnis der

beitragenden örtlichen, regionalen bzw. auch entfernter gelegenen Quellen, welche von Standort zu Standort verschieden sein können. Die Entwicklung von Strategien zur Minderung der Partikelkonzentrationen gestaltet sich aber aus mehreren Gründen schwierig. Zum einen besteht der anthropogene Beitrag zum Aerosol aus Komponenten, die einerseits lokal emittiert werden (beispielsweise Straßenverkehr (Dieselruß, Abrieb, Aufwirbelung von Straßenstaub), Hausbrand, Baustellen, Industrie, Energieerzeugung, [z.B. Querol et al. 2004; Charron et al. 2007]), zum anderen aber großflächig produziert und transportiert werden (anthropogenes Sekundäraerosol). Zum anderen stammt die Mehrzahl der Partikelemissionen mittlerweile aus diffusen Quellen, also einer Vielzahl kleiner Emittenten, die räumlich verteilt oder, wie im Beispiel des Straßenverkehrs, sogar beweglich sind. Hinzu kommen natürliche Feinstaubquellen sowie geographische und klimatische Faktoren, die an der Entstehung extrem hoher Schadstoffkonzentrationen beteiligt sein können.

Sowohl für den Diskussionsansatz bezüglich der menschlichen Gesundheit als auch das Klima der Erde betreffend sind die chemische Zusammensetzung, die Größe und Anzahl der Partikel sowie deren Mischungszustand von immenser Bedeutung. Daraus ergibt sich auch die Frage nach den Quellen bzw. Emissionen sowie dem Transport bzw. der Verteilung der Aerosolpartikel. Es ist offenkundig, dass besonders PM_{10} einen großen Bereich von Partikeltypen hinsichtlich Größe¹, chemischer Zusammensetzung² und Quellen³ umfasst. Diese komplexe Zusammensetzung erschwert das Verständnis der PM_{10} Massenkonzentration als Funktion von lokalen Quellen, Ferntransport und der Meteorologie an einem bestimmten Ort. In der Praxis sind häufige Überschreitungen der Grenzwerte, insbesondere des Tagesmittelwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$, an den Beobachtungsstationen zur Luftqualität in vielen EU-Mitgliedsstaaten aufgetreten. Aufgrund des wissenschaftlichen Nachweises von negativen Gesundheitsauswirkungen aufgrund von luftgetragenen Partikeln rufen Gesundheitsforscher zu einer ernsthafteren Erörterung von effizienten Minderungsmaßnahmen auf [Annesi-Maesano et al. 2007].

Die Gründe für die gegenwärtigen PM_{10} Überschreitungen auf europäischer oder weltweiter Skala sind vielfältig. In Großbritannien, was hinsichtlich des troposphärischen Aerosols als repräsentativ für Westeuropa angesehen werden darf, scheinen sowohl die Advektion von kontinentalen Luftmassen als auch die regionale sekundäre Aerosolbildung für die Mehrzahl der Überschreitungen verantwortlich zu sein [Charron et al. 2007]. Für den Großraum Berlin wurde abgeschätzt, dass ca. 50 % der PM_{10} Massenkonzentration eher aus regionalem und Langstreckentransport stammen als aus lokalen Quellen [Lenschow et al. 2001]. In Trockengebieten wie Spanien kann vom Wind aufgewirbelter Mineralstaub - teilweise aus Afrika importiert, teilweise von

¹grob, fein, ultrafein

²z.B. Mineralstaub, Verbrennungsaerosol, marine Primärpartikel, sekundär gebildetes organisches Aerosol (SOA), sekundär gebildetes anorganisches Aerosol (SIA)

³natürlich, Industrie, Privathaushalte, Sekundärprozesse

landwirtschaftlich genutzten Flächen - einen wesentlichen Effekt haben [Escudero et al. 2007]. Sogar im deutlich nördlicheren Deutschland kann Saharastaub die PM_{10} Massenkonzentration in Bodennähe mehrfach im Jahr deutlich ansteigen lassen [Bruckmann et al. 2008].

Staub aus landwirtschaftlich genutzten Flächen wird manchmal als für die auftretenden Diskrepanzen zwischen gemessenen und modellierten PM_{10} Massenkonzentrationen in urbanen Gebieten verantwortlich angesehen, wobei signifikante Mengen durchaus aus Ferntransport stammen können [Vautard et al. 2005; Birmili et al. 2008]. Putaud et al. [2010] kamen zu dem Schluss, dass in Europa mineralisches Aerosol die Hauptkomponente im Grobstaubanteil $PM_{[2,5;10]}$ ausmacht, im Feinstaubbereich $PM_{2,5}$ jedoch von geringer Bedeutung ist. In urbanen Gebieten sind spezifische Quellen von PM_{10} im Straßenverkehr, Hausbrand und Kochen, Baustellen, Industrie, Energieerzeugung oder aufgewirbelten Staub zu sehen [e.g., Querol et al. 2004]. Der vom Verkehr hervorgerufene Beitrag schließt auch Abriebe (z.B. Bremsbeläge oder Reifen) [Sanders et al. 2003; Weckwerth 2001], Aufwirbelung von Straßenstaub [Sternbeck et al. 2002; Amato et al. 2009], Dieselruß-Partikel [Kittelson 1998; Rose et al. 2006] und Nukleationsmode-Partikel aus Abgasen [Kittelson 1998] mit ein.

Offiziellen Emissionskatastern nach zu urteilen haben die Emissionen von Primärpartikeln und Vorläufergasen für Sekundärpartikel in Europa in den vergangenen 20 Jahren signifikant abgenommen. Dies gilt insbesondere für Mittel- und Osteuropa als ein Ergebnis vom politischen und ökonomischen Wandel seit 1990. Diese Emissionsreduktionen spiegelten sich bis zum Jahr 2000 auch in klaren entsprechenden Trends der PM_{10} Immissionskonzentrationen wider, was sich beispielsweise in Deutschland zeigte [Spindler et al. 2004; UBA 2009]. Seit dem Jahr 2000 scheinen die PM_{10} Massenkonzentrationen in Deutschland jedoch zu stagnieren und lediglich Schwankungen zwischen einzelnen Jahren aufzuweisen [UBA 2009]. Auch in anderen Gebiete in Europa wurde eine ähnliche Stagnation der PM_{10} Massenkonzentrationen seit dem Jahr 2000 beobachtet, so beispielsweise in Großbritannien [Harrison et al. 2008], der Schweiz [Barnpadimos et al. 2011, 2012], Belgien, Tschechien, Italien oder Norwegen. Dies steht in bemerkenswertem Gegensatz zu den fortgeführten Reduktionen der Partikelemissionen. In Deutschland wurde beispielsweise ein Abfall der PM_{10} Massenkonzentrationen um 20 % zwischen 2000 und 2010 beobachtet (aktualisierte Information von UBA [2009]). Aus diesem Grund sind die stagnierenden Massenkonzentrationen nicht vollständig verstanden und verdienen detailliertere Untersuchungen. Ein besseres Verständnis der PM_{10} Quellen und Konzentrationen ist von hoher Relevanz, da das Problem der Überschreitungen des Tagesmittelgrenzwertes von PM_{10} anzuhalten scheint.

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Analyse der meteorologischen Situationen, welche zu Überschreitungen des Tagesmittelgrenzwertes von PM_{10} ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) in der Stadt Leipzig und in weiteren Regionen deutschlandweit führen können. Das wichtigste Werkzeug hierfür ist eine Trajektorien-Clusteranalyse. Um die Subjektivität der Unter-

suchungen zu minimieren, wurde in dieser Arbeit ein k-Mittelwert Clusteralgorithmus angewendet. Die Koordinaten von Trajektorien wurden zum ersten Mal von Moody and Galloway [1988] als die zu clusternden Variablen benutzt. Auch Kemp [1993] und Mukai and Suzuki [1996] analysierten Aerosoldaten mit Hilfe von Luftmassentrajektorien. Daten der Ozonkonzentration wurden mittels Trajektorien-Clustermethoden durch Brankov et al. [1998] oder Cape et al. [2000] untersucht. Der Ferntransport von Aerosolpartikeln wurde von Buchanan et al. [2002] abgeschätzt und Dutkiewicz et al. [2004] beurteilten den Ferntransport von Sulfat. Ähnlich zur hier vorgestellten Methode haben auch Abdalmogith and Harrison [2005] Rückwärtstrajektorien geclustert und dann Schadstoffkonzentrationen wie PM_{10} den entsprechenden Clustern zugeordnet. Hierbei wurden die höchsten Sulfat-, Nitrat- und PM_{10} Massenkonzentrationen und die geringsten Chloridkonzentrationen in kontinentalen Luftmassen und umgekehrt die geringsten Konzentrationen in sich schnell bewegenden maritimen Luftmassen gefunden. Im Winter und Frühjahr wurden außerdem höhere Partikelmassenkonzentrationen gefunden als im Sommer und Herbst. Eine komplett mathematische Clusteranalyse, welche ohne Benutzung von Rückwärtstrajektorien auskommt, wurde von Beddows et al. [2009] für ländlich und verkehrsnah bestimmte atmosphärische Partikelgrößendaten eingesetzt, um temporäre und räumliche Trends der Partikelgrößenverteilung zu bestimmen. Baker [2010] verwendete eine Clusteranalyse, um den Ferntransport von Luftmassen und den zugehörigen Partikelmassenkonzentrationen zu untersuchen. Die in dieser Arbeit benutzte Methode wurde bereits mehrfach erfolgreich zur Interpretation von grenzüberschreitender Luftverschmutzung eingesetzt [z.B. Engler et al. 2007b; Birmili et al. 2010].

Um historische Trends von Spurengasen oder der Aerosolverteilung in der Troposphäre zu verstehen, ist es unerlässlich, die Wirksamkeit von existierenden Strategien zur Reduktion von Luftverschmutzung objektiv zu bewerten und zukünftig effizientere Luftqualitäts- und Klimapolitik zu betreiben [Pozzoli et al. 2011]. Manders et al. [2009] stellten in ihrer Studie heraus, dass eine gute Vorhersage der Luftqualität von Bedeutung für die allgemeine Gesundheit der Bevölkerung ist. Außerdem hängen sowohl Wolkenprozesse als auch Gesundheitseffekte stärker von der Partikelanzahl, Partikelgröße und chemischen Partikelzusammensetzung ab als von der Gesamtmasse [z.B. Katsouyanni et al. 2001; Pope III et al. 2002]. Daher ist eine Bilanzierung bzw. Quantifizierung der verschiedenen Quellbeiträge zu den beobachteten Belastungen hinsichtlich der Partikelgrößenverteilung und der chemischen Aerosolzusammensetzung von großem Interesse. Die Abschätzung der lokalen Quellen ist von besonderer Bedeutung, da nur diese durch geeignete Maßnahmen reduzierbar bzw. beeinflussbar sind und somit eine Verbesserung der lokalen Luftqualität erreicht werden kann.

Zur Betrachtung von meteorologischen Faktoren, welche zu PM_{10} Grenzwertüberschreitungen führen können, können auf urbaner Ebene Langzeitmessungen herangezogen werden. Auf diese Weise können lokale Beiträge charakterisiert werden,

die Prozesse bezüglich des regionalen Hintergrundes können jedoch nicht beschrieben werden. Für die Beschreibung des regionalen Hintergrundes, welcher für lokale Schadstoffkonzentrationen ebenso bedeutend ist, können jedoch Atmosphärische Transportmodelle verwendet werden. Neben der großräumigeren, regionalen Betrachtung sind mit Modellen außerdem beispielsweise Sensitivitätsstudien mit verschiedenen Emissionsszenarien etc. möglich. Diese Regionalmodelle haben ihrerseits jedoch Schwierigkeiten in der Beschreibung der urbanen Verhältnisse. Dies macht deutlich, dass gerade die Verknüpfung von lokalen Beobachtungsdaten auf der einen Seite und der modellgestützten Beschreibung von regionalen Prozessen auf der anderen Seite einen vielversprechenden Ansatzpunkt zur Erklärung der beobachteten lokalen Immissionsituationen darstellt.

Um ein Luftqualitätsmodell sinnvoll einsetzen zu können, müssen seine Ergebnisse gegen Beobachtungsdaten evaluiert werden [Boylan and Russell 2006]. Deren Genauigkeit hinsichtlich der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften, also Partikelanzahl und -größe ist jedoch nicht hinreichend geklärt. Insbesondere die Partikelanzahl und -größe sowie chemische Zusammensetzung sind für die Rückkopplung zwischen Aerosol und Meteorologie bedeutend. Hinsichtlich dieser Eigenschaften finden sich jedoch in der Literatur kaum Modellevaluierungen mit realen Beobachtungsdaten. Beispielsweise Reddington et al. [2011] stellen zwar einen detaillierten, europaweiten Vergleich von Partikelgrößenverteilungen vor, allerdings konnte die zeitliche Variabilität der physikalischen Aerosolparameter vom verwendeten Modell nicht wiedergegeben werden. Der Vergleich von Modellergebnissen und intensiven Messkampagnen vielfältiger Komponenten könnte dabei helfen, Schwächen in den Prozessbeschreibungen in den Modellen zu identifizieren. Zhang [2008] stellten fest, dass unvollständige oder ungenaue Modell-Inputparameter (wie beispielsweise die Emissionen) oder physikalische Beschreibungen (beispielsweise die Mikrophysik von Aerosol und Wolken oder deren Wechselwirkungen) in großem Umfang zur Unsicherheit von Modellen beitragen. Auch die Behandlung der Modellränder stellt eine Quelle von Unsicherheiten dar. So wäre ein umfangreicher Test verschiedener Methoden, die Aerosolverteilung an den Modellrändern zu beschreiben nützlich, um den Einfluss der Modellinitialisierung an den Rändern zu charakterisieren [Meier et al. 2012]. Aus diesem Grund stellt diese Arbeit eine systematische Modellvalidierung mit experimentell bestimmten Daten und außerdem eine Verbesserung hinsichtlich der Parametrisierung der Partikelemissionen vor.

Außerdem wurde auch eine Rückkopplung der Luftqualität auf das Klima der Erde und umgekehrt in der Literatur beschrieben [z.B. Kloster et al. 2008; Monks et al. 2009]. Aufgrund der starken Abhängigkeit der Luftqualität (insbesondere Ozon und PM) von der Meteorologie wird sich auch der Klimawandel auf die Luftqualität auswirken [Manders et al. 2012]. In der Studie wird außerdem der Einfluss der Unsicherheiten von globalen Klimamodellen auf die Simulation der Luftqualität untersucht. Die Autoren

weisen darauf hin, dass die Ergebnisse einzelner Simulationen von Klimaveränderungen aufgrund dieser vielen Fehlerquellen mit äußerster Vorsicht interpretiert werden müssen und bestenfalls Tendenzen aufzeigen können. Auch Mues et al. [2012] betonten den starken Zusammenhang zwischen Meteorologie und Luftqualität und den sich daraus ergebenden Effekt von Klimaveränderungen auf die Luftverschmutzung. Der Vergleich von PM_{10} Massenkonzentrationen ergab eine deutliche Unterschätzung durch das verwendete Modell, was die Autoren auf fehlende aber wichtige Komponenten und den zugehörigen Emissionen oder aber Unsicherheiten darin zurückführten. Sie schlussfolgerten, dass die Quellen dieser Emissionen sowie die sekundäre Bildung von organischem Aerosol verbessert bzw. im Modell berücksichtigt werden müssen. Ähnliche Ergebnisse erzielten auch weitere Modellvergleiche wie beispielsweise Vautard et al. [2007]; Stern et al. [2008]; Solazzo et al. [2012].

Diese Studien betrachten jedoch nur die PM_{10} Massenkonzentration. Für Wolkenprozesse oder für Gesundheitsauswirkungen sind jedoch insbesondere die Anzahlkonzentration der Partikel und deren Größe entscheidend. Für eine genaue Prognose dieser Prozesse ist also eine genaue Beschreibung der Partikelgrößenverteilung im verwendeten Modell Voraussetzung [Boylan and Russell 2006]. Die Modellgenauigkeit hinsichtlich der Partikelanzahl und -größe ist jedoch vielfach nicht hinreichend geklärt, was den Ansatzpunkt der vorliegenden Arbeit darstellt. Es wird eine systematische Modellvalidierung mit experimentell bestimmten Daten und außerdem eine Verbesserung hinsichtlich der Parametrisierung der Partikelemissionen vorgestellt, um abzuschätzen, inwieweit das Modell in der Lage ist, das Verhalten und den Transport des Aerosols realistisch abzubilden. Dies könnte für zukünftige Arbeiten die Grundlage bilden, um beispielsweise verschiedene Quellbeiträge zu den beobachteten Belastungen abzuschätzen oder kritische Wetterlagen für erhöhte Schadstoffniveaus für einige (wenige) Tage vorherzusagen, die die Basis für kurzfristige, effektive Minderungsmaßnahmen bilden könnten.

Verschiedene Methoden wurden angewandt, um die vorgestellten Fragestellungen zu bearbeiten. Das erste wichtige Werkzeug für die meteorologische Analyse der PM_{10} Grenzwertüberschreitungen war die Trajektorien-Clusteranalyse. Der verwendete k-Mittelwert Algorithmus liefert eine auf objektiven Kriterien, insbesondere auf der Anströmungsrichtung und atmosphärischen Schichtung, beruhende Einteilung des Beobachtungszeitraums in verschiedene troposphärische Luftmassentypen. Im ersten Teil der Arbeit wurde die Trajektorien-Clusteranalyse auf langjährige PM_{10} Daten von Bodenmessstationen unterschiedlichen Typs (verkehrsnahe, urban, ländlich) in Leipzig angewandt. Um die Betrachtung räumlich zu erweitern, wurde die Untersuchung im zweiten Teil der Arbeit auf fünf verschiedene Regionen in Deutschland erweitert, wobei in jeder Region auf mehrere Stationen jedes Typs zurückgegriffen werden konnte.

Für den dritten Teil der Arbeit wurde das Modellsystem COSMO-MUSCAT [Wolke et al. 2012] verwendet. Es besteht aus dem Meteorologie-Modell COSMO, welches

online mit dem Chemie-Transport-Modell MUSCAT gekoppelt ist. Das troposphärische Aerosol wird im Modell durch das Aerosol-Mikrophysikmodul ext-M7 beschrieben. In einem ersten Schritt wurde eine neue Parametrisierung der Partikelemissionen vorgelegt. Emissionen liegen nur als Jahressummen der Gesamtmasse PM_{10} vor. Nun wurde die Aufspaltung dieser Gesamtemissionen in einzelne Komponenten und Größenbereiche unter Ausnutzung von Literaturkenntnissen optimiert. Für den Vergleich zwischen Modellsimulation und Messdaten wurde eine Vergleichsepisode von vier Wochen im Frühjahr 2009 ausgewählt und die Ergebnisse an drei verschiedenen Standorten in Deutschland verglichen. Da zu dieser Zeit deutschlandweit extrem hohe Schadstoffkonzentrationen beobachtet werden konnten, bietet die gewählte Episode die Möglichkeit, die Modellsimulation unter extremen Bedingungen zu testen. Außerdem lagen für den gewählten Zeitraum eine Vielzahl von Beobachtungsdaten vor. Als erstes wurde die Prognose der meteorologischen Bedingungen, dann die der räumlichen Verteilung von PM_{10} und im letzten Schritt die Simulation der chemischen Partikelzusammensetzung sowie physikalischen Aerosolparameter wie Partikelanzahl, -volumen und -durchmesser mit realen Beobachtungsdaten verglichen.

2 Theoretischer Hintergrund

2.1. Quellen und Senken des urbanen und regionalen Aerosols

Die Erdatmosphäre ist ein Zweiphasensystem, welches aus Gasen und Partikeln in fester oder flüssiger Form besteht [Wiedensohler et al. 2000] und daher per Definition ein Aerosol. Die Anzahl und die Größenverteilung der Partikel ist dabei sowohl räumlich (marin, kontinental, atmosphärische Grenzschicht, freie Troposphäre) als auch zeitlich (Sommer, Winter) hoch variabel. Die Masse der Partikel ist zwar im Verhältnis zu den Gasen äußerst gering, sie spielen jedoch in der Forschung eine wesentliche Rolle hinsichtlich des Klimawandels, der Luftqualität und den Effekten auf die menschliche Gesundheit.

Die Größe der Partikel bewegt sich dabei in einem Bereich von etwa fünf Größenordnungen, von wenigen nm bis hin zu mehreren hundert μm . Die Anzahl kann zwischen einem Pt/cm^3 in extrem sauberer Umgebung bis zu $10^6 \text{Pt}/\text{cm}^3$ in stark verschmutzten Gebieten variieren. Prinzipiell werden atmosphärische Aerosolpartikel in feine und grobe Partikel unterteilt, wobei sich die Grenze bei einem Partikeldurchmesser D_p von ungefähr $1 \mu\text{m}$ befindet. Die Partikelgrößenverteilung setzt sich aus vier log-normal Aerosolpartikelmoden zusammen: dem Nukleationsmode, dem Aitkenmode¹, dem Akkumulationsmode und dem Grobmode. Eine beispielhafte Darstellung dieser Moden ist in Abbildung 2.1 zu sehen. Der Nukleationsmode tritt nur gelegentlich auf, Aitken- und Akkumulationsmode sind in der Atmosphäre nahezu immer vorhanden. Sie sind durch Massentransport aneinander gekoppelt, der Grobmode ist hingegen relativ unabhängig vom submikronen Bereich, da er durch andere Quellen entsteht.

Es gibt drei verschiedene Quellprozesse für atmosphärische Partikel: BPC- (*bulk to particle conversion*, Zerstückelung von Festkörpern), GPC- (*gas to particle conversion*, Phasenübergang von der Gas- in die Partikelphase) und Verbrennungsprozesse. BPC-

¹Partikel des Nukleations- und Aitkenmodes werden auch als ultrafeine Partikel bezeichnet

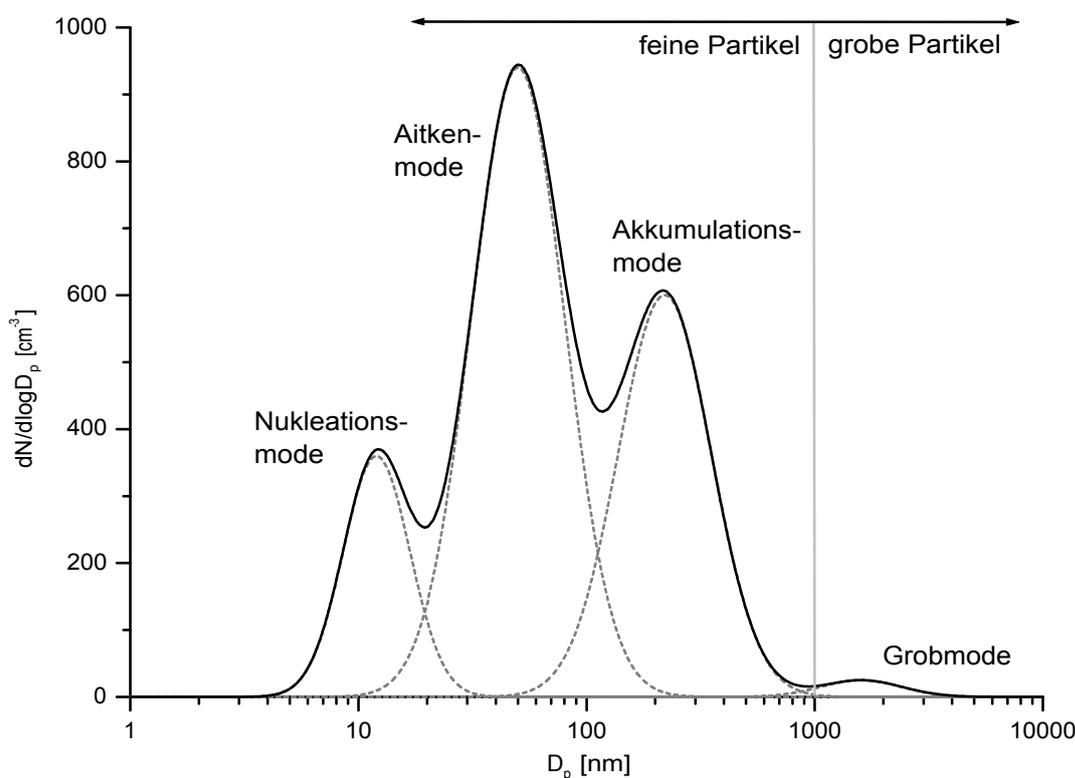


Abbildung 2.1. – Typische Partikelgrößenverteilung des verschmutzten marinen Aerosols mit vier log-normal Partikelmoden nach Wiedensohler et al. [2000]. Die durchgezogene Linie stellt die Summe der Einzelmoden (gestrichelt) dar.

Prozesse beinhalten beispielsweise die Bildung von Seesalz-Aerosol, die Aufwirbelung von Staub oder den Eintrag von biogenen Partikeln wie Pollen oder Bakterien. Bei GPC-Prozessen können neue Partikel aus Vorläufergasen gebildet (durch homogene Nukleation) oder existierende Partikel durch den Massentransfer zwischen der Gas- und der Partikelphase (Kondensationswachstum) anwachsen. Diese Vorläufergase können entweder (natürlich oder anthropogen) direkt in die Atmosphäre emittiert werden oder durch Oxidationsprozesse in ihr entstehen. In erster Linie ist hier SO_2 als Vorläufer für partikuläres Sulfat (z.B. Schwefelsäure, Ammoniumsulfat) zu nennen, welches auf natürlichem Wege durch Vulkanausbrüche oder anthropogen durch Verbrennungsprozesse in die Atmosphäre gelangt. Es kann auch als Oxidationsprodukt von über den Ozeanen emittiertem DMS (Dimethylsulfid) entstehen. Andere Vorläufergase sind beispielsweise NH_3 , HCl , NO_x oder organische Verbindungen. In Verbrennungsprozessen werden zwei Typen von Partikeln emittiert: kohlenstoffhaltige Partikel (OC, BC) und Flugasche (Mineralien, Metalle). Durch BPC- oder Verbrennungsprozesse direkt in die Atmosphäre eingebrachte Partikel werden als primäre Aerosolpartikel bezeichnet, in der Atmosphäre durch GPC-Prozesse gebildete Partikel als sekundäre Aerosolpartikel. Durch eine Vielzahl von Punkt- und Flächenquellen von Aerosolpartikeln ist

die tatsächliche Verteilung eine polydisperse Überlagerung von Aerosolen aus vielen Einzelquellen und damit räumlich und zeitlich hoch variabel.

Das atmosphärische Aerosol kann durch verschiedene aerosoldynamische physikalische, chemische und Wolkenprozesse transformiert werden. Hierzu zählen beispielsweise die Koagulation oder die Adsorption von Gasen (Kondensation). Insbesondere die Kondensation von Wasserdampf und damit das Aufwachsen der Aerosolpartikel ist in der Atmosphäre von großer Bedeutung. Bei relativer Feuchte von unter 100 % findet das hygroskopische Wachstum statt, bei relativer Feuchte über 100 % das Aufwachsen zu Wolkentropfen. In Wolken können dann wiederum Flüssigphasenreaktionen (z.B. die Oxidation von SO_2 zu Sulfat) stattfinden.

Im Prinzip gibt es zwei Prozesse, mit denen Aerosolpartikel wieder aus der Umwelt entfernt werden können: die (trockene oder nasse) Deposition oder die Reduzierung der Partikelanzahl unter Erhaltung der Masse. Bei der trockenen Deposition werden feine und ultrafeine Partikel hauptsächlich durch Diffusionstransport entfernt, grobe Partikel durch gravitationsbedingtes Herunterfallen (Sedimentation). Die nasse Deposition stellt den Hauptprozess der Massenerntfernung für submikrone Partikel dar. Hauptsächlich Akkumulationsmodepartikel dienen als Kondensationskeime für Wolken- und Nebeltropfen (CCN). Wenn diese Tropfen dann zum Boden fallen, wird auch Partikelmaterial aus der Atmosphäre entfernt. Die Anzahl der Aerosolpartikel kann auch durch Koagulation oder Koaleszenz reduziert werden. Besonders ultrafeine Partikel werden durch Koagulation mit größeren Partikeln oder Wolkentropfen effektiv entfernt. Hierbei reduziert sich zwar die Partikelanzahl, die Masse bleibt jedoch erhalten. Die unterschiedlichen Entfernungsprozesse sind je nach Partikelgröße auch unterschiedlich effektiv. So ergeben sich für die einzelnen Partikelgrößen verschiedene Lebensdauern in der Atmosphäre. Die längste Lebensdauer von bis zu 14 Tagen haben hierbei Partikel im Bereich von ca. 100 nm bis 1 μm [Jänicke 1978], da diese nur durch nasse Deposition entfernt werden. Dadurch ergibt sich für diesen Größenbereich die Möglichkeit, dass die Partikel über weite Strecken transportiert werden können. Kleinere Partikel werden effektiv durch Diffusion und Koagulation, größere hingegen durch Sedimentation entfernt, was zu kürzeren Lebensdauern führt.

Aerosolpartikel haben einen Einfluss auf die Strahlungsbilanz der Erde. Hierbei wird zwischen direktem und indirektem Strahlungseffekt unterschieden [IPCC 2007]. Mittels Extinktion (also Absorption und Streuung) der Aerosolpartikel wird die Einfallrichtung und die Stärke der von der Sonne auf die Erde gelangenden kurzwelligigen Strahlung sowie die von der Erdoberfläche ausgehende langwellige Strahlung beeinflusst, was als direkter Strahlungseffekt bezeichnet wird. Ruß stellt neben Staub den wichtigsten Absorber solarer Strahlung dar, die Streuung wird hauptsächlich durch Sulfat- und Nitratpartikel und organische Kohlenstoffverbindungen verursacht. Als indirekter Strahlungsantrieb werden solche Eigenschaften bezeichnet, die andere Effekte initialisieren, die dann ihrerseits den Klimaantrieb bewirken. In ihrer Eigenschaft

als Wolkenkondensationskeime (CCN) können Aerosolpartikel die Reflexionseigenschaften von Wolken modifizieren. Eine erhöhte Anzahl an CCN bewirkt eine höhere Anzahlkonzentration an Wolkentropfen und damit eine erhöhte Reflektivität der Wolke. Bei gleichem Flüssigwassergehalt (LWC) hat die Wolke mit zunehmender Verschmutzung eine größere optische Dicke und damit eine höhere Wolkenalbedo [Twomey 1974], was einen Abkühlungseffekt bewirkt. Die Verschmutzung hat auch den Nebeneffekt, dass sich durch die vermehrte Anzahl an Wolkentropfen deren Größe verringert. Somit wird die Niederschlagsbildung gehemmt, was wiederum zu einer verlängerten Lebensdauer der Wolke und dadurch zu einem erhöhten Bedeckungsgrad führen kann. Die Erhöhung der Wolkenalbedo ist allerdings nicht gleichzusetzen mit einem erhöhten Bedeckungsgrad. Beides führt zwar zur Erhöhung der planetaren Albedo, hat jedoch unterschiedliche Auswirkungen auf die langwellige Ausstrahlung. Der Strahlungsantrieb der Aerosolpartikel wirkt also dem der Treibhausgase entgegen. Er ist jedoch aufgrund der Abhängigkeiten von Konzentration, Größe, chemischer Zusammensetzung und Struktur der Partikel äußerst komplex. Alle Effekte sind eng miteinander verknüpft, daher ist eine Quantifizierung des Nettoeffektes schwierig. Der Zusammenhang zwischen der Luftqualität (welche auch die Belastung mit Aerosolpartikeln einschließt) und dem Klima ist daher Gegenstand einer Vielzahl von Forschungsarbeiten wie beispielsweise Fiore et al. [2012] (und Referenzen darin). Aerosolpartikel können sich neben dem Klima auch auf die menschliche Gesundheit auswirken, worauf im folgenden Abschnitt kurz eingegangen werden soll.

2.2. Feinstaub PM_{10} : gesetzliche Regelungen, Eigenschaften und Gesundheitseffekte

Seit 2005 gelten gesetzliche Grenzwerte für PM_{10} Feinstaub in der Europäischen Union [96/26/EC 1996; 1999/30/EC 1999; 2008/50/EC 2008]. So darf seit dem Jahr 2010 an einer konkreten Messstation der Tagesmittelwert der PM_{10} Massenkonzentration von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an maximal 35 Tagen im Jahr überschritten werden. Bei der Jahresmittelkonzentration liegt der Grenzwert bei $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Hierbei ist der Grenzwert im Tagesmittel als das strengere Kriterium anzusehen, da der 24 h Wert in vielen Situationen in etwa einem Jahresmittel von 30 bis $33 \mu\text{g}/\text{m}^3$ entspricht [Stedman et al. 2007]. Für $PM_{2,5}$ gilt ab 2015 der Grenzwert von $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als Jahresmittelkonzentration, ab 2020 nur noch $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$. PM_{10} bzw. $PM_{2,5}$ bezeichnet die Gesamtmassenkonzentration von luftgetragenen Partikeln mit einem aerodynamischen Äquivalenz-Durchmesser (D_a) kleiner als 10 bzw. $2,5 \mu\text{m}$. Dem gegenüber stehen die aktuell von der WHO (Weltgesundheitsorganisation) empfohlenen Grenzwerte von $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei PM_{10} bzw. $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei $PM_{2,5}$ [Krzyzanowski and Cohen 2008], welche bereits im ländlichen Hintergrund

überschritten werden². Details darüber, warum nur so geringe Konzentrationen empfohlen werden und ob die von der EU festgelegte Grenzwerte aus dem Blickwinkel der menschlichen Gesundheit heraus geeignet sind, finden sich in den aktualisierten WHO Luftqualitäts-Richtlinien [WHO 2005].

Die Metrik von PM₁₀ und PM_{2,5} ist insofern einfach, als dass die Massenkonzentrationswerte in Luftqualitäts-Netzwerken mit überschaubaren Kosten bestimmt werden können, indem online-Instrumente wie das TEOM (Oszillierende Mikrowaage), die Messung der Beta-Absorption, der OPC (Optischer Partikelzähler) oder die offline-Referenzmethode, welche auf Filtersammlung und Gravimetrie beruht, verwendet werden. Andererseits ist es offenkundig, dass besonders PM₁₀ verschiedenste Partikeltypen bezüglich Größe (grob, fein, ultrafein), chemischer Zusammensetzung (Staub, Verbrennungsaerosole, marine Primärpartikel, sekundäres organisches Aerosol) und Quellen (natürlich, Verkehr, Industrie, Haushalte, Sekundärprozesse) beinhaltet. Diese komplexe Zusammensetzung erschwert das Verständnis von PM₁₀ als Funktion von lokalen Quellen, Langstreckentransport und Meteorologie an einem bestimmten Ort. In der Praxis traten Überschreitungen der gesetzlichen Grenzwerte, insbesondere des Tagesmittel-Grenzwertes von 50 µg/m³, an Luftgüte-Überwachungsstationen in vielen EU Mitgliedsstaaten häufig auf. Aufgrund des wissenschaftlich Nachweises von Gesundheitseffekten als Resultat der Exposition mit luftgetragenen Partikeln [z.B. Dominici et al. 2006; Ibald-Mulli et al. 2002; Kappos et al. 2004; Pope III et al. 2002; Ebi and McGregor 2008], rufen Gesundheitsforscher zu einer ernsthafteren Erörterung von effizienten Minderungsmaßnahmen auf [Annesi-Maesano et al. 2007; Brunekreef and Maynard 2008].

Auf europäischer oder weltweiter Skala sind die aktuellen Gründe der PM₁₀ Überschreitungen vielfältig. In Großbritannien, was als repräsentativ für Westeuropa angesehen werden kann, scheint die Advektion von kontinentalen Luftmassen sowie regionale sekundäre Aerosolbildung für die Mehrzahl der Überschreitungen verantwortlich zu sein [Charron et al. 2007]. Für den Großraum Berlin wurde abgeschätzt, dass ca. 50 % der PM₁₀ Massenkonzentration eher aus regionalem oder Langstreckentransport herrühren als aus lokalen Quellen [Lenschow et al. 2001]. In Trockengebieten wie Spanien dürfte vom Wind aufgewirbelter Mineralstaub, teilweise aus Afrika transportiert, teilweise von landwirtschaftlich genutzten Flächen, einen deutlichen Einfluss haben [Escudero et al. 2007]. Selbst im deutlich nördlicher liegenden Deutschland kann Saharastaub die bodennahen PM Konzentrationen mehrmals im Jahr erhöhen [Bruckmann et al. 2008].

Durch landwirtschaftliche Nutzung aufgewirbelter Staub wird manchmal als verantwortlich für die Unterschiede zwischen gemessenen und modellierten PM₁₀ Massenkonzentrationen in urbanen Gebieten angenommen, wobei signifikante Mengen auch über lange Strecken transportiert werden können [Vautard et al. 2005; Birmili et al. 2008].

²z.B. Melpitz ca. 22 bzw. 17 µg/m³ PM₁₀ bzw. PM_{2,5}, [Spindler et al. 2010]

Für Europa wurde von Putaud et al. [2010] geschlussfolgert, dass mineralisches Aerosol die Hauptkomponente in der groben Partikelfraktion $PM_{[2,5;10]}$ ausmacht, jedoch im $PM_{2,5}$ von geringer Bedeutung ist. Typische PM_{10} Quellen in der urbanen Umgebung sind Verkehr, häusliche Heizung und Kochen, Baustellen, Industrie, Energieerzeugung oder auch durch Wind aufgewirbelter Staub [z.B. Querol et al. 2004]. Der durch Verkehr hervorgerufene Beitrag beinhaltet Abrieb (z.B. Bremsbeläge und Reifen) [Sanders et al. 2003; Weckwerth 2001], Aufwirbelung von Straßenstaub [Sternbeck et al. 2002; Almeida et al. 2006; Amato et al. 2009], Dieselrußpartikel [Kittelson 1998; Rose et al. 2006] und Nukleationsmodepartikel aus Abgasen [Kittelson 1998].

Den offiziellen Angaben nach sind die Emissionen von primären Partikeln und Vorläufergasen von sekundären Partikeln in Europa in den letzten 20 Jahren signifikant zurückgegangen. Dies gilt insbesondere in Mittel- und Osteuropa als Ergebnis vom politischen und ökonomischen Wandel seit 1990. Bis zum Jahr 2000 wurden diese Emissionsreduzierungen beispielsweise in Deutschland [Spindler et al. 2004; UBA 2009] durch deutliche entsprechende Trends der PM_{10} Massenkonzentration widergespiegelt. Seit dem Jahr 2000 allerdings scheinen die PM_{10} Massenkonzentrationen in Deutschland zu stagnieren und sind nur noch durch reine Fluktuationen von Jahr zu Jahr gekennzeichnet [UBA 2009]. Eine ähnliche Stagnation von PM_{10} seit 2000 wurde auch für andere Gebiete in Europa, wie z.B. Großbritannien [Harrison et al. 2008], die Schweiz [Barnpadimos et al. 2011], Belgien, Tschechien, Italien oder Norwegen beobachtet. Dies bildet einen denkwürdigen Gegensatz zu den anhaltenden Reduktionen der PM Emissionen. Für Deutschland wurde beispielsweise eine Abnahme der PM_{10} Emissionen um 20 % zwischen 2000 und 2010 berichtet (aktualisierte Information aus UBA [2009]). Die stagnierenden atmosphärischen PM_{10} Massenkonzentrationen sind daher nicht vollständig verstanden und verdienen eine weitere detaillierte Untersuchung. Ein besseres Verständnis der Quellen und Konzentrationen von PM_{10} sind hochrelevant, da das Problem der Überschreitungen des PM_{10} Grenzwertes anzuhalten scheinen.

Dennoch gibt es bereits eine Vielzahl an vorgeschlagenen Reduktionsmaßnahmen, die hauptsächlich auf die Emissionen durch den Straßenverkehr abzielen, da dieser zu einem erheblichen Teil zu urbanen PM Massenkonzentrationen beiträgt. Außerdem ist wissenschaftlich erwiesen, dass signifikante Zusammenhänge zwischen KFZ-Emissionen und Gesundheitsschädigungen existieren [Grahame and Schlesinger 2007] und kein Konzentrationsniveau für die Belastung mit PM_{10} oder $PM_{2,5}$ quantifiziert werden kann, bei dem definitiv keine Schädigung der menschlichen Gesundheit zu erwarten ist [Amato et al. 2010]. Jede Reduktion der KFZ-Emissionen stellt also bereits eine Verbesserung des Gesundheitsschutzes der Bevölkerung dar. Die gültigen Luftqualitätsstandards und Reduktionsmaßnahmen basieren auf der Gesamtmasse der Aerosolpartikel, wobei alle Partikel als gleichermaßen schädlich (toxisch) angesehen werden. Dies entspricht jedoch nicht der Realität, denn die Partikel unterscheiden

sich stark hinsichtlich ihrer chemischen Zusammensetzung, Größe, Oberfläche und damit auch Lungengängigkeit in Abhängigkeit von ihrer Quelle. Partikelanzahl oder -oberfläche wäre also ein günstigeres Maß, um die Bedeutung für Gesundheitseffekte zu charakterisieren [Schwarze et al. 2006]. Die Emissionen durch Abriebe oder Aufwirbelungsprozesse bergen ein großes Gesundheitsrisiko durch Schwermetalle und Metalloxide und aufgewirbelte Grobstaubpartikel. Diese stellen außerdem einen großen Massenanteil in PM₁₀ dar, wodurch sich eine Reduktion auch in selteneren Überschreitungen des Grenzwertes widerspiegeln würde. Eine deutliche Verringerung dieser Emissionen und damit der PM₁₀ und PM₁ Massenkonzentrationen konnten in Dijkema et al. [2008] durch Tempolimits erreicht werden.

Eine weitere Methode zur Reduktion von insbesondere auspuffbedingten Partikelemissionen stellen die sog. Umweltzonen dar. Es gibt Studien, aus denen hervorgeht, dass insbesondere PM₁₀ aus Abgasen toxikologisch erheblich relevanter ist als aus den meisten anderen Quellen [Wichmann 2008]. Die Reduktion von Dieselruß, welcher einen stark gesundheitsrelevanten Anteil an PM₁₀ darstellt, ist hierbei ein großer Gesundheitsgewinn für die städtische Bevölkerung. Reduziert sich dieser Anteil um 6 bis 12 %, so sinkt das Gesundheitsrisiko deutlich um 30 bis 60 % [Löschau et al. 2012; Wichmann 2011]. Motorbedingte Emissionen machen jedoch nur einen kleinen Massenanteil von PM₁₀ aus (2 bis 7 %, Löschau et al. [2011]). Dies stellt einen scheinbaren Widerspruch zum eigentlichen Ziel der Umweltzonen, nämlich einer verringerten Anzahl an Überschreitungstagen, dar, weshalb diese Maßnahme immer wieder auf Ablehnung in Teilen der Bevölkerung oder Industrie stößt. Hierzu ist anzumerken, dass Umweltzonen natürlich nur einen Teil der Reduktionsmaßnahmen bilden können, jedoch nachweislich in der Lage sind, sowohl die Gesamtmassen PM₁₀ als auch insbesondere die toxikologisch relevanten Bestandteile zu reduzieren und sich daher ein großer Gewinn für die gesamte Bevölkerung ergibt. Im Bereich von etwa 30 bis 35 µg/m³ PM₁₀ im Jahresmittel, wie er beispielsweise in der Stadt Leipzig gefunden wird, entspricht auch eine Reduktion um nur 1 µg/m³ statistisch bereits etwa 4 Überschreitungstagen [Löschau et al. 2012].

Dennoch tragen auch Emissionen aus anderen Quellen als KFZ-Motoren erheblich zur Masse von PM₁₀ bei und auch diese sollten reduziert werden. Hier wären hinsichtlich des Straßenverkehrs unbedingt Aufwirbelung und Abriebe zu nennen, die einen signifikanten Massenanteil zu PM₁₀ beitragen. Insbesondere die kleineren Partikel rufen jedoch Gesundheitseffekte hervor [z.B. Löndahl et al. 2006; Kappos et al. 2004], weshalb es sinnvoller wäre, sich in Zukunft mehr auf das Maß der PM_{2,5} oder sogar BC Massenkonzentration zu beziehen. Die EU trägt dieser Erkenntnis Rechnung, indem ab dem Jahre 2015 auch für PM_{2,5} ein Grenzwert von 25 µg/m³ im Jahresmittel einzuhalten ist [2008/50/EC 2008], jedoch ist auch dieser Wert im Vergleich zur WHO-Empfehlung von lediglich 10 µg/m³ im Jahresmittel und 25 µg/m³ im Tagesmittel [Krzyzanowski and Cohen 2008] kritisch zu betrachten. Dennoch bleibt die Diskussion bestehen, ob die

Gesamtmassen von PM_{10} oder $PM_{2,5}$, wie sie in den gültigen Richtlinien berücksichtigt werden, das richtige Maß für diese Grenzwerte sind. In der Literatur wird immer wieder zu einer spezifischeren Betrachtungsweise hinsichtlich Herkunft und chemischer Zusammensetzung der PM Belastung aufgerufen [z.B. Grahame and Schlesinger 2005; Forsberg et al. 2005]. Auch die Partikelanzahl oder -oberfläche wären günstigere Parameter, da sie von großer Bedeutung hinsichtlich Gesundheitseffekten sind [Schwarze et al. 2006]. Daher ist es denkbar und wünschenswert, dass die Forschungsergebnisse hinsichtlich der Quellen und Gesundheitseffekte von urbanen Aerosolpartikeln zu einer zukünftigen Regulierung spezifischer gesundheitsschädigender Partikelemissionen führen und somit den größtmöglichen Nutzen für die Gesundheit der städtischen Bevölkerung mit sich bringen [Hopke 2008].

2.3. Meteorologische Aspekte im Zusammenhang mit Schadstoffen: Grundzüge der Grenzschichtmeteorologie

Die Atmosphäre ist vertikal in Schichten gegliedert. Die unterste Schicht, von variabler Dicke zwischen ca. 100 bis 3000 m [Stull 1988], wird hierbei allgemein als atmosphärische (oder planetare) Grenzschicht (AGS) bezeichnet, wobei die Erdoberfläche die untere Grenzfläche bildet [Kraus 2008]. Die atmosphärische Grenzschicht ist definiert als der untere Teil der Troposphäre, in der der Einfluss ihres unteren Randes, der Erdoberfläche, direkt wahrnehmbar ist [Stull 1988]. Direkt wahrnehmbar ist beispielsweise eine bodennahe Nebelschicht als Folge von Abkühlung der Erdoberfläche oder vom Boden aufgewirbelter Staub, welcher bis zu einer scharfen Obergrenze an einer Inversion eine Lufttrübung hervorruft. Die Grenzschicht bildet also eine Wechselwirkungsschicht zwischen der freien Troposphäre an ihrem Oberrand und der Erdoberfläche, als Teil der Erde, in dem das irdische Leben (Mensch, Vegetation, Fauna) stattfindet, als unterem Rand. Die Prozesse in dieser Grenzschicht sind also bedeutsam für die Betrachtung der Umwelt und der darin befindlichen Lebewesen.

Im Folgenden sollen nun die wichtigsten Eigenschaften dieser atmosphärischen Grenzschicht zusammengefasst werden. Die Luftbewegung wird Richtung Erdoberfläche gebremst, wobei sie direkt an der Erdoberfläche gleich Null ist. Der Übergang vom atmosphärischen Gas zu den die Oberfläche bildenden festen oder flüssigen Stoffen bedeutet einen Sprung bei den physikalischen und chemischen Materialeigenschaften und macht diesen Rand zu einer Energie- und Materialumsatzfläche, ein Gebiet von Quellen und Senken von Energie und Stoffen (z.B. Erwärmung oder Abkühlung der Luft, Zufuhr oder Entzug von Wasserdampf, Emission oder Deposition von Aerosolpartikeln etc.). Die Grenzschicht ist gekennzeichnet durch Profile der verschiedenen spezifischen Eigenschaften (wie Impuls, sensible Wärme, latente Wärme des Wasser-

dampfes, Luftbeimengungen) und die mit diesen verbundenen vertikalen turbulenten Flussdichten dieser Eigenschaften zwischen der Erdoberfläche als Quelle oder Senke und der Grenzschicht-Obergrenze, an der diese Flüsse verschwinden. Charakteristisch für die Grenzschicht ist die Turbulenz, welche durch thermische Konvektion oder mechanische Turbulenz aufgrund von Windscherung hervorgerufen wird.

Es können drei grundsätzliche Typen der Grenzschicht unterschieden werden. Der erste Typ ist die rein dynamische Grenzschicht, welche ein indifferentes Temperaturprofil aufweist. Hier gelten nur die Bewegungsgleichungen. Charakteristisch für die sog. Ekman-Schicht ist die Drehung der Windrichtung mit der Höhe und gleichzeitig ansteigende Windgeschwindigkeit aufgrund von abnehmenden Bremseffekten der Oberfläche. Unter idealen Bedingungen (flaches, homogenes Terrain, keine Advektion, dominierende mechanische Turbulenz (Windscherung)) würden die Windvektoren die sog. Ekman-Spirale zeigen, bis sie sich asymptotisch dem geostrophischen Wind angenähert haben. Dieser stellt das Gleichgewicht zwischen Druckgradientkraft und Corioliskraft dar.

Der zweite Typ ist die konvektive oder gut durchmischte Grenzschicht unter einer abgehobenen Inversion. Diese wird durch thermische Prozesse hervorgerufen. In der Grenzschicht selbst herrscht Turbulenz, in der freien Troposphäre darüber herrscht Absinken. Die abgehobene Inversion stellt die Obergrenze dieser turbulenten Schicht mit intensiver Durchmischung dar und ist definiert als das Gleichgewicht zwischen dem Bestreben der Absinkbewegung sich weiter nach unten durchzusetzen und den Turbulenzvorgängen, auch höhere Schichten in die Durchmischung einzubeziehen. Diese Obergrenze erscheint oft als Dunstobergrenze wenn von unten Trübungsbestandteile (Luftverunreinigungen, Aerosolpartikel) in der AGS verwirbelt werden. Auch Wolken (meist Cumulus (Cu) oder Stratocumulus (Sc)) können sich in dieser Grenzschicht bilden und stoßen dann in ihrer Vertikalbewegung an die Inversion, wodurch sie den oberen Teil der Grenzschicht sichtbar machen können.

Der dritte Typ ist die stabile Grenzschicht. Diese ist durch ein stabiles Temperaturprofil gekennzeichnet und meist nur wenige 100 m dick. Die Inversion kann hier so stark sein, dass die Erzeugung von Turbulenz vollständig unterbunden wird. Sie ist charakterisiert durch eine stabile Temperaturschichtung über einer relativ zur Luft kalten Bodenoberfläche. Sie bildet sich beispielsweise in wolkenlosen Nächten aus.

Die Struktur und Höhe der AGS hängt stark von der Entwicklung der Turbulenz ab, welche größtenteils durch das tägliche Aufheizen und Abkühlen der Oberfläche bestimmt wird [Thorpe and Guymer 1977]. Am Tag wird die Grenzschicht durch konvektive Turbulenzelemente dominiert, welche durch inhomogene Erwärmung entstehen. Dadurch ergeben sich Auftriebseffekte, welche zu thermischer Instabilität und damit Konvektion führen. In der neutral geschichteten Grenzschicht sind diese Auftriebseffekte nicht vorhanden. Statisch stabile Bedingungen, welche typischerweise nachts auftreten, sind durch eine bodennahe Inversion gekennzeichnet. Nach Sonnen-

untergang endet das Aufheizen, wodurch die konvektive Turbulenz verschwindet. Die Oberfläche und die Atmosphäre kühlen ab. Dadurch bricht die Grenzschicht zu einer dünnen nächtlichen Grenzschicht zusammen. Diese ist stabil geschichtet mit einer Temperaturinversion an der Oberfläche. Über der Inversion befindet sich dann eine schwache Restschicht des vergangenen Tages. Zu Sonnenaufgang am folgenden Tag entwickelt sich mit der Aufheizung des Bodens schnell wieder eine gut durchmischte konvektive Grenzschicht aus. Die Entwicklung der atmosphärischen Grenzschicht im Tagesverlauf ist in Abbildung 2.2 dargestellt.

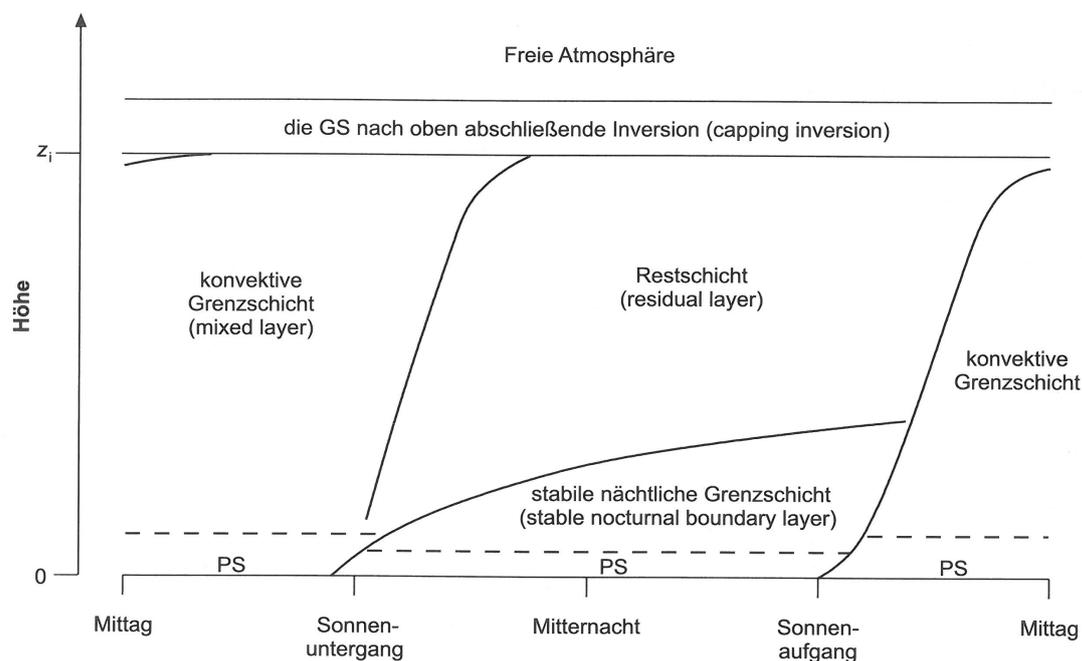


Abbildung 2.2. – Entwicklung der atmosphärischen Grenzschicht im Tagesverlauf. Aus Kraus [2008].

In der Atmosphäre lassen sich eine Vielzahl von quasistationären Fällen der einzelnen Grundtypen der Grenzschicht finden [Kraus 2008]. So ist die rein dynamische Grenzschicht bei starker Westwindströmung äquatorwärts eines Tiefdruckzentrums bei starker Bewölkung anzutreffen. Die konvektive Grenzschicht tritt in großen Gebieten von globaler Skala beispielsweise in den Passatwindgebieten über den Ozeanen, über dem kalten Wasser vor der kalifornischen Küste, über dem arktischen Ozean, in sommerlichen Hochdruckgebieten oder in winterlichen Kaltluftausbrüchen aus dem asiatischen Kontinent auf. Auch in Mitteleuropa ist die konvektive Grenzschicht vor allem bei winterlicher Hochdrucklage vorhanden. Lang anhaltende stabile Grenzschichten treten besonders über winterlichen Schneeflächen und natürlich über den weiten Schneeflächen von Arktis, Antarktis und Grönland auf.

Die Entwicklung der atmosphärischen Grenzschicht hat auch Einfluss auf die Schadstoffkonzentrationen (wie z.B. von Aerosolpartikeln) in Bodennähe. Die Höhe der

Mischungsschicht ist ein wichtiger Parameter zur Charakterisierung des Potentials der atmosphärischen Grenzschicht, emittierte Partikel aufzunehmen [Schäfer et al. 2006]. Die Dynamik der Grenzschicht hat außerdem einen starken Einfluss auf die Eigenschaften des urbanen Aerosols und bestimmt zu einem großen Teil den Schweregrad von winterlichen urbanen Verschmutzungsepisoden [Olofson et al. 2009]. Partikuläre Luftschadstoffe können je nach Partikelgröße und vorhandener Turbulenz teilweise sehr lange in der Atmosphäre getragen werden, ehe sie beispielsweise durch Niederschlag wieder entfernt werden. Jahre mit besonders langen Trockenperioden weisen erhöhte Jahresmittelwertkonzentrationen auf, der Jahresmittelwert fällt jedoch bei regenreichen Jahren ab [LfULG 2011]. Eine extrem tiefe Temperatur im Winter führt zu einem erhöhten Heizbedarf und damit zu vermehrten Feinstaubemissionen aus der Verbrennung von Feststoffen (Holz, Kohle) und damit zu einem Anstieg des Jahresmittelwertes [Löschau et al. 2012]. Die Windgeschwindigkeit sowie die Höhe und Ausbildung einer Inversionsschicht sind entscheidend für die Verdünnung und Verteilung von Emissionen. Anhaltende Hochdruckwetterlagen mit Ost- oder Südostanströmung können außerdem mit Schadstoffen vorbelastete Luftmassen nach Sachsen transportieren. Auf den Transportaspekt wird im folgenden Abschnitt und im Ergebnisteil (Kapitel 5 bis 6) näher eingegangen.

2.4. Rückwärtstrajektorien und Clusteranalyse

Diese Arbeit beschäftigt sich zum Teil mit der Analyse der meteorologischen Situationen, welche zu Überschreitungen des PM_{10} Tagesmittelgrenzwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Stadt Leipzig bzw. verschiedenen definierten Regionen in Deutschland führen können. Dafür wurden hauptsächlich Rückwärtstrajektorien in Kombination mit einer Clusteranalyse verwendet. Rückwärtstrajektorien sind ein nützliches Werkzeug, um die Quellregionen von Luftschadstoffen zu untersuchen und wurden bereits für verschiedene Standorte benutzt [z.B. Birmili et al. 2001; Sciare et al. 2003; Tunved et al. 2005]. Eine umfangreiche Übersicht über Berechnungsmethoden und Anwendungen ist beispielsweise in Stohl [1998] zu finden.

Bei der Verwendung von Rückwärtstrajektorien muss allerdings immer beachtet werden, dass sehr wahrscheinlich Fehler durch unzulängliche meteorologische Eingangsdaten, Interpolationen oder durch die Verwendung eines spezifischen vertikalen Transportmodells in den Berechnungen entstehen [Harris et al. 2005]. Die Studie beschäftigte sich mit der Sensitivität eines Trajektorienmodells bezüglich der Verwendung verschiedener Eingangsparameter und kam zu dem Schluss, dass die Unsicherheit von Trajektorien auch charakteristisch für den betrachteten Ort sind. Dennoch sind Rückwärtstrajektorien für verschiedenste Untersuchungen zur Anwendung gekommen. So wurde der Langstreckentransport von Schadstoffen wie SO_2 , Sulfat, Nitrat und Ammonium in der Gasphase beispielsweise von Seibert et al. [1998] oder BC,

Organika, Sulfat, Nitrat oder Ammonium in $PM_{2,5}$ von Niemi et al. [2009] untersucht. Zusammenhänge zwischen Quellen und Rezeptoren von Aerosolpartikeln wurden von Stohl [1996] und Sciare et al. [2003] beschrieben. Die Rolle von Luftmassen im Hinblick auf Partikelgrößenverteilungen wurde beispielsweise von Birmili et al. [2001] für Mitteleuropa oder von Engler et al. [2007a] für eine nordeuropäische Ostseestation betrachtet. Auch die Wahrscheinlichkeit von Partikelneubildung durch Nukleation aus der Gasphase wurde mit Hilfe von Rückwärtstrajektorien analysiert [Nilsson et al. 2001; Sogacheva et al. 2005]. Eine Kombination aus Rückwärtstrajektorien, Landüberdeckung und meteorologischen Daten wurde entwickelt, um die Quellzuordnung verschiedener Partikelbestandteile in mehreren Größenklassen zu verbessern [van Pinxteren et al. 2010].

Um die Subjektivität der Analyse zu minimieren, wurde in dieser Arbeit ein k-Mittelwert Clusteralgorithmus angewendet. Koordinaten von Trajektorien wurden zum ersten Mal als die zu clusternden Variablen von Moody and Galloway [1988] verwendet. In Zhao et al. [2008] ist ein Vergleich von zwei verschiedenen Clustermethoden vorgestellt, mit denen Aerosolmassenspektrometerdaten (AtofMS) untersucht wurden. Auch Beddows et al. [2009] wendeten eine vollständig mathematische Clusteranalyse ohne die Benutzung von Rückwärtstrajektorien für ländliche, urbane und verkehrsnah atmosphärische Partikelgrößen an, um zeitliche und räumliche Trends in den Partikelgrößenverteilungen zu bestimmen.

Eine hierarchische Clusteranalyse ohne die Verwendung von Trajektorien wurde für die Luftschadstoffe PM_{10} , SO_2 , NO_x und O_3 von Rimetz-Planchon et al. [2008] vorgestellt. Verschmutzungsepisoden an einer urbanen Hafenstation wurden mit meteorologischen Situationen in Verbindung gebracht und herausgestellt, dass sowohl regionale Luftmassen als auch lokale Emissionen die beobachteten Konzentrationen beeinflussen. Hierbei waren zwei grundsätzliche Luftqualitäts-Regimes zu verzeichnen: erstens geringe PM_{10} Massenkonzentrationen unter Tiefdruckbedingungen und aufgrund der günstigen meteorologischen Bedingungen guter Verteilung der Schadstoffe und zweitens höhere PM_{10} Massenkonzentrationen, welche unter Hochdruckbedingungen auftraten. Ozonkonzentrationen wurden durch Trajektorien-Clustermethoden von Brankov et al. [1998] oder Cape et al. [2000] interpretiert. Ein Vergleich von drei verschiedenen statistischen Clustertechniken als Klassifizierung von modellierten atmosphärischen Trajektorien wurde von Kassomenos et al. [2010] vorgestellt. Hierbei stellte sich der k-Mittelwert Clusteralgorithmus als am unempfindlichsten bezüglich der Ankunftshöhe der Trajektorien heraus. Bei dieser Studie wurden statistisch signifikant unterschiedliche PM_{10} Massenkonzentrationen für die verschiedenen Cluster gefunden und die Cluster konnten mit Langstreckentransport von Partikeln in Verbindung gebracht werden.

Auch Kemp [1993] und Mukai and Suzuki [1996] haben Aerosoldaten auf Grundlage von Trajektorien bestimmter Luftmassen analysiert. Der Transport von Aerosolparti-

keln über längere Strecken wurde von Buchanan et al. [2002] abgeschätzt und Dutkiewicz et al. [2004] untersuchten den Langstreckentransport von Sulfat. In ähnlicher Weise zur hier benutzten Methode bildeten Rückwärtstrajektorien bei Abdalmogith and Harrison [2005] die Basis für die Clusterung. Danach wurden den definierten Clustern Schadstoffkonzentrationen wie die PM_{10} Masse zugeordnet. Es wurden die höchsten Konzentrationen von Sulfat, Nitrat und der PM_{10} Masse und die niedrigsten Chlorid-Konzentrationen in kontinentalen Luftmassen gefunden und umgekehrt, die geringsten Schadstoffkonzentrationen in schnell transportierten marinen Luftmassen. Im Winter und Frühjahr wurden ebenfalls höhere Partikelmassenkonzentrationen beobachtet als im Sommer und Herbst. Ebenfalls eine Saisonalität in den Clustern wurde von Hafner et al. [2007] gezeigt. Hier wurden $PM_{2,5}$ Massenkonzentrationen sowie Niederschlagsmengen dem Ergebnis einer k-Mittelwert Clustermethode auf Basis von Rückwärtstrajektorien zugeordnet.

Um in Spanien häufig auftretenden Saharastaub von anderen Aerosoltypen unterscheiden zu können, wurde von Toledano et al. [2009] eine Clusteranalyse mit Rückwärtstrajektorien verwendet. Hierbei wurde untersucht, inwieweit sich das an der Station (Rezeptor) beobachtete Aerosol in Abhängigkeit von der Luftmassenherkunft und der zurückgelegten Transportwege unterschieden. Daraus konnte eine quantitative Charakterisierung der aerosoloptischen Dicke (AOD) für die spezielle Station gewonnen werden. In Baker [2010] kam eine Clusteranalyse zum Einsatz, um den Langstreckentransport von Luftmassen und den damit verbundenen Partikelmassenkonzentrationen zu untersuchen. Die Methode, die für diese Arbeit benutzt wurde, wurde bereits mehrfach erfolgreich für die Interpretation von grenzüberschreitendem Transport von Luftschadstoffen angewendet [Engler et al. 2007b; Birmili et al. 2010].

2.5. Schadstoffausbreitung: regionale Modellierung und Modellevaluierungen

Um das langfristige Klima und auch das kurzfristige Wetter vorhersagen zu können, ist eine Beschreibung des Strahlungshaushaltes und damit der Wolken erforderlich. Für eine realitätsnahe Beschreibung der mikrophysikalischen Wolkenprozesse ist wiederum die Beschreibung der mikrophysikalischen Aerosolprozesse erforderlich. Es gibt eine Vielzahl an globalen und regionalen Modellen, die sich mit der Transformation und der Ausbreitung von Aerosolpartikeln und Schadstoffen beschäftigen, worauf in diesem Abschnitt kurz eingegangen werden soll. Einen ausführlichen Review vieler existierender Chemie-Transport-Modelle (CTM) wurde von Kukkonen et al. [2012] veröffentlicht, welcher auch einen Vergleich der Struktur, Randbedingungen, Aerosolparametrisierung, Mikrophysik, Emissionen und Setups etc. beinhaltet. Außerdem finden sich Vorschläge, wie sich die Atmosphären-Modellierung weiter entwickeln könnte. In Zhang [2008] ist eine detaillierte Übersicht über die Geschichte und den

gegenwärtigen Status der Modellierung mit gekoppelten Meteorologie- und Chemie-Transport-Modellen zu finden. Seit den 1990'er Jahren wurden eine Vielzahl von online gekoppelten Klima-Chemie-Modellen entwickelt, um troposphärische Aerosole, ihren direkten Strahlungsantrieb und ihre Wechselwirkungen mit Wolken zu betrachten. Der Autor stellt heraus, dass reale Messungen bedeutend sind, um Modelle hinsichtlich Sensitivität, Unsicherheiten oder Abweichungen validieren zu können, was einer korrekten Vorhersage zugrunde liegt.

Vielfach wird das atmosphärische Aerosol in Modellen mit einem massenbasierten Schema betrachtet. Die Partikel werden nur in ihrer Gesamtmasse und den Einzelmassen der chemischen Komponenten betrachtet. So wurde das Aerosol lange auch in dem in dieser Arbeit angewendeten Modell MUSCAT parametrisiert [Wolke et al. 2004]. Bereits 1998 stellten Ackermann et al. [1998] das modale Aerosoldynamik-Modell MADE vor, zu diesem Zeitpunkt jedoch ohne Evaluierung mit realen Messungen. Ein sektionaler Ansatz für eine größen aufgelöste Beschreibung des Aerosols wurde von Gong [2003] beschrieben. Das Aerosolmodul SALSA wurde in Kokkola et al. [2008] vorgestellt und mit anderen Modellen verglichen. Zur Beschreibung der Aerosol-mikrophysikalischen Prozesse entwickelten Vignati et al. [2004] dann das Aerosolmodul M7, was in erweiterter Form auch für diese Arbeit Anwendung fand (siehe Kapitel 4). Zur Genauigkeit des Moduls wurden von den Autoren allerdings nur quantitative Aussagen getroffen. Eine Weiterentwicklung von M7 stellt das Modul GMXe dar, welches auf dem gleichen Mikrophysik-Kern beruht, jedoch um die Komponenten Nitrat und Ammonium erweitert wurde [Pringle et al. 2010].

Wie bereits erwähnt, ist die Validierung dieser Modelle aber essentiell zur korrekten Beschreibung und Prognose realer Bedingungen in der Atmosphäre. In der Literatur werden vielfach lediglich PM_{10} Gesamtmassenkonzentrationen oder Jahresmittelwerte z.B. der Partikelanzahl oder verschiedene Modelle untereinander verglichen. So wurden in der Initiative zur Evaluierung von Luftqualitätsmodellen AQMEII (*Air Quality Model Evaluation International Initiative*) 15 Modelle hinsichtlich der PM_{10} und $PM_{2,5}$ Massenkonzentration und der darin enthaltenen chemischen Komponenten, der Konzentration von Vorläufergasen und der nassen und trockenen Deposition gegenübergestellt [Solazzo et al. 2012]. Hier wurde eine systematische Unterschätzung von PM_{10} gefunden. Auch Stern et al. [2008] untersuchten die Fähigkeit von fünf verschiedenen Modellen, erhöhte PM_{10} Massenkonzentrationen zu simulieren und stellten eine Tendenz zur Unterschätzung fest, welche mit zunehmender PM Konzentration noch zunahm. Als Fehlerquellen wurden hier ungenaue Emissionsdaten bzw. fehlende Partikelquellen und eine unvollständige Beschreibung der Prozesse und Parameter in der atmosphärischen Grenzschicht (AGS) vermutet. Hieraus ergibt sich die Bedeutung einer korrekten Beschreibung der meteorologischen Bedingungen als Voraussetzung für die Simulation des Aerosols. Zwei Modellstudien zur Betrachtung von Sulfatpartikeln, welche die selben ECMWF Reanalyse-Daten als Antrieb benutzen, wurden von

Pozzoli et al. [2011] untersucht. Auch in Colette et al. [2011] wurden sechs verschiedene Modelle hinsichtlich der PM_{10} Massenkonzentration miteinander verglichen, aber auch hier finden sich lediglich Betrachtungen von Jahresmittelwerten und nicht von Zeitreihen.

Eine Evaluierung mit Messdaten und Vergleich der PM_{10} Simulationen von verschiedenen Chemie-Transport-Modellen stellten Vautard et al. [2007] vor. Die Simulation der PM_{10} Massenkonzentration fiel auch hier relativ schlecht aus, wobei die Masse meist unterschätzt und die jahreszeitliche Variation ungenau wiedergegeben wurde. Der Einfluss von Reduktionsstrategien für Emissionen auf die Luftqualität auf europäischer Skala wurde in einem Modellvergleich von über 20 Modellen untersucht [Cuvelier et al. 2007]. Auch hier wurde die PM_{10} Massenkonzentration unterschätzt und verglichen mit Ozon schlechtere Korrelationen mit Messwerten gefunden. Eine starke Korrelation von Meteorologie und Luftqualität wurde von Mues et al. [2012] nachgewiesen. Hier wurden zwei Modelle für eine spezielle Wetterlage mit erhöhten PM_{10} Massenkonzentrationen mit den Messwerten mehrerer Stationen verglichen. Hohe PM_{10} Massenkonzentrationen konnten durch die Akkumulation von Schadstoffen in der unteren Troposphäre entstehen, was jedoch von den Modellen nicht reproduziert werden konnte. Als Gründe wurden hier fehlende jedoch wichtige Emissionen oder Unsicherheiten darin vermutet.

Das MADE Aerosol Modul wurde auch in das gekoppelte Meteorologie-Chemie-Transport-Modell WRF/Chem implementiert und mit $PM_{2,5}$ Messdaten verglichen [Grell et al. 2005]. Auch hier wurden die realen Werte unterschätzt und nur eine mäßige Korrelation zwischen Modell und Messung gefunden. Die Massenkonzentrationen von Sulfat- und Nitrataerosol wurden von de Meij et al. [2006] unter Verwendung zweier verschiedener Emissionskataster simuliert und mit Messungen verglichen, wobei große Unterschiede in den bodennahen Konzentrationen auftraten. Eine Validierung des Modellsystems POLYPHEMUS in Kombination mit dem sektionalen Aerosolmodul SIREAM mit Fokus auf Aerosolen wurde von Sartelet et al. [2007] vorgestellt. Hier wurden die räumliche Verteilung, Jahresmittel- und Tagesmittelwerte der Massenkonzentrationen von PM_{10} und $PM_{2,5}$ mit Messwerten verglichen. Zur Evaluierung eines Modells mit Beobachtungsdaten wurden auch von Beekmann et al. [2007] Jahresmittel- und Tagesmittelwerte der Massenkonzentrationen der einzelnen chemischen Komponenten im PM_{10} verwendet. Inwiefern das Chemie-Transport-Modell LOTOS-EUROS in der Lage ist, die PM_{10} Massenkonzentrationen vorherzusagen wurde von Manders et al. [2009] getestet. Hierbei wurde eine Übereinstimmung im Bereich von 20 % für die Jahresmittelwerte der Massenkonzentrationen der einzelnen Komponenten (Sulfat, Nitrat, Ammonium) und eine zufriedenstellende zeitliche Korrelation gefunden. Das Modellsystem COSMO-ART mit Aerosolmodul MADE wird in Vogel et al. [2009] beschrieben und für zwei kurze Episoden mit Messungen der aerosoloptischen Dicke AOD sowie der PM_{10} und $PM_{2,5}$ Massenkonzentration verglichen. Auch hier wurde

eine Unterschätzung der realen PM_{10} Massen gefunden, was vermutlich auf fehlende Emissionen und eine Unterschätzung des Anteils an organischem Material in den Partikeln zurück zu führen ist. De Brugh et al. [2011] koppelten das Aerosolmodul M7 an ein globales Chemie-Transport-Modell und simulierten dabei geringere Massenkonzentrationen für PM_{10} verglichen mit Beobachtungsdaten. Hier konnten zu starke Depositionsprozesse als Ursache für die Unterschätzung identifiziert werden. De Ruyter de Wildt et al. [2011] stellten heraus, dass die Massenkonzentrationen von PM_{10} für ca. drei Tage gut vorhergesagt werden können, sich danach jedoch eine deutliche Verschlechterung aufgrund der unsicheren Vorhersage der meteorologischen Bedingungen ergab. Dies ist eine wichtige Erkenntnis, impliziert es doch die Möglichkeit der Information der Bevölkerung und ebenso der kurzfristigen Planung von Emissions-Reduktionsmaßnahmen für eben diese Dauer der realistischen Vorhersage. Das Aerosol-Mikrophysikmodul M7 wurde auch in das Modellsystem COSMO-CLM implementiert und mit Jahresmittelwerten der aerosoloptischen Dicke AOD verglichen [Zubler et al. 2011]. Dies stellt eine Betrachtung der gesamten Atmosphärensäule dar und ist daher von anderem Charakter als die vielfach und auch in dieser Arbeit betrachteten Bodenmessungen. Das hier verwendete Modellsystem COSMO-MUSCAT wurde von Meier et al. [2012] für optische Parameter mit AERONET-Daten und der Massenkonzentrationen von PM_{10} und $PM_{2,5}$ mit EMEP-Daten verglichen, wobei auch hier die realen Werte vom Modell unterschätzt wurden.

In Herzog et al. [2004] ist eine Gegenüberstellung eines Aerosolmoduls, welches die Partikelgrößenverteilungen mit Moden und deren Momenten parametrisiert, mit einem sektionalen Ansatz vorgestellt. Ein modales Aerosolmodul zur Implementierung in 3D Luftqualitätsmodelle wurde in Sartelet et al. [2006] beschrieben und mit zwei anderen Modellansätzen verglichen. Eine Modellevaluierung für ein Mikrophysikmodul zur Simulation der Mikrophysik des Aerosols einschließlich Partikelgrößenverteilungen, Massen- und Anzahlkonzentrationen zeigen auch Trivitayanurak et al. [2008]. Hier wurde die Bedeutung von akkuraten meteorologischen Eingangsparametern, aktuellen Emissionsdaten und realistischer Beschreibung von Wolken für die Evaluierung von Aerosol-Mikrophysikmodulen hervorgehoben.

Für Aerosol-Mikrophysikmodelle finden sich in der Literatur einige Vergleiche mit Messungen der Partikelanzahlkonzentration oder der Partikeldurchmesser für verschiedene Größenbereiche. So fanden Easter et al. [2004] eine schlechte Übereinstimmung der Partikelanzahl und -größe im Akkumulationsmode mit experimentell bestimmten Daten, wobei allerdings auch nur Jahresmittel verglichen wurden. Eine Kopplung des Aerosolmoduls MADE an das ECHAM4 Modell wurde von Lauer et al. [2005] mit Messungen evaluiert. Hierbei wurden die chemische Zusammensetzung, die Anzahlkonzentrationen und Partikelgrößenverteilungen auf globaler Skala verglichen. Aber auch hier wurden keine detaillierten Zeitreihen sondern Jahresmittelwerte oder Monatsmittel über mehrere Jahre betrachtet. Das REMOTE-Modell wurde mit dem de-

taillierten Mikrophysik-Modul M7 erweitert, die Simulationsergebnisse vorgestellt und mit Messungen der Verteilung und Variabilität von primären und sekundären Aerosolpartikeln verglichen [Langmann et al. 2008]. Außerdem wurden die Modellergebnisse, die unter Verwendung der detaillierten Aerosol-Mikrophysik gewonnen wurden mit denen aus dem klassischen massenbasierten Ansatz verglichen. Große Unterschiede zwischen simulierten und gemessenen Konzentrationen wurden hier durch ungenaue Emissionsdaten und fehlende Bildung von Sekundärpartikeln erklärt. In Liu et al. [2012] wurden zwei unterschiedlich detaillierte Versionen des Aerosolmoduls MAM (MAM3 und MAM7) mit Beobachtungsdaten verglichen. Die geographischen und zeitlichen Variationen der Partikelmasse, -anzahlkonzentration, -größenverteilungen und optischen Eigenschaften konnten mit dem Modell qualitativ wiedergegeben werden. Dennoch gab es auffällige Abweichungen, wobei allerdings wiederum nur Mittelwerte über ganze Jahre oder Episoden betrachtet wurden. Auch das Aerosol-Mikrophysikmodul SALSA wurde an das ECHAM5-HAM Modell gekoppelt [Bergman et al. 2012] und mit Messungen der marinen und kontinentalen Partikelanzahlgrößenverteilungen, Massenkonzentrationen der einzelnen chemischen Komponenten und der aerosoloptischen Dicke verglichen. Hier wurden außerdem die beiden Aerosolmodule SALSA und M7 gegenübergestellt, wobei sich eine ähnlich gute Übereinstimmung mit den Messungen für beide Module ergab. Es wurde kein Vergleich von detaillierten Zeitreihen vorgestellt, die Anzahlkonzentrationen im Jahresmittel lagen jedoch etwa eine Größenordnung unter den Beobachtungsdaten.

Als Fazit dieses Überblicks ergibt sich nun Folgendes: In der Literatur existiert eine Vielzahl an Arbeiten über den Vergleich von Atmosphärenmodellen untereinander oder mit realen Messungen. Diese basieren jedoch oft auf dem groberen Massenansatz, wobei auch da signifikante Unterschiede zwischen Modellen und Messungen auftreten. Die PM_{10} Massenkonzentration wird häufig unterschätzt, wofür im Allgemeinen die ungenauen Emissionsdaten, die jeglicher Schadstoffausbreitungssimulation zugrunde liegen, als Ursache vermutet werden. Seltener finden sich Validierungen von detaillierten Aerosolmodulen, welche auch die Aerosol-Mikrophysik beschreiben. Hierbei werden jedoch meist nur Langzeitmittel und keine Zeitreihen von Partikelgröße, -anzahl oder -größenverteilung mit realen Beobachtungsdaten verglichen. Für die Betrachtung von Gesundheitseffekten oder zur realistischen Modellierung von Wolken- oder Niederschlagsprozessen ist jedoch gerade der zeitliche Verlauf dieser Parameter von Belang. Daher müssen auch Aerosol-Mikrophysik-Modelle auf ihre Übereinstimmung mit Messdaten untersucht werden, denn nur so ist eine Verbesserung der Modelle und damit eine realistischere Beschreibung der Zustände und Prozesse in der Atmosphäre möglich.

3 Datensätze und Methoden

3.1. Datensätze

3.1.1. PM Massenkonzentrationen in Leipzig

Messstationen

In dieser Arbeit wurden die PM₁₀ Massenkonzentrationen und Überschreitungen des Tagesmittel-Grenzwertes von 50 µg/m³ in der Stadt Leipzig für den Zeitraum Januar 2005 bis Dezember 2009 untersucht. Als Beobachtungsstationen dienten eine verkehrsnah Station („Leipzig-Mitte“) und eine urbane Hintergrundstation („Leipzig-West“), welche beide durch das Sächsische Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG) betrieben wurden. Um den regionalen PM-Hintergrund beurteilen zu können, wurden die Daten der TROPOS-Forschungsstation Melpitz, etwa 50 km nordöstlich von Leipzig gelegen, herangezogen.

Leipzig-Mitte ist eine verkehrsnah Station in Leipzig, welche sich in unmittelbarer Nähe zum Innenstadtring und zum Hauptbahnhof befindet (Abb. 3.1). Unter den drei Stationen weist Leipzig-Mitte die höchsten Partikel- und Stickoxid-Konzentrationen auf. Unmittelbar nördlich der Station treffen sich drei Hauptstraßen an einer Kreuzung mit einem täglichen Verkehrsaufkommen von 44 000 Fahrzeugen (48 000 werktags) im Jahr 2008. Der Messcontainer selbst befindet sich an einer Nebenstraße, welche mit dem Innenstadtring durch eine Ampel verbunden ist. Dies führt manchmal zu Verkehrsstaus in wenigen Metern Abstand zum Aerosoleinlass der Messstation. In den Jahren 2007 und 2008 haben Baustellenarbeiten gelegentlich die Messungen gestört. Der Einfluss dieser Bauarbeiten wurde für Dezember 2007 und Januar 2008 auf einen zusätzlichen Beitrag von ca. 10 µg/m³ zum Monatsmittelwert der PM₁₀ Massenkonzentration geschätzt [Stadt Leipzig 2009].

Leipzig-West liegt im westlichen Stadtrandgebiet von Leipzig und wurde als urbane Hintergrundstation klassifiziert. Der Abstand zur Station Leipzig-Mitte beträgt etwa 7 km. Das Wohngebiet besteht aus mehrstöckigen Wohnhäusern, welche mit Zentral-

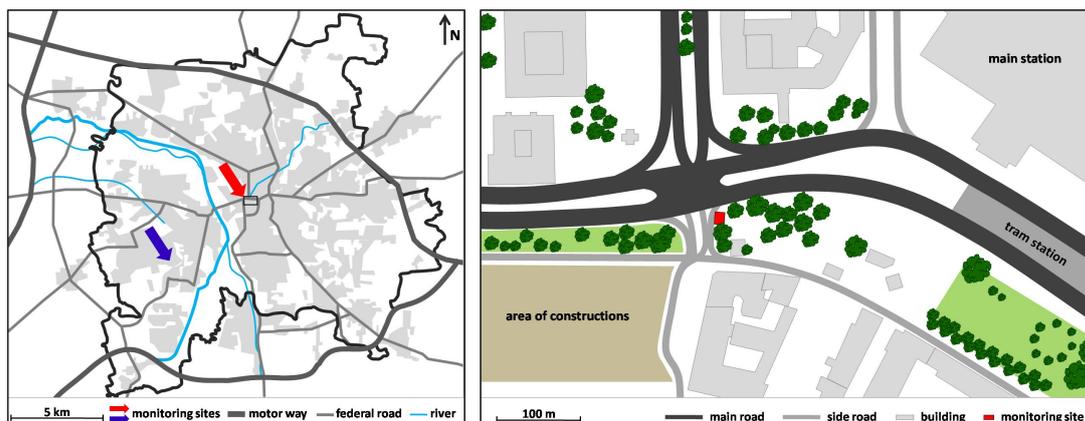


Abbildung 3.1. – Regionale Karte von Leipzig, einschließlich der detaillierten Umgebung der LfULG Luftmessstation Leipzig-Mitte.

heizung beheizt werden. Die Station wurde auf einem Krankenhausesgelände aufgebaut, wobei die unmittelbare Umgebung hauptsächlich aus Grünanlagen besteht. Etwa 30 m westlich der Station verläuft eine Nebenstraße.

Melpitz ist eine Forschungsstation ca. 50 km nordöstlich von Leipzig. Die Station ist für mehrere Kilometer von flachem Weideland, landwirtschaftlich genutzten Flächen und Wäldern umgeben. Die Messstation kann als repräsentativ für den mitteleuropäischen regionalen Hintergrund angesehen werden [Engler et al. 2007b; Spindler et al. 2010]. Die Station ist Luftlinie etwa 400 km in nordwestlicher und 1000 km in westlicher Richtung von der Nordsee entfernt. Melpitz ist Teil der Netzwerke ACTRIS (*Aerosols, Clouds, and Trace gases Research InfraStructure network*), EMEP (*European Monitoring and Evaluation Programme*), GUAN (*German Ultrafine Aerosol Network*; Birmili et al. 2009) und GAW (*Global Atmosphere Watch*).

PM Messungen

In Leipzig-Mitte und Melpitz wurden die 24 h Massenkonzentrationen von PM_{10} und $PM_{2,5}$ mittels Digital *High Volume* Sammlern (Walter Riemer Messtechnik, Deutschland) bestimmt [Gnauk et al. 2005]. PM_{10} Massenkonzentrationen in Leipzig-Mitte und Melpitz sowie $PM_{2,5}$ in Melpitz waren täglich verfügbar, aber $PM_{2,5}$ in Leipzig-Mitte nur jeden zweiten Tag. In Leipzig-Mitte wurden Glasfaser-Filter benutzt. Die 24 h Filter-Proben von Melpitz wurden zusätzlich auf die tägliche chemische Zusammensetzung der Partikel hinsichtlich der Hauptionen (Sulfat, Nitrat, Ammonium, Chlorid, Natrium, Calcium, Magnesium, Kalium) sowie organischem und elementarem Kohlenstoff untersucht, weshalb die Benutzung von Quarzfaser-Filtern notwendig war.

Diese Quarzfaser-Filter wurden für 24 h auf $105\text{ }^{\circ}\text{C}$ vorgeheizt, um Blindproben von OC zu vermeiden [Spindler et al. 2010]. Die Proben wurden vor dem Wiegen für 48 h bei einer relativen Feuchte von $50(\pm 2)\%$ und einer Temperatur von $20(\pm 2)\text{ }^{\circ}\text{C}$

konditioniert. Die Unsicherheiten der gravimetrischen Massenbestimmung beträgt ungefähr 1 bis 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und für die Ionenanalyse weniger als 10 % [Neusüß et al. 2000; Brüggemann et al. 2005].

In Leipzig-West wurden die PM_{10} Massenkonzentrationen mittels Standard TEOM-Instrumenten (*Tapered Element Oscillating Microbalance*) bei einer zeitlichen Auflösung von 30 min bestimmt. Diese Methode ist fehlerbehaftet, weil das Instrument standardmäßig bei einer Temperatur von 50 °C arbeitet, was eine systematische Unterschätzung der realen PM_{10} Massenkonzentrationen von bis zu 50 % aufgrund von Verdunstungsverlusten flüchtiger Komponenten wie Ammoniumnitrat zur Folge hat [Charron et al. 2004; Spindler et al. 2010]. Der Netzbetreiber hat ein generelles Korrekturschema auf die PM_{10} Massenkonzentrationen von Leipzig-West angewendet, welches die gemessenen TEOM-Werte an eine limitiert vorhandene Anzahl von Proben, welche mittels der Referenzmethode bestimmt wurden, adjustiert. Dieses Korrekturschema beruht auf einer multiplen Regressionsanalyse, in welche die Umgebungstemperatur und relative Feuchte als Kontrollvariablen eingehen. Die Mittelwerte für Leipzig-West, die mit dieser Methode erhalten werden, können als verlässlich angesehen werden, wohingegen individuelle Tagesmittelwerte mit erheblichen Ungenauigkeiten behaftet sein können.

Ergänzende Daten

An den drei Beobachtungsstationen, welche in Kapitel 5 betrachtet werden, wurden Messungen von lokalen meteorologischen Größen durchgeführt. Zusätzlich wurden 72 h Rückwärtstrajektorien mit dem NOAA-HYSPLIT (*HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory*) Modell [Draxler and Hess 2004] berechnet. Für die Trajektorien-Cluster-Analyse wurden außerdem Radiosondendaten vom meteorologischen Observatorium Lindenberg, welches vom Deutschen Wetterdienst (DWD) betrieben wird, verwendet. Lindenberg liegt etwa 150 km nordöstlich von Leipzig entfernt, wobei das Gebiet dazwischen durch flaches Gelände gekennzeichnet ist. Deshalb können die dort gemessenen Profile als ebenfalls für Leipzig gültig angesehen werden.

3.1.2. PM Massenkonzentrationen deutschlandweit

Regionen

Um den Einfluss von regionalen, urbanen und Verkehrsquellen charakterisieren zu können, wurde die Trajektorien-Cluster-Analyse außerdem für den gleichen Zeitraum (2005 bis 2009) auf fünf definierte Regionen innerhalb Deutschlands angewendet, da sich die Verwendung von Einzelstationen als recht anfällig gegenüber der Stationsauswahl erwiesen hat. In Abb. 3.2 sind diese Regionen und alle betrachteten Stationen zu erkennen: A) Ost-Brandenburg und -Sachsen, B) Berlin und Umland, C) Mitteldeutschland, D) westliches Nordrhein-Westfalen und E) Mittelrheinebene (Karlsruhe bis Frankfurt/M.).

In jeder Region sind mehrere Stationen der drei verschiedenen Stationstypen (ländlich, urbaner Hintergrund und verkehrsbeeinflusst) vertreten, was repräsentative Aussagen über die PM_{10} Massenkonzentrationen ermöglicht. Jede der Regionen ist aufgrund des grenzüberschreitenden Transportes und/oder lokaler Emissionen von Interesse, da sie unter Berücksichtigung von Grenznähe (zu Polen, Tschechien, Frankreich, BeNeLux-Staaten) oder Ballungszentren ausgewählt wurden. Insbesondere die Regionen B bis E sind außerdem wegen ihrer Bevölkerungsdichte und damit der Vielzahl an von hohen PM_{10} Massenkonzentrationen betroffenen Menschen relevant.

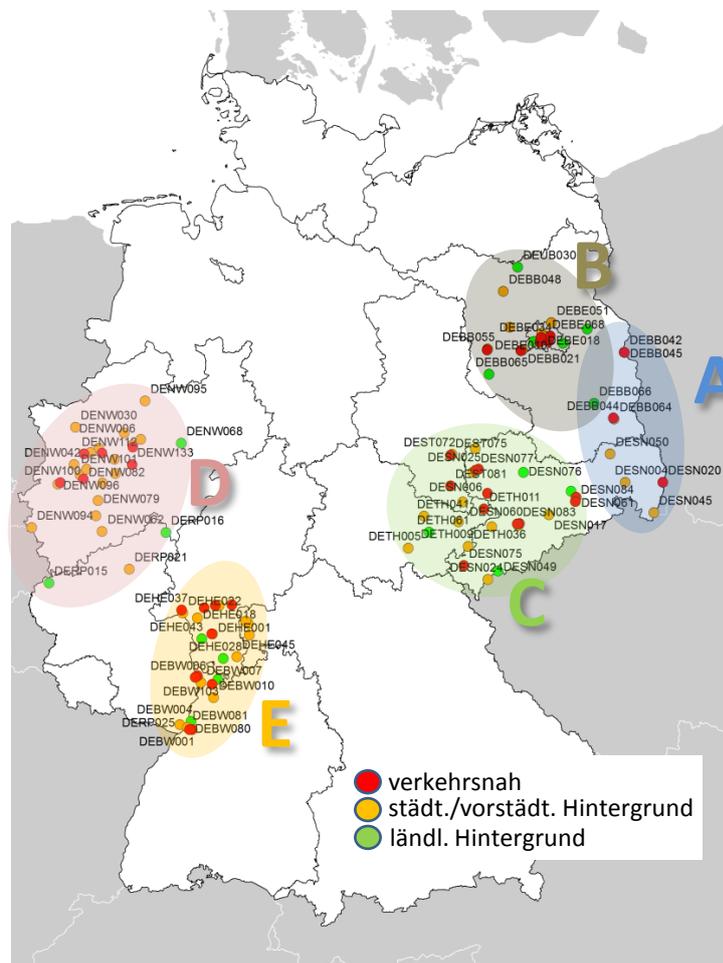


Abbildung 3.2. – Karte von Deutschland mit den für die betrachteten Regionen verwendeten Stationen.

PM Messungen

Für die Untersuchung der Ursachen von PM_{10} Grenzwertüberschreitungen anhand von fünf definierten Regionen in Deutschland (siehe Abschnitt 3.1.2) wurden außerdem die PM_{10} Tagesmittelwerte einer Vielzahl von deutschen Messstationen verwendet.

Tabelle 3.1. – Endpunkte der Rückwärtstrajektorien (RWT) und Standorte der verwendeten Radiosondenaufstiege (RaSo) für die einzelnen Regionen.

Region	RWT-Endpunkt	RaSo-Standort
A	Melpitz	Lindenberg
B	Berlin	Lindenberg
C	Melpitz	Lindenberg
D	Mühlheim	Essen
E	Langen	Idar-Oberstein

Diese Beobachtungsdaten wurden von den Landesumweltämtern erhoben, qualitätskontrolliert und bezüglich des Referenzmessverfahrens (Gravimetrie) homogenisiert. Beim Umweltbundesamt UBA werden diese Daten regelmäßig zusammengetragen und wurden für diese Arbeit zur Verfügung gestellt. Eine Übersicht der einbezogenen Stationen, deren Standortkategorie und der verwendeten Messverfahren findet sich in Tabelle A.1.

Ergänzende Daten

Auch für die deutschlandweite Betrachtung der PM Konzentrationen wurde eine Trajektorien-Clusteranalyse durchgeführt, für welche 72 h Rückwärtstrajektorien mit dem NOAA-HYSPLIT Modell berechnet und verfügbare Radiosondendaten zusammengetragen wurden. Tabelle 3.1 enthält eine Übersicht über die verwendeten Daten für jede Region.

3.1.3. Datensatz für den Modellvergleich

Messstationen

Für den Vergleich mit dem COSMO-MUSCAT-Modell wurden Beobachtungsdaten der Partikelanzahlgrößenverteilung verwendet. Hierfür standen die Daten des Aerosolnetzwerkes GUAN [Birmili et al. 2009] zur Verfügung. Eine Übersicht der Stationen ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Für den Modellvergleich eigneten sich jedoch nur ländliche Stationen, da ein erster Test-Vergleich ergab, dass das Modell relativ kleinräumige, urbane oder gar Verkehrseffekte auf das Aerosol nicht auflösen kann. Außerdem sind auch Gebirgsstationen für einen Modellvergleich ungünstig, da auch orographische Strukturen ein Problem in der Modellauflösung darstellen können. Aus diesem Grund wurden für den Modellvergleich die Stationen Melpitz (siehe Abschnitt 3.1.1), Bösel und Waldhof ausgewählt.

Bösel ist eine Station, die von der niedersächsischen Behörde zur Überwachung der Luftqualität (Staatliches Gewerbeaufsichtsamt Hildesheim) betrieben wird. Im Süden grenzt die Station an landwirtschaftlich genutzte Flächen, im Norden hingegen

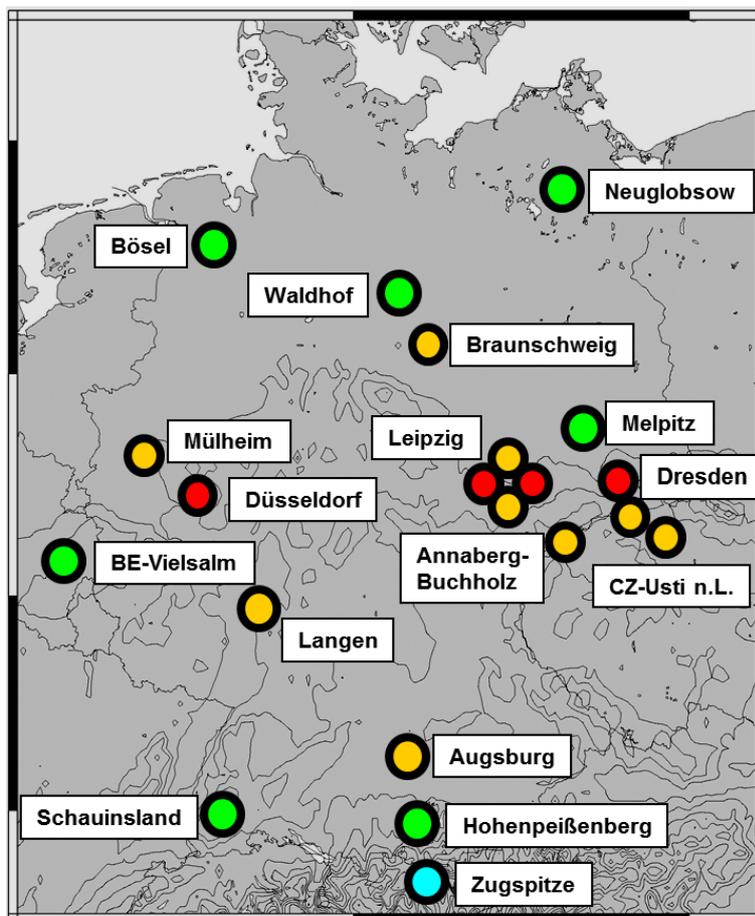


Abbildung 3.3. – Karte von Deutschland mit den für den Modellvergleich verwendeten Stationen aus dem GUAN Netzwerk [Birmili et al. 2009]. Rot: verkehrsnah, gelb: urbaner Hintergrund, grün: regionaler Hintergrund.

an bewohntes Gebiet des Dorfes Bösel. In dieser Gegend wird intensive Viehzucht betrieben. Es ist davon auszugehen, dass die zugehörigen Emissionen von gasförmigem Ammoniak und organischen Verbindungen einen Einfluss auf die Bildung von sekundären Aerosolpartikeln in dieser Region haben.

Waldhof ist eine der permanent betriebenen Stationen des Umweltbundesamtes (UBA). Die Station ist in allen Richtungen von Wald umgeben und aus diesem Grund in nur sehr geringem Maße von lokalen Quellen beeinflusst. Deshalb können die Messungen von dort als repräsentativ für den Hintergrund der norddeutschen Tiefebene angesehen werden.

Bestimmung der Partikelanzahlgrößenverteilungen

Für den Modell-Vergleich der physikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel wurden die Partikelanzahlgrößenverteilung (PGV_a) mit einem Partikelspektrometer bestimmt. An der Station Melpitz wurde dafür im submikronen Bereich ein Mobilitäts-

(TROPOS-TDMPS, Birmili et al. [1999]) und im supermikronen Bereich ein aerodynamisches Partikelgrößenpektrometer (TSI-APS, Modell 3321) [TSI 2004] verwendet. In Waldhof und Bösel wurde nur der submikrone Bereich mittels Mobilitätspartikelgrößenpektrometern (TROPOS-SMPS, Wiedensohler et al. [2012]) untersucht. Die Daten der Partikelanzahlgrößenverteilungen liegen mit einer zeitlichen Auflösung von ca. 5-10 Minuten für den Größenbereich von fünf bis 800 nm (Partikeldurchmesser D_p), in Melpitz bis 10 μm vor. Zum anschaulicheren Vergleich mit den Modellergebnissen wurden an die Partikelanzahlgrößenverteilungen für die Dauer des Modelllaufes (25.3. bis 20.4.2009) Log-Normalmoden angefügt. Hierfür wurde der Parameter σ für den Aitken- und den Akkumulationsmode auf den gleichen Wert wie im Modell verwendet ($\sigma=1,59$) festgelegt und die beiden Parameter μ und N so lange iteriert, bis eine bestmögliche Übereinstimmung zur gemessenen Verteilung vorlag. Die Parameter μ und N sind so zum einfachen und anschaulichen Vergleich mit dem Modelloutput verfügbar.

3.2. Datenauswertung

Von allen PM Daten wurden Tagesmittelwerte (Messdauer 00:00 bis 24:00 MEZ) berechnet. Basierend auf der täglichen PM_{10} Massenkonzentrationen wurde jeder Messtag entsprechend der EU-Direktive 1999/30/EU in einen Überschreitungstag oder nicht-Überschreitungstag klassifiziert.

3.2.1. Das Verkehrs-Inkrement

Für den Ballungsraum Berlin zeigten Lenschow et al. [2001], dass die PM_{10} Massenkonzentrationen an einer verkehrsnahen Station als Überlagerung von drei Quelltyp-Beiträgen beschrieben werden kann: a) der regionale Hintergrund, b) das urbane Inkrement, welches von Quellen in der Stadt aber nicht aus unmittelbarer Umgebung stammt und c) das Verkehrs-Inkrement, welches vom Fahrzeugverkehr der angrenzenden Straßen stammt. Diese Beiträge wurden von Lenschow et al. [2001] durch Differenzenbildung der verkehrsnahen, urbanen Hintergrund- und regionalen Hintergrundkonzentrationen abgeschätzt. In dieser Arbeit wird vorrangig das Verkehrs-Inkrement ΔPM_{10} benutzt, welches wie folgt definiert wurde:

$$\Delta \text{PM}_{10} = \text{PM}_{10,V} - \text{PM}_{10,l} \quad (3.1)$$

Es gab zweierlei Gründe, weshalb die urbanen Hintergrundkonzentrationen ausgespart wurden. Erstens wurde eine relativ gute Übereinstimmung zwischen urbanen und ländlichen PM_{10} Hintergrundkonzentrationen in Leipzig gefunden, was in Abschnitt 5.1.1 gezeigt wird. Dies führte in einem Großteil der Zeit zu einem urbanen

Inkrement von null. Zweitens ist die Messgenauigkeit für PM_{10} wegen der Verwendung des Standard-TEOM an der urbanen Hintergrundstation deutlich vermindert, wie bereits in Abschnitt 3.1.1 gezeigt wurde. Diese Gründe erlauben keine fehlerfreie Interpretation des urbanen Inkrements innerhalb der Messgenauigkeit.

3.2.2. Rückwärtstrajektorien-Clusteranalyse

Rückwärtstrajektorien haben sich als wertvolles Mittel erwiesen, um die großskalige Herkunft von Luftschadstoffen zu untersuchen [Stohl 1998]. Die Rückwärtstrajektorien-Clusteranalyse verknüpft ähnliche Trajektorien in definierte Gruppen (Cluster). Die entstehenden Wetterlagen sollen sich unterscheiden bezüglich a) der Richtung der ankommenden Trajektorien (d.h. Luftmassen), b) der vertikalen Schichtung der Atmosphäre (also labil/stabil) und c) der durch die Einteilung entstehenden PM_{10} Mittelwerte. Die Richtung der Trajektorien erlaubt in grenznahen Gebieten möglicherweise eine Erklärung der beobachteten PM_{10} Massenkonzentrationen durch grenzüberschreitenden Transport. Die Betrachtung der vertikalen Atmosphärenschichtung erlaubt in manchen Fällen eine Erklärung von bodennahen Schadstoffniveaus durch Inversionswetterlagen. Die Trajektorien-Clusteranalyse ist vom Prinzip her eine rezeptororientierte Analyse. Sie betrachtet die an einem festen Ort beobachteten Schadstoffniveaus als Funktion der ankommenden Luftmassen bzw. meteorologischer Parameter. Zwei der Hauptvorteile sind, dass diese Methode ein gewisses Maß an Objektivität bietet und sich automatisieren lässt.

Es wurde ein am TROPOS erarbeiteter k-Mittelwert Cluster-Algorithmus angewendet, welcher analog zu dem Verfahren entwickelt wurde, welches durch Dorling et al. [1992] zuerst in der Literatur beschrieben wurde. Die k-Mittelwert Clusteranalyse unterteilt den Datensatz in eine vorher definierte Anzahl n von Trajektorien-Clustern. Die Grundlage hierfür bildeten Rückwärtstrajektorien, welche mit dem HYSPLIT4 Modell [Draxler and Hess 2004] berechnet wurden. Außerdem wurden vertikale Profile der pseudopotentiellen Temperatur Θ_e aus 12:00 UTC Radiosondenaufstiegen berechnet und für die Analyse verwendet. Die Profile der pseudopotentiellen Temperatur wurden als Cluster-Variable berücksichtigt, weil sie die vertikale atmosphärische Schichtung beschreiben, welche für die Verteilung von Luftschadstoffen in Bodennähe von entscheidender Bedeutung ist. Die hier beschriebene Clustermethode wurde bereits mehrfach in Kombination mit Aerosoldaten z.B. von Melpitz [Engler et al. 2007b], der Zugspitze [UBA 2008], Augsburg [Birmili et al. 2010] oder Sibirien [Heintzenberg et al. 2011] angewendet, wobei bestätigt werden konnte, dass durch einbeziehen der vertikalen Temperaturprofile die Ergebnisse der Clusteranalyse aussagekräftiger werden, insbesondere bei der Verwendung von mehrjährigen Zeitreihen.

Die folgenden Euklidischen Distanzen L wurden berechnet, um die räumliche Trennung zwischen zwei Rückwärtstrajektorien i und j zu beschreiben:

$$L_{i,j} = \frac{1}{k} \sum_k \sqrt{\sum_{l=1}^4 a_l (x_{li} - x_{lj})^2}. \quad (3.2)$$

Hierbei ist k die Anzahl der Trajektorienpunkte, welche auf $k = 72$ festgelegt wurde, um stündliche Rückwärtstrajektorienpunkte über drei Tage abzubilden. Die Länge der Rückwärtstrajektorien von 72 h wurde aufgrund der Lebensdauer verschiedener sekundärer Spezies gewählt [Wojcik and Chang 1997; Textor et al. 2006].

Der Vektor, der geclustert wird, hat die Dimension l und beinhaltet die vier Variablen geographische Länge und Breite (x, y ; beide in kartesischen Koordinaten), Höhe über Grund (z) sowie die pseudopotentielle Temperatur (Θ_e). Um vier Variablen mit vergleichbarer Größenordnung zu erzeugen, sind die vier Wichtungsparemeter a_l notwendig, welche als $a_1 = a_2 = 1 \text{ } ^\circ^{-1}$, $a_3 = 10^{-5} \text{ m}^{-1}$, und $a_4 = 2 \text{ K}^{-1}$ festgelegt wurden.

Insbesondere die Wahl von a_3 und a_4 erforderte vorhergehende Testläufe, denn die Temperatur ist eine der geographischen Position völlig artfremde Variable. In der Praxis wurde also der Clusteralgorithmus für eine festgelegte Anzahl von Clustern zwischen drei und 14 angewendet. Die Streuung der mittleren PM_{10} Massenkonzentrationen (und ebenso der anderen Aerosol- und meteorologischen Parameter) zwischen den Clustern wurde für jeden Testlauf berechnet und für die Wahl der Wichtungsparemeter sowie der Anzahl der Cluster herangezogen. Eine größere vordefinierte Anzahl an Clustern teilt den Datensatz in kleinere Teil-Datensätze, welche bestimmten synoptischskaligen Wetterlagen genauer entsprechen. Eine kleinere Anzahl von Clustern hingegen erzeugt weniger aber dafür größere Teil-Datensätze. Diese größeren Teil-Datensätze würden einen größeren Teil der Gesamtbeobachtungszeit repräsentieren, wären jedoch unspezifischer hinsichtlich einzelner synoptisch-skaliger Wetterlagen. Die Entscheidung, wie viele Cluster für die endgültige Interpretation der PM_{10} Daten verwendet werden sollen, stellte also einen Kompromiss zwischen einer übersichtlichen Darstellung (geringes n) und einer deutlichen Trennung der Daten-Cluster (großes n) dar, und ergab eine Anzahl von neun (siehe Abschnitt 5) bzw. 12 (siehe Abschnitt 6) Clustern.

4 Das Modellsystem COSMO-MUSCAT

4.1. Modellbeschreibung COSMO-MUSCAT

Für diese Arbeit fand das Modellsystem COSMO-MUSCAT Anwendung, welches eine Kopplung des meteorologischen Modells COSMO (Lokalmodell des Deutschen Wetterdienstes, früher LM, Steppeler et al. [2003]; Schättler et al. [2008]) und des Chemie-Transport-Modells MUSCAT (*Multiscale Chemistry Atmospheric Transport*, z.B. Wolke et al. [2004, 2012]) ist. COSMO ist ein nicht-hydrostatisches, kompressibles, atmosphärisches Vorhersagemodell, was sowohl zur Wettervorhersage als auch für vielseitige wissenschaftliche Anwendungen konzipiert wurde. Es ist auf ein räumlich begrenztes (mesoskaliges) Gebiet anwendbar, wodurch entsprechende Randwerte notwendig sind, die durch ein auf erdumspannender Skala operierendes Globalmodell (z.B. das GME des Deutschen Wetterdienstes, Majewski et al. [2002]) bereitgestellt werden. Die dynamischen Prozesse in der Atmosphäre werden durch die dynamischen Grundgleichungen und Erhaltungsgesetze (z.B. für Impuls, Masse, skalare Größen wie Temperatur, Feuchte, sog. Tracer) beschrieben. COSMO beschreibt die meteorologischen Strömungsvorgänge in der Troposphäre (insbesondere bodennahe Eigenschaften, Konvektion, Wolken, Niederschlag sowie orographisch und thermisch angetriebene lokale Windsysteme). Vertikal wird die Atmosphäre in terrainfolgende Schichten eingeteilt (die Anzahl der Schichten ist variabel, in dieser Arbeit wurden 50 Schichten verwendet), auf denen die Eigenschaften der bodennahen Grenz- und Mischungsschicht abgebildet werden können.

Der Transport und die chemische Umwandlung von verschiedenen Gasphasen-Spezies und Aerosolpartikel-Populationen in der Atmosphäre wird durch das Chemie-Transport-Modell MUSCAT simuliert. Zu den Transportprozessen gehören Advektion, turbulente Diffusion, Sedimentation sowie trockene und nasse Deposition. Es wird ein implizit-explizites Schema (IMEX) zur Zeitintegration benutzt [Wolke and Knoth 2000],

bei dem die horizontale Advektion mit einem expliziten Verfahren und die schnelleren Prozesse innerhalb einer vertikalen Säule (Durchmischung und chemische Umwandlungen) implizit integriert werden. Durch die Kopplung zwischen meteorologischem und Chemie-Transport-Modell [Heinold et al. 2007; Renner and Wolke 2008] können die erforderlichen transportierenden Flüsse, Diffusionskoeffizienten und andere Parameter direkt vom meteorologischen Modell übernommen werden. Beide Modelle arbeiten unabhängig voneinander, deshalb sind eigenständige Zeitschritte oder verschiedene Gitterauflösungen möglich. In diesem Fall werden die benötigten meteorologischen Felder (z.B. Wind, Temperatur, Feuchte, Austauschkoefizienten) zeitlich und räumlich interpoliert.

Zur Beschreibung der luftchemischen bzw. aerosoldynamischen Prozesse ist das Modell aus mehreren Komponenten zusammengesetzt: einem Chemie-, einem Aerosol- und einem komplexen Emissionsmodul. Der Gasphasenchemie-Mechanismus RACM-MIM2 [Karl et al. 2006; Stockwell et al. 1997] betrachtet 87 reaktive Gasspezies in über 200 Reaktionen und schließt auch 25 photolytische Reaktionen in Abhängigkeit vom Sonnenstand und Bewölkungsgrad ein. Sekundäre Partikelbildung und entsprechende Wechselwirkungen mit der Gasphase werden ebenso berücksichtigt. Eine Vielzahl umweltrelevanter Kohlenwasserstoffe charakterisiert die organische Gasphase.

Als Aerosolmodul wurde bisher ein massenbasierter Mechanismus benutzt, der hauptsächlich die heterogene Kondensation von sekundärem anorganischen Material auf vorhandene Aerosolpartikel betrachtet [Hinneburg et al. 2009]. Hierin sind die Aerosolphase und die Gasphase durch verschiedene Bildungspfade unmittelbar miteinander gekoppelt. So können beispielsweise Sulfat- und Nitrat-aerosol in fester oder flüssiger Phase als Folge der Bildung von Schwefel- und Salpetersäure aus primären Schadstoffen entstehen. Beschrieben werden zwei Klassen von Partikeln: $PM_{2,5}$ (Durchmesser kleiner $2,5 \mu\text{m}$) und $PM_{[2,5;10]}$ (Durchmesser zwischen $2,5$ und $10 \mu\text{m}$). Diese zwei Klassen werden deshalb benutzt, weil Depositionsprozesse wie die Sedimentation größenabhängig sind und die Partitionierung zwischen Gas- und Partikelphase auf den vorhandenen kleinen Partikeln effektiver erfolgt als auf den größeren, da die Kondensation eine Funktion der Oberfläche ist, welche für kleine Partikel im Verhältnis zur Masse (bzw. zum Volumen) größer ist. PM_{10} (Durchmesser kleiner $10 \mu\text{m}$) kann dann als Summe von beiden Klassen berechnet werden. Die betrachteten Aerosolkomponenten sind Sulfat, Nitrat, Ammonium, elementarer und organischer Kohlenstoff, Seesalz sowie Mineralstaub.

Es wird ein Emissionskataster für Punkt- und Flächenquellen mit Jahresemissionssummen für die wichtigsten Spurengase (SO_2 , NO_x , CO , NH_3 , Methan, andere Kohlenwasserstoffe) sowie die primären Partikelemissionen $pPM_{2,5}$ und pPM_{grob} verwendet. Die jahres-, wochentags- und tageszeitlichen Schwankungen können beschrieben werden, indem die Jahressummen der Emissionen mit Hilfe der aktuellen emittentenspezifischen saisonalen und diurnalen Verteilungsfunktion zeitlich aufgespaltet werden.

Das Europäische Kataster beruht auf EMEP-Daten. Biogene Emissionen werden unter Berücksichtigung von Bewuchs und Tageszeit separat berechnet, wobei Informationen über Wolkenbedeckung, Temperatur und andere meteorologische Parameter vom COSMO übernommen werden. Die trockene Deposition wird durch Benutzung der Depositionsgeschwindigkeit v_d parametrisiert (nach Zhang et al. [2001]), die nasse Deposition nach z.B. Berge [1997] und Jakobson et al. [1997]. Details zur Parametrisierung, wie sie in MUSCAT verwendet wird, finden sich in Tsyro and Erdman [2000].

4.2. Setup

Die Simulationen wurden im Verhersagemodus berechnet, was bedeutet, dass die Rechnungen nur über die Ränder angetrieben wurden. Es ist keine Form von Daten-Assimilation angewendet worden. Die Simulation besteht aus mehreren einzeln berechneten Zyklen, welche sich teilweise überlappen und den gesamten betrachteten Zeitraum abdecken. Dies ist in Abbildung 4.1 schematisch dargestellt. Jeder dieser Zyklen startet mit einem sog. Meteorologie-Vorlauf (*spin-up*) mit dem COSMO (24 Stunden) gefolgt von einem gekoppelten Lauf (48 Stunden) von Meteorologie (COSMO) und Chemie-Transport (MUSCAT). Dieser Vorlauf ist deshalb nötig, um im Modell kleinere Wirbel aufzulösen oder Wolken zu bilden, bevor die eigentliche Vorhersage beginnt. Kopplung der beiden Modelle bedeutet, dass der Austausch benötigter Informationen in beide Richtungen erfolgt. Die Simulation wird durch Reanalyse-Daten initialisiert und angetrieben. Die Anfangswerte eines jeden COSMO-Vorlaufs werden aus dem Globalmodell (GME) des Deutschen Wetterdienstes interpoliert, die Randwerte über die gesamte Simulationsdauer stündlich (COSMO) bzw. alle 6 Stunden (GME) aktualisiert.

Nach einer Vorhersagedauer von 48 Stunden mit dem gekoppelten Modellsystem endet der erste Zyklus. Dies bedeutet also, dass mit dem meteorologischen Modell insgesamt eine Periode von 72 Stunden vorhergesagt wird. Diese Dauer sollte nach Möglichkeit nicht überschritten werden, da die Genauigkeit bei einer größeren Vorhersagedauer oft unbefriedigend wird (Genauigkeit der Wettervorhersage). Nun beginnt ein neuer Zyklus. Hierfür wird wieder der Vorlauf des COSMO gestartet und beginnt 24 Stunden vor Ende des ersten Zyklus, damit das Simulationsergebnis nicht zeitlich unterbrochen ist. Die notwendigen Rand- und Startwerte werden wiederum vom GME übernommen. Am Ende des Vorlaufs wird auch das Chemie-Transport-Modell neu gestartet. MUSCAT benutzt für jeden neuen Zyklus die letzten Konzentrationswerte des vorherigen Zyklus als Anfangswerte. Nach Berechnung der 48 Stunden Vorhersage wird auch dieser Zyklus beendet und ein neuer beginnt. Dies wird solange fortgesetzt, bis die vorher festgelegte Endzeit der Simulation erreicht ist. In dieser Arbeit wurde mit einer Vorlauf-Zeit von 24 Stunden und einer Vorhersagedauer von 48 Stunden gearbeitet, die Wahl der Zeitintervalle ist aber prinzipiell variabel.

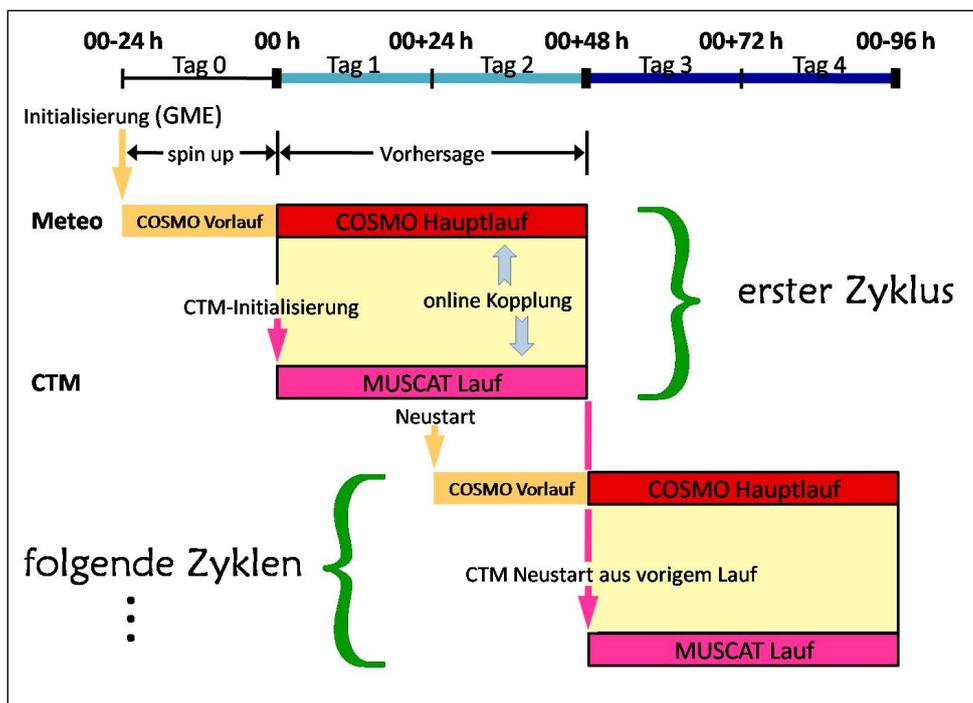


Abbildung 4.1. – Schematische Darstellung der Rechenzyklen bei COSMO-MUSCAT.

Um im interessierenden Gebiet, in dem auch Beobachtungen verfügbar sind, möglichst genaue Modellergebnisse zu erhalten, werden die Simulationen für zwei unterschiedlich große Gebiete mit feiner werdenden Gitterauflösungen berechnet (Nesting). Abbildung 4.2 (links) zeigt eine Karte mit den einzelnen Gebietsgrenzen. Im Gebiet N1, was in etwa Europa entspricht, wird eine räumliche Auflösung von $28 \text{ km} \times 28 \text{ km}$ benutzt und in N2, etwa Deutschland, eine Auflösung von $7 \text{ km} \times 7 \text{ km}$.

Als Erstes wird bei einem Modelllauf die gesamte Episode für das größte Gebiet, in diesem Fall N1, simuliert. Nach Berechnung der gesamten Vorhersagedauer werden aus den Ergebnissen die Start- und Randwerte für das nächstkleinere Gebiet, hier N2, berechnet und die Rechnung für dieses Gebiet beginnt. Die Schachtelung (Nesting) von zwei unterschiedlich großen Gebieten hat folgende Gründe: Je höher die verwendete Auflösung desto besser können die lokalen meteorologischen Bedingungen abgebildet werden, jedoch ist eine Rechnung von N1 mit der feinsten Auflösung nicht sinnvoll, da dies zum einen einen erheblichen Rechenaufwand bedeuten würde und zum anderen Start- und Randwerte sowie Emissionskataster etc. nicht entsprechend hochaufgelöst zur Verfügung stehen. Eine Verkleinerung des insgesamt simulierten Gebietes (dann mit hoher Auflösung) würde ebenfalls zu Fehlern führen, da Schadstoffe von außerhalb des betrachteten Gebietes (in diesem Fall Deutschland, N2) herantransportiert und akkumuliert werden können. Dies kann im Modell nur durch die entsprechenden Randwerte gewährleistet werden, die, wie bereits erwähnt, von der Simulation des nächstgrößeren Gebietes bereitgestellt werden.

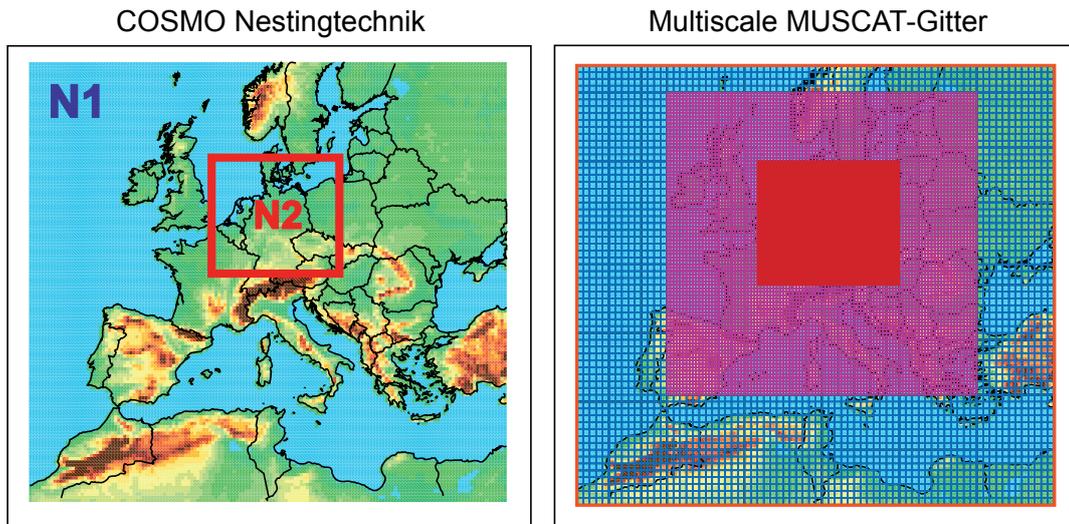


Abbildung 4.2. – Nestingtechnik bei MUSCAT: Verwendete Rechengebiete und MUSCAT-Gitter für die Modellsimulation. Am Rand und in der Mitte des betrachteten Gebietes können jeweils eine um eine Stufe verfeinerte bzw. vergrößerte Auflösung verwendet werden als im restlichen Gebiet, wo die gleiche Auflösung verwendet wird wie bei COSMO.

Während mit COSMO nur mit einer festgelegten horizontalen Gitterweite gerechnet werden kann, kommt bei MUSCAT eine sogenannte „Technik mit statischer Gitterverfeinerung“ zur Anwendung. Das bedeutet, dass ein Gebiet in einigen Teilen mit einer feineren oder gröberen Auflösung gerechnet werden kann. Abbildung 4.2 (rechts) soll dies veranschaulichen. Soll ein bestimmtes Gebiet mit MUSCAT simuliert werden, so wird am Rand eine um eine Stufe gröbere Auflösung verwendet. Um das interessierende Gebiet wird die Auflösung jedoch um eine Stufe verfeinert. Eine Stufe bedeutet in diesem Fall eine Verdopplung oder Halbierung der Gitterweite. Bei einer COSMO-Auflösung von $7\text{ km} \times 7\text{ km}$ (entspricht der Auflösung, die in COSMO für N2 verwendet wird), bedeutet dies also, dass der Rand des Gebietes mit einer Auflösung von $14\text{ km} \times 14\text{ km}$, die Mitte mit $3,5\text{ km} \times 3,5\text{ km}$ und der Bereich dazwischen mit der gleichen Auflösung wie bei COSMO, also mit $7\text{ km} \times 7\text{ km}$ gerechnet wird. Am Rand ist eine gröbere Auflösung deshalb sinnvoll, weil die Randwerte von der Simulation des nächstgrößeren Gebietes direkt übernommen werden können und damit auch keine Interpolation notwendig ist. Außerdem kann so die Rechenzeit verringert werden. Der innere Bereich eines Gebietes ist hier der relevante Bereich und wird deshalb mit verfeinerter Auflösung betrachtet, um ein genaueres Abbild der Realität zu erzeugen.

4.3. Beschreibung des Aerosolmoduls ext-M7

Für die Beschreibung des Aerosols wurde das Aerosolmodul M7 [Vignati et al. 2004] in das Modellsystem COSMO-MUSCAT implementiert [Wolke et al. 2012]. M7 ist ein allgemeines Aerosol-Mikrophysikmodul für regionale und globale Aerosolmodelle, welches die Aerosolpopulation in zwei unterschiedliche Partikeltypen unterteilt: eine intern gemischte wasserlösliche Partikel-Population und eine Population von unlöslichen Partikeln. Die gemischten Partikel enthalten eine wasserlösliche Mischung aus unlöslichem und löslichem Material. Durch die separate Betrachtung ist die Beschreibung der Entwicklung der hygroskopischen Eigenschaften von Partikeln möglich, welche wiederum einen Einfluss auf die Lebensdauer und die Wechselwirkungen mit Wolken haben. Die ursprünglich in M7 betrachteten Komponenten sind Sulfat, schwarzer Kohlenstoff (BC), primär emittierter organischer Kohlenstoff (pOC), Mineralstaub und Seesalz. Am TROPOS werden zusätzlich noch die sekundäre Bildung von Nitrat und Ammonium betrachtet [Wolke et al. 2012], weshalb das Aerosolmodul in dieser Arbeit als ext-M7 bezeichnet wird.

Es wird ein Emissionskataster für Punkt- und Flächenquellen mit Jahresemissionssummen für die wichtigsten Spurengase (SO_2 , NO_x , CO , NH_3 , Methan, andere Kohlenwasserstoffe) sowie die primären Partikelemissionen $\text{pPM}_{2,5}$ und $\text{pPM}_{\text{coarse}}$ verwendet. Das Europäische Kataster beruht auf EMEP-Daten (*European Monitoring and Evaluation Programme*).

Das Aerosolmodul M7 ist gegen ein sektionales Modell für die Bildung von Sulfat-BC-gemischten Partikeln getestet worden. Untersucht wurde die Mischung durch Kondensation und Koagulation. Das Modul wurde außerdem unter den Bedingungen der freien Troposphäre betrieben und mit Flugzeugmessungen verglichen, wobei sich eine gute Übereinstimmung ergab. Es wurde nachgewiesen, dass das Schema effizient und akkurat genug ist, um mit allgemeinen Zirkulationsmodellen oder Chemie-Transport-Modellen (GCM, *General Circulation Models*) gekoppelt zu werden [Vignati et al. 2004]. Allerdings sind Datensätze zur Evaluierung des erweiterten Moduls ext-M7 nicht verfügbar, was die Bedeutung dieser Arbeit deutlich macht, da hierfür ein Datensatz für einen Modell-Daten-Vergleich für die Region Deutschland zusammengetragen werden konnte.

M7 wurde bereits in das Chemie-Transport-Modell ECHAM5 [Roeckner et al. 2003] implementiert [Stier et al. 2005], wodurch die Aerosolgrößenverteilung, der Mischungszustand und die Zusammensetzung der Aerosolpartikel durch prognostische Variablen beschrieben werden konnten. Dies ermöglichte die Berechnung der optischen Eigenschaften des Aerosols und der Wechselwirkungen mit Wolken. Generell konnte hier eine gute Übereinstimmung mit Beobachtungsdaten des globalen Aerosolsystems (z.B. der Aerosol optischen Dicke AOD) gefunden werden. Auch Roelofs et al. [2010] verglichen die Simulation mit M7 mit Beobachtungsdaten. Die Ergebnisse dieser Studie

konnten zeigen, dass neben Sulfat und OC auch Ammonium und Nitrat wesentlich zur Wasseraufnahme in Aerosolpartikeln beitragen und dies entscheidenden Einfluss auf die Aerosol optische Dicke (AOD) hat. In Zhang et al. [2012] ist eine modifizierte Modellversion beschrieben, in der eine deutliche Verbesserung der geographischen Verteilung der AOD im Vergleich zu MODIS-Daten erreicht werden konnte. In Stier et al. [2007] wurde mit M7 die Absorption und der Strahlungsantrieb von Aerosolpartikeln untersucht und eine gute Übereinstimmung zu AERONET-Daten gefunden. Mit M7 wurde der Einfluss zukünftiger Luftverschmutzung auf den aerosolbedingten Strahlungsantrieb mittels verschiedener Emissionsszenarien [Kloster et al. 2008] sowie der indirekte aerosolbedingte Strahlungsantrieb aufgrund von Schiffsemissionen und der sich daraus ergebende Effekt auf Wolkeneigenschaften abgeschätzt [Peters et al. 2012]. Zhang et al. [2010] verwendeten M7 außerdem, um die Größenverteilungen des troposphärischen Aerosols mit drei verschiedenen globalen Aerosol-Modellen zu simulieren. Hierbei ergab sich trotz der Unterschiede in den Modellen (z.B. Meteorologie, Aerosolemissionen, Depositionsprozesse) eine sinnvolle Beschreibung der Größenverteilung hinsichtlich Form und Konzentration im Vergleich zu Beobachtungsdaten. Dies läßt auch für diese Arbeit eine erfolgreiche Anwendung des Mikrophysik-Moduls (ext-)M7 erwarten.

In ext-M7 werden die Partikel durch sieben Klassen (Moden) repräsentiert, wobei ein „pseudomodaler“ Ansatz zur Beschreibung der Partikelpopulationen und zur Berechnung der Dynamik verwendet wird. Die Partikel werden also durch log-normal-Moden beschrieben, welche durch die drei Parameter N_i , M_i und σ_i jeweils eindeutig definiert sind. Die wasserlöslichen Partikel werden durch vier Moden beschrieben. Der Nukleationsmode enthält hierbei nur Sulfatpartikel, der Aitkenmode enthält BC und OC als interne Mischung mit Sulfat, Nitrat und Ammonium. Im Akkumulations- und Grobmode sind zusätzlich auch noch Seesalz und Mineralstaub in der Mischung enthalten. Die unlöslichen Partikel werden durch drei Moden beschrieben, wobei der Aitkenmode aus einer internen Mischung aus BC und OC und der Akkumulations- und Grobmode aus Mineralstaub bestehen. Jeder Mode wird durch die Gesamtpartikelanzahl (N_i) und die Masse jeder chemischen Komponente (M_i) beschrieben, wobei der mittlere Partikelradius aus der Anzahl und Gesamtmasse (Summe der vorhandenen Einzelmassen) für jeden Mode bestimmt wird. Die Partikeleigenschaften (z.B. Gleichgewichtsradius, Koagulations- und Kondensationsraten) werden basierend auf dem mittleren Radius berechnet. Neben der Partikelanzahl und den Einzelmassen der betrachteten Komponenten wird außerdem die Standardabweichung (σ_i) zur Beschreibung der einzelnen Moden benötigt. Um die Berechnung zu vereinfachen, wird die Standardabweichung für jeden Mode festgeschrieben. Außerdem werden nur die Massen der Komponenten berücksichtigt, die laut Definition im jeweiligen Mode auch vorhanden sein können (z.B. Sulfat im Nukleationsmode, Mineralstaub im Grobmode, usw.), wodurch sich die Zahl der zu berechnenden Variablen deutlich reduziert.

Tabelle 4.1. – Übersicht über die prognostischen Modellvariablen der einzelnen Moden von ext-M7.

Aerosolmoden	GSD σ	R_{tr} .nm	prognostische Variablen
1: Nukleationsmode, löslich	1,59	0-5	N1, MSO ₄
2: Aitkenmode, löslich	1,59	5-50	N2, MSO ₄ , MNH ₄ , MNO ₃ , MBC, MOC
3: Akkumulationsmode, löslich	1,59	50-500	N3, MSO ₄ , MNH ₄ , MNO ₃ , MBC, MOC, MSS, MDU
4: Grobmode, löslich	2,0	>500	N4, MSO ₄ , MNH ₄ , MNO ₃ , MBC, MOC, MSS, MDU
5: Aitkenmode, unlöslich	1,59		N5, MBC, MOC
6: Akkumulationsmode, unlöslich	1,59		N6, MDU
7: Grobmode, unlöslich	2,0		N7, MDU

In Tabelle 4.1 sind die prognostischen Variablen der einzelnen Moden von ext-M7 zusammengefasst.

In ext-M7 werden folgende aerosoldynamischen Prozesse berücksichtigt: Nukleation, Koagulation, Phasenübergänge von Spurengasen und Wasseraufnahme. Das thermodynamische Gleichgewicht zwischen Gas- und Partikelphase wird mit dem Spurengas-Partitionierungsmodell ISORROPIA [Nenes et al. 1998] für semi-volatile anorganische Spezies beschrieben. Das Modell berechnet das Gleichgewicht des Systems Sulfat-Nitrat-Ammonium-Natrium-Chlorid-Wasser bei einer bestimmten Temperatur und relativen Feuchte. Andere relevante Prozesse (wie beispielsweise die Aktivierung zu Wolkentröpfchen, heterogene chemische Prozesse, Ausregnen von Wolkentropfen, trockene Deposition) werden in den großskaligen Modellen behandelt, mit denen ext-M7 gekoppelt wird und deshalb nicht direkt im Aerosolmodul betrachtet. Die Koagulations- und Kondensationsraten werden aus dem geometrischen mittleren Radius der Partikel und deren Anzahlkonzentration im Mode bestimmt und nicht mittels numerischer Integration über die Moden. Nur Partikel der gemischten Moden sind hygroskopisch, weshalb der feuchte Gleichgewichtsradius auch nur für die vier gemischten Moden berechnet wird. Die Partikel befinden sich im Gleichgewicht mit Wasser. Schwefelsäure kann auf alle Partikel direkt aufkondensieren oder aber Nukleationsmode-Partikel bilden. Für die anderen gemischten Moden (2-4) gibt es aber noch eine weitere (indirekte) Quelle, nämlich die Kondensation von Schwefel- oder Salpetersäure auf unlösliche Partikel, welche dann in die gemischten Moden verschoben werden. Gemischte Partikel können also auch aus unlöslichen via Koagulation oder Alterung gebildet werden. Die Anzahlkonzentration der einzelnen Moden kann sich aufgrund von Nukleation und Koagulation verändern.

Auch die Massenkonzentration wird durch Nukleation und Koagulation beeinflusst. Nukleation fügt dem Nukleationsmode Masse hinzu. Durch intramodale Koagulation (also Koagulation mit Partikeln des selben Modes) verringert sich die Anzahl, die Masse bleibt jedoch erhalten. Bei intermodaler Koagulation wird die Masse aus dem kleineren in den größeren Mode verschoben, die Anzahl verringert sich im kleineren Mode. Durch Koagulation und Kondensation vergrößert sich der mittlere Radius der Partikel, das heißt die kleineren Moden können in die Größenbereiche der größeren

hineinwachsen. Dieser Anzahl- und Massentransfer wird auf die gemischten Modes angewendet. Koagulation und Kondensation beeinflussen aber auch die unlöslichen Modes. Wenn ein unlösliches Partikel eine bestimmte Menge löslichen Materials aufgenommen hat, wird es in den entsprechenden gemischten Mode verschoben und als gealtert bezeichnet. Diese Alterung von unlöslichen Partikeln kann aufgrund von Kondensation (Schwefelsäure) erfolgen. Beim verwendeten Koagulationsschema werden Partikel nach Koagulation mit löslichem Material (Sulfat, Nitrat etc.) gleich in die löslichen Moden eingetragen.

5 Die städtische PM₁₀ Belastung am Beispiel der Stadt Leipzig

Dieses Kapitel befasst sich mit der Analyse von meteorologischen Situationen, welche zu Überschreitungen des Tagesmittel-Grenzwertes von PM₁₀ (50 µg/m³) in Leipzig führen können. Konkretes Ziel war es, die kleinräumig betrachtete PM₁₀ Belastung hinsichtlich der lokalen Verkehrseffekte und meteorologischen Einflüsse zu charakterisieren. Um dies möglichst objektiv beurteilen zu können, wurde hierfür eine Trajektorien-Clusteranalyse angewendet. Ein Cluster ist sinngemäß ein Bündel ankommender Trajektorien, die sich stark bezüglich Windrichtung und Windgeschwindigkeit ähneln. Ziel der durchgeführten Clusteranalyse ist die Zuordnung der PM₁₀ Messdaten auf die verschiedenen entstehenden Trajektoriencluster, welche in der meteorologischen Praxis auch verschiedenen Wetterlagen entsprechen. Die entstehenden Cluster sollen in sich möglichst homogen sein, sich untereinander jedoch möglichst scharf abgrenzen bezüglich

- der Richtung der ankommenden Trajektorien (d.h. Luftmassen)
Die Richtung der Trajektorien liefert vor allem in grenznahen Gebieten Hinweise auf grenzüberschreitenden Transport von Schadstoffen.
- der vertikalen Schichtung der Atmosphäre (also labil/stabil)
Diese Stabilität ist unter anderem entscheidend für die Stärke der räumlichen Dispersion der am Boden emittierten Schadstoffe.
- der durch die Einteilung entstehenden Mittelwerte der PM₁₀ Massenkonzentration

In der Summe ermöglichen Rückwärtstrajektorien und Radiosondenprofile eine objektive Bewertung der Herkunft und des Zustandes der an einem Messort ankommenden Luftmasse und der damit verbundenen Schadstoffniveaus. Als ein wichtiges Maß für die Beurteilung der PM₁₀ Belastung stellte sich das Verkehrsinkrement heraus. Dies

Tabelle 5.1. – Mittlere PM₁₀ und PM_{2,5} Massenkonzentration (μ), in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zwischen 2005-2009. Die Tabelle beinhaltet außerdem die Standardabweichungen des Mittelwertes (σ_μ).

Station	PM ₁₀		PM _{2,5}	
	μ	σ_μ	μ	σ_μ
Leipzig-Mitte (verkehrsnahe)	32,6	0,4	18,2	0,5
Leipzig-West (urbaner Hintergrund)	22,0	0,3		
Melpitz (ländlicher Hintergrund)	21,7	0,3	17,4	0,3

wurde in Anlehnung an Lenschow et al. [2001] als der Anteil definiert, der direkt durch den Straßenverkehr zur lokalen PM₁₀ Massenkonzentration beiträgt. Die Ergebnisse dieses Kapitels sind bereits in einem wissenschaftlichen Artikel veröffentlicht [Engler et al. 2012] und werden hier präsentiert, da sie einen wesentlichen Teil der Arbeit ausmachen.

5.1. Phänomenologie von PM₁₀ in Leipzig

5.1.1. Grundlegendes Verhalten von PM₁₀ in Leipzig

In Abbildung 5.1 sind Zeitreihen der PM₁₀ Massenkonzentrationen an den drei Beobachtungsstationen (verkehrsnahe, urbaner Hintergrund, ländlicher Hintergrund) über die gesamte Beobachtungsdauer von 2005 bis 2009 dargestellt. Die Stationen waren durch langfristige Mittelwerte zwischen 21 und 33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ gekennzeichnet. Ein Überblick über die PM₁₀ und PM_{2,5} Mittelwerte ist auch aus Tabelle 5.1 ersichtlich. Diese PM₁₀ Massenkonzentrationen stehen im Einklang mit anderen mitteleuropäischen Flachlandstationen, deren Mittelwerte sich zwischen 20 und 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ [Putaud et al. 2010] bewegen. Erwähnenswert ist außerdem, dass es in jedem Jahr mindestens eine längere Episode mit PM₁₀ > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an allen drei Stationen gab (Fig. 5.1). Dies entspricht Verschmutzungsepisoden, welche ausgedehnte Gebiete beeinflussen.

Wie zu erwarten, war die Massenkonzentration an der verkehrsnahen Station im Normalfall höher oder wenigstens gleich hoch wie an der urbanen oder der ländlichen Hintergrundstation (Abb. 5.1). Der Unterschied der Mittelwerte zwischen der urbanen und der ländlichen Hintergrundstation war jedoch unter Berücksichtigung der Messunsicherheit vernachlässigbar klein.

Diese Ähnlichkeit der beiden Hintergrundstationen deutet darauf hin, dass diffuse urbane Quellen nur eine untergeordnete Rolle in Leipzig spielen, zumindest im größeren Umfeld der urbanen Hintergrundstation Leipzig-West. Lokale Verkehrsquellen scheinen für den Großteil der räumlichen Variabilität der PM₁₀ Massenkonzentration verantwortlich zu sein, was auch durch Simulationen des PM-Transports im Auftrag von kommunalen Behörden gestützt wird [Stadt Leipzig 2009]. Folglich spielt es für die

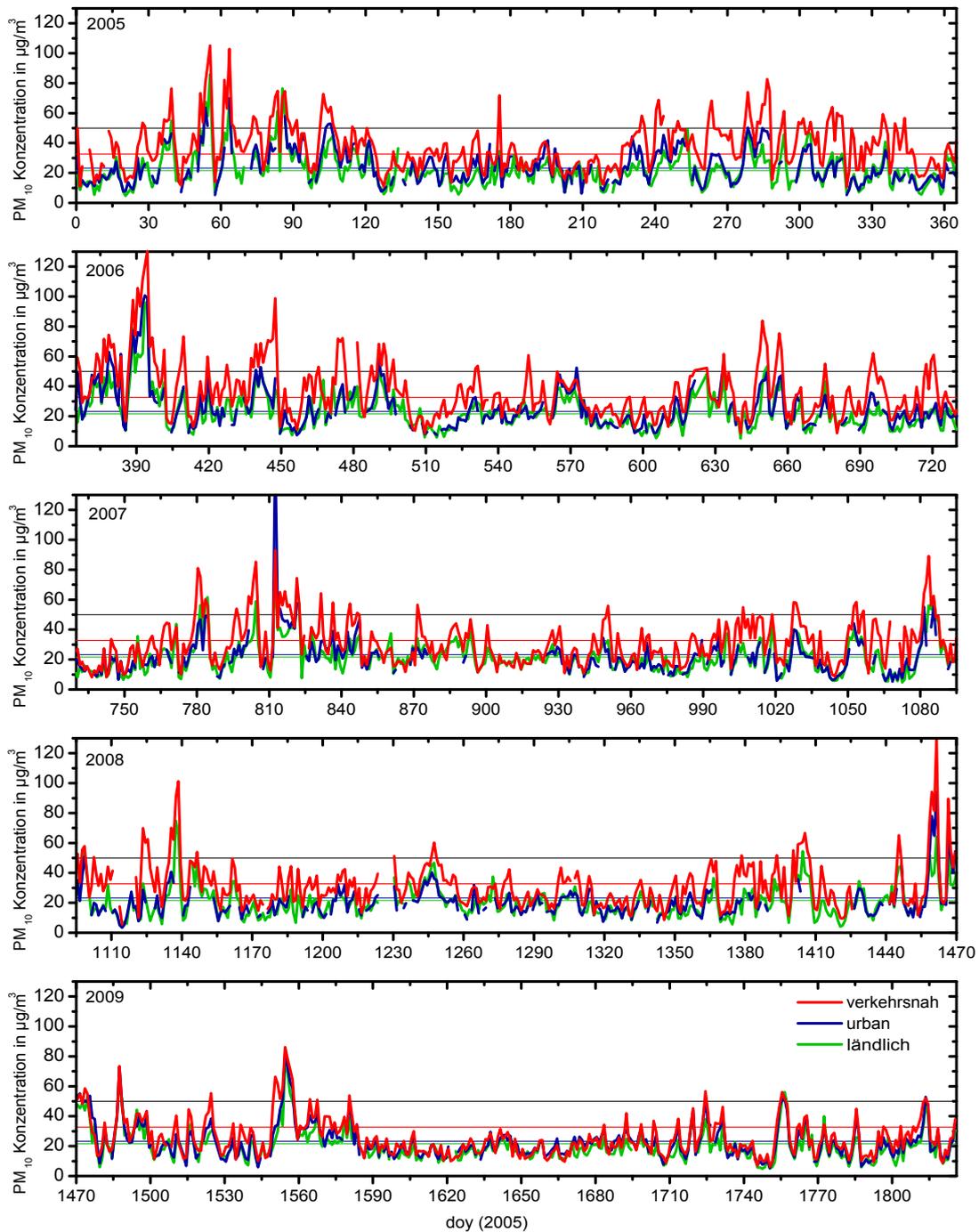


Abbildung 5.1. – Tagesmittelwerte der PM₁₀ Massenkonzentration an den drei Messstationen (verkehrsnahe, urbaner Hintergrund, ländlicher Hintergrund) zwischen 2005-2009. Farbige Linien zeigen die Mittelwerte über die gesamte Messdauer für jede Station; die schwarze Linie zeigt den Grenzwert von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

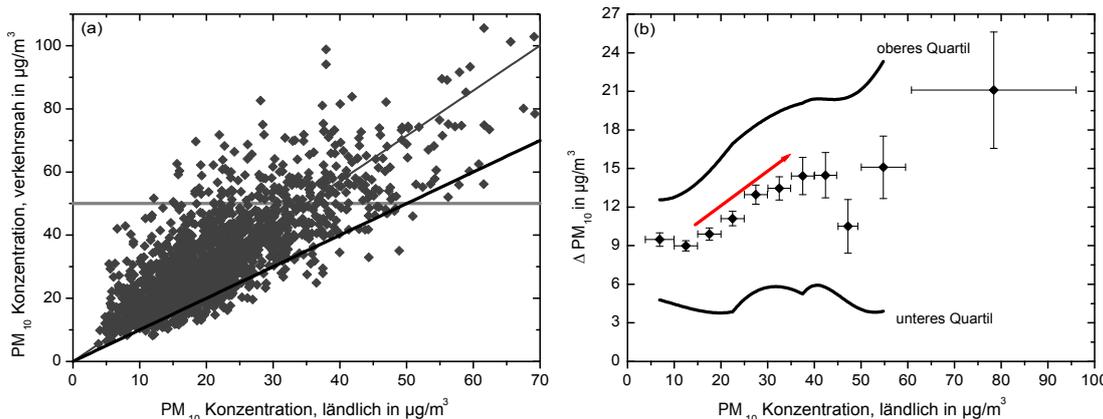


Abbildung 5.2. – Vergleich zwischen ländlichen und verkehrsnahen PM₁₀ Massenkonzentrationen und das Verkehrsinkrement ΔPM_{10} zwischen 2005-2009. In (a) ist der Grenzwert des Tagesmittels von 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als horizontale Linie sowie die 1:1 Linie enthalten. Ein linearer Fit durch den Nullpunkt ergibt eine Steigung von 1,43 ($R^2 = 0.62$). In (b) wurden die Datenpunkte über Kanäle der ländlichen PM₁₀ Massenkonzentration gemittelt (dargestellt durch x-Achsen-Fehlerbalken). Y-Achsen-Fehlerbalken zeigen den Stichprobenfehler. Der Bereich eines multiplikativen Effektes auf das Verkehrsinkrement ΔPM_{10} ist durch einen roten Pfeil gekennzeichnet.

se Arbeit kaum eine Rolle, ob das Verkehrsinkrement ΔPM_{10} unter Berücksichtigung der urbanen oder der ländlichen Hintergrundkonzentration berechnet wird.

In Abbildung 5.2 a) werden die ländlichen und verkehrsnahen PM₁₀ Massenkonzentrationen für die Zeit von 2005 bis 2009 verglichen, wobei sich eine generelle positive Korrelation mit einem Anstieg von 1,43 ergibt. Wie durch die eins-zu-eins-Linie erkennbar übertreffen die verkehrsnahen Werte die ländlichen Konzentration in einer deutlichen Mehrheit der Tage, was eine sinnvolle Berechnung des Verkehrsinkrements ermöglicht. An einzelnen Tagen kann dieses Verkehrsinkrement durchaus Werte von bis zu 60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ erreichen.

Abbildung 5.2 b) zeigt den Zusammenhang zwischen der PM₁₀ Massenkonzentration im ländlichen Hintergrund und dem Verkehrsinkrement ΔPM_{10} . Zu diesem Zweck wurden die ΔPM_{10} Daten über Kanäle des ländlichen PM₁₀ Hintergrunds gemittelt, was durch die x-Achsen-Fehlerbalken dargestellt ist. Abbildung 5.2 b) zeigt die arithmetischen Mittelwerte von ΔPM_{10} mit dem Stichprobenfehler als Fehlerbalken. Das entscheidende Ergebnis ist, dass sich ΔPM_{10} aus einem additiven Effekt von ca. 9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und einem multiplikativen Effekt (gekennzeichnet durch den roten Pfeil) zusammensetzt. Der multiplikative Effekt setzt voraus, dass ΔPM_{10} von der bereits im ländlichen Hintergrund vorhandenen PM₁₀ Massenkonzentration abhängig ist. Konkrete Zahlen deuten an, dass für den Bereich von 10 bis 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM₁₀ im ländlichen Bereich ΔPM_{10} im Bereich von 9,5 bis 14,5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ liegt. Dies bedeutet einen Anstieg von ca. 2,5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pro 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Anstieg der ländlichen PM₁₀ Massenkonzentration.

5.1.2. Überschreitungen des Tagesmittel-Grenzwertes

Von 1826 möglichen Tagen sind an 1788 Tagen die Tagesmittelwerte der PM₁₀ Massenkonzentration an der verkehrsnahen Station verfügbar, was eine Datenverfügbarkeit von 98 % bedeutet. Diese Daten wurden mit der Referenzmethode (Filtersammlung) gemessen.

An 232 dieser 1788 Tage wurde der Grenzwert des Tagesmittels von 50 µg/m³ überschritten. Diese 13 % aller Tage werden im Folgenden „Überschreitungstage“ genannt. In Tabelle 5.2 ist die Anzahl der Überschreitungen des Tagesmittel-Grenzwertes pro Station und Jahr aufgelistet. In Verkehrsnähe wurde die EU-Direktive (maximal 35 Überschreitungen pro Jahr) in den Jahren 2005, 2006 und 2007 verletzt. Die Hintergrundstationen zeigten durchgehend weniger als 35 Überschreitungstage pro Jahr, weshalb sich im Folgenden auf die Analyse der verkehrsnahen Station konzentriert werden soll. Da die urbanen und ländlichen PM₁₀ Hintergrundkonzentrationen sehr ähnlich waren, wurde nur die ländliche Station als Maß für den Hintergrund benutzt.

Tabelle 5.2. – Anzahl der Überschreitungen des Tagesmittel-Grenzwertes von PM₁₀ pro Jahr. Die Anzahl der gültigen Messtage ist in Klammern hinzugefügt.

Jahr	Leipzig-Mitte		Leipzig-West		Melpitz	
	verkehrsnah		urbaner Hintergrund		ländlicher Hintergrund	
2005	70	(354)	9	(358)	8	(356)
2006	71	(348)	17	(350)	11	(350)
2007	38	(356)	6	(359)	10	(359)
2008	28	(337)	5	(337)	6	(353)
2009	25	(363)	18	(362)	11	(355)

In Abbildung 5.3 wird die Verteilung der PM₁₀ Massenkonzentrationswerte von Überschreitungstagen und nicht-Überschreitungstagen gegenübergestellt. Abbildung 5.3 a) zeigt die eigentlich triviale Aufspaltung der verkehrsnahen Konzentrationen in Überschreitung- und nicht-Überschreitungstage. Die Mehrzahl der Überschreitungstage ($n = 207$) weist Konzentrationen zwischen 50 und 80 µg/m³ auf, während höhere Werte von bis zu 130 µg/m³ nur selten gefunden wurden ($n = 25$). Dies verdeutlicht, dass das Problem der Grenzwertüberschreitungen in erster Linie durch ein mäßiges Überschreiten von bis zu 30 µg/m³ bei der PM₁₀ Massenkonzentration in Verkehrsnähe verursacht wird.

Die ländlichen Hintergrundkonzentrationen in Abbildung 5.3 b) zeigen eine deutlichere Aufspaltung mit zwei teilweise überlappenden Populationen: An nicht-Überschreitungstagen lag die PM₁₀ Massenkonzentration im Mittel bei 19 µg/m³. An Überschreitungstagen betrug die PM₁₀ Massenkonzentration im Mittel 40 µg/m³, was bereits 80 % des Grenzwertes entspricht. An 46 Tagen wurde der Grenzwert bereits an der ländlichen Hintergrundstation überschritten. Aus Abbildung 5.3 b) geht offenkundig

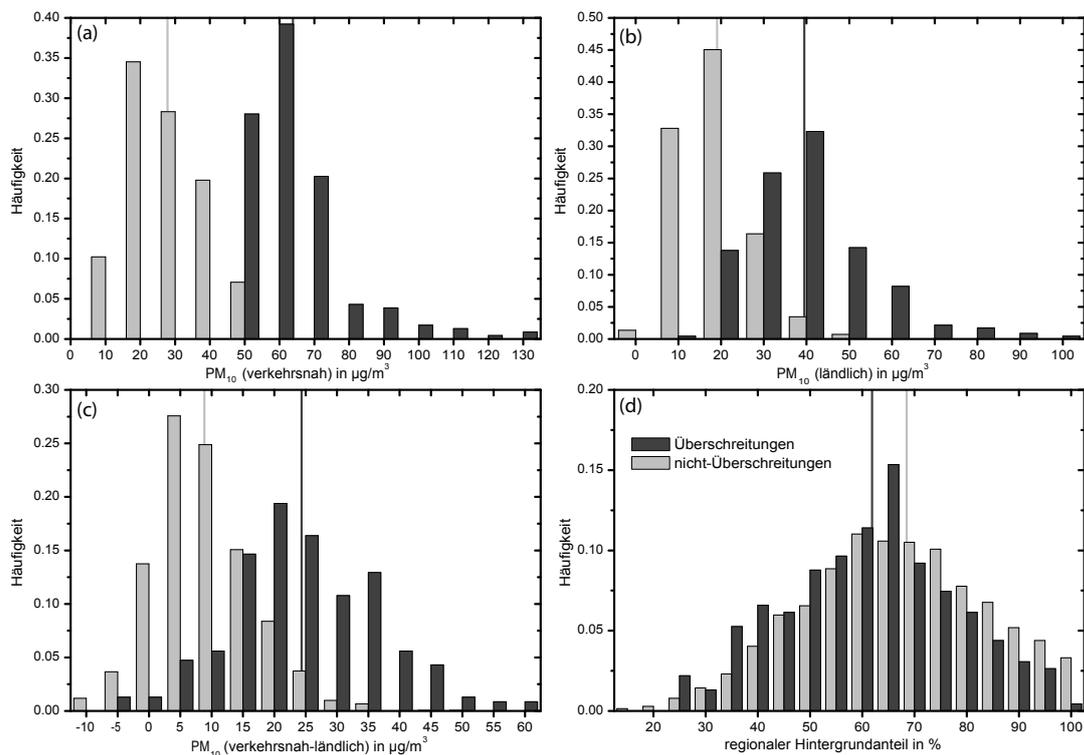


Abbildung 5.3. – Relative Häufigkeit **(a)** der PM₁₀ Massenkonzentration in Verkehrsnähe, **(b)** der PM₁₀ Massenkonzentration im ländlichen Hintergrund, **(c)** des Verkehrsincrements (ΔPM_{10}) und **(d)** des regionalen PM₁₀ Hintergrund-Anteils in Verkehrsnähe ($PM_{10,1}/PM_{10,V}$). Die Populationen wurden für Überschreitungstage und nicht-Überschreitungstage separat normiert. Vertikale Linien zeigen die Medianwerte jeder Population an.

(wenn auch nicht überraschend) hervor, dass hohe PM₁₀ Massenkonzentrationen in der Atmosphäre des ländlichen Hintergrunds die Wahrscheinlichkeit einer Grenzwertüberschreitung in Verkehrsnähe deutlich erhöhen.

Der Beitrag des Verkehrs zur verkehrsnahen PM₁₀ Massenkonzentration kann durch Subtraktion der entsprechenden ländlichen Hintergrundkonzentration, das heißt durch Berechnung von ΔPM_{10} , abgeschätzt werden [Lenschow et al. 2001]. Aus Abbildung 5.3 c) geht hervor, dass dieses Verkehrsincrement stark variabel sein kann: Zwischen Null und 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an nicht-Überschreitungstagen und zwischen 5 und 65 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an Überschreitungstagen. Verglichen mit nicht-Überschreitungstagen ist das Verkehrsincrement an Überschreitungstagen deutlich erhöht (Mittelwerte von 8 bzw. 24 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). Dies zeigt sich auch für die ländliche Hintergrundkonzentration (Mittelwerte von 19 bzw. 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$).

Der relative Beitrag des regionalen Hintergrunds zur verkehrsnahen PM₁₀ Massenkonzentration ($PM_{10,1}/PM_{10,V}$) ist in Abbildung 5.3 d) dargestellt. Auffällig ist, dass sich die Histogramme für Überschreitungstage und nicht-Überschreitungstage

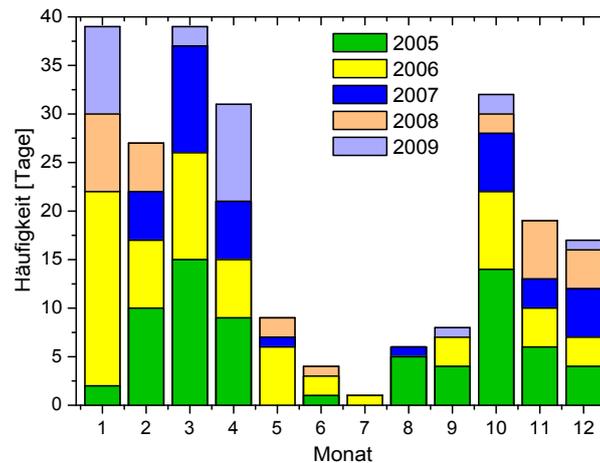


Abbildung 5.4. – Überschreitungen des PM₁₀ Tagesmittel-Grenzwertes an der verkehrsnahen Station Leipzig-Mitte eingeteilt nach Monaten des Jahres zwischen 2005-2009.

kaum unterscheiden. An Überschreitungstagen kamen 62 % der verkehrsnahen PM₁₀ Massenkonzentration aus der Atmosphäre des regionalen Hintergrunds, verglichen mit 69 % an nicht-Überschreitungstagen. Wesentlich ist also, dass das Verhältnis der Beiträge regionaler Quellen und des lokalen Verkehrs nur in geringem Maße schwankt, unabhängig davon, ob eine Grenzwertüberschreitung auftrat oder nicht.

5.1.3. Saisonale Effekte

Für ein besseres Verständnis der PM₁₀ Grenzwertüberschreitungen wurden Korrelationen einer Vielzahl von Faktoren einschließlich Jahreszeit und lokaler meteorologischer Parameter untersucht. Das Auftreten von Überschreitungstagen in Abhängigkeit des Monats im Jahr ist in Abbildung 5.4 gezeigt. Offensichtlich konzentrieren sich die Überschreitungstage in der kalten Jahreszeit (Oktober bis April), wobei nur wenige Überschreitungen in den Sommermonaten Mai bis September auftraten. Für dieses Ungleichgewicht gibt es zwei generelle Erklärungen: Erstens gibt es im Winter verstärkt PM Emissionen durch Heizung und Stromerzeugung. Es konnte bereits nachgewiesen werden, dass diese Emissionen zu erhöhten PM₁₀ Massenkonzentrationen in einzelnen Ballungsräumen sowie auch im ländlichen Hintergrund führen [Herrmann et al. 2006]. Zweitens treten Temperaturinversionen, welche zur Akkumulation von Verschmutzungen in Bodennähe führen, vermehrt in der kalten Jahreszeit auf [z.B. Schäfer et al. 2006; Birmili et al. 2010].

Um den Einfluss von verschiedenen Quelltypen besser unterscheiden zu können, wurden in Abbildung 5.5 PM₁₀ sowie die grobe Teilfraktion PM_[2,5;10] hinsichtlich der Jahreszeiten unterschieden. Zu beachten ist, dass die grobe Teilfraktion als $PM_{[2,5;10]} = PM_{10} - PM_{2,5}$ berechnet wurde.

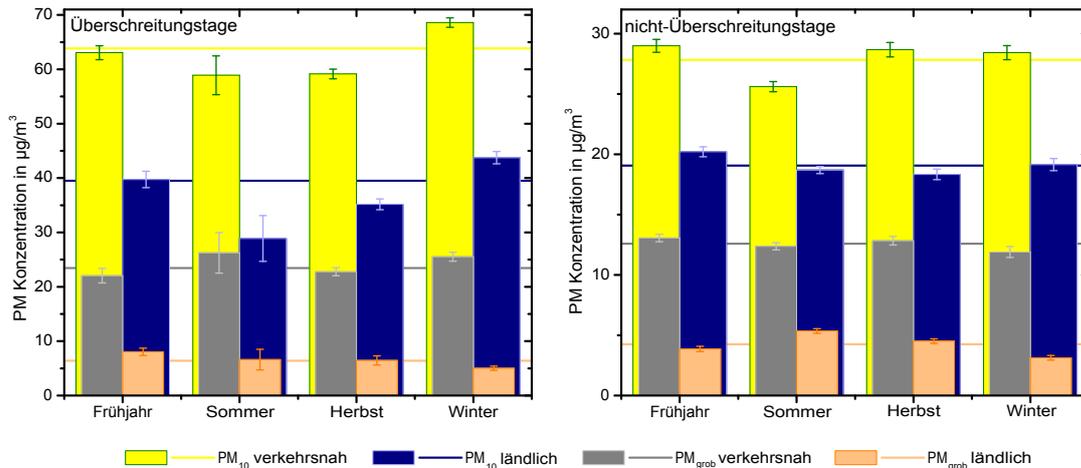


Abbildung 5.5. – Saisonale Abhängigkeit der PM₁₀ und PM_[2,5;10] Massenkonzentration in Verkehrsnähe und im ländlichen Hintergrund. Die Grafik unterscheidet zwischen Überschreitungstagen (links) und nicht-Überschreitungstagen (rechts). Horizontale Linien zeigen die Jahresmittelwerte. Die Jahreszeiten wurden als Frühjahr (März-Mai), Sommer (Juni-August), Herbst (September-November) und Winter (Dezember-Februar) definiert.

Die wichtigsten Erkenntnisse aus Abbildung 5.5 können folgendermaßen zusammengefasst werden:

- An Überschreitungstagen zeigt die PM₁₀ Massenkonzentration sowohl in Verkehrsnähe als auch im ländlichen Hintergrund eine saisonale Abhängigkeit mit den höchsten Werten im Winter und Frühjahr. Diese Saisonalität wird im ländlichen Hintergrund deutlicher als in Verkehrsnähe. An nicht-Überschreitungstagen ist dieses Verhalten deutlich weniger ausgeprägt.
- PM_[2,5;10] macht einen wesentlichen Anteil von PM₁₀ aus. In Verkehrsnähe variiert der relative Anteil zwischen 42 % im Winter und 49 % im Sommer. Die PM_[2,5;10] Massenkonzentration zeigt ein anderes saisonales Verhalten als die PM₁₀ Massenkonzentration, mit einem Maximum im Sommer. Dies kann durch eine verstärkte Aufwirbelung während der trockenen Sommermonate erklärt werden.
- Überschreitungstage zeigen im Vergleich zu nicht-Überschreitungstagen durchgängig ein höheres Verhältnis von verkehrsnah zu ländlich (PM_V/PM_l), sowohl für PM₁₀ als auch für PM_[2,5;10]. Dies verdeutlicht einmal mehr die Bedeutung von lokalen Verkehrsquellen für die Entstehung von Überschreitungen. Die höchsten Verhältnisse von verkehrsnah zu ländlich konnten an Überschreitungstagen im Sommer gefunden werden. Dies bedeutet, dass im Sommer, wenn die PM₁₀ Massenkonzentration generell geringer ist, überproportional hohe Beiträge von lokalen Verkehrsquellen zur PM₁₀ Massenkonzentration notwendig sind, um den Grenzwert von 50 µg/m³ zu überschreiten.

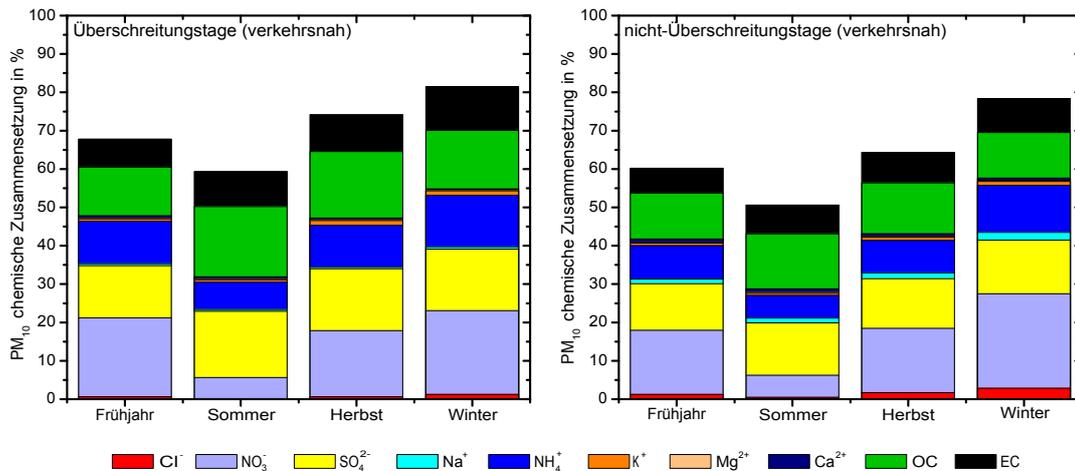


Abbildung 5.6. – Chemische Massenfraktionen des ländlichen PM₁₀ Hintergrunds für jede Jahreszeit und **(a)** Überschreitungstage in Verkehrsnahe und **(b)** nicht-Überschreitungstage in Verkehrsnahe. Die Diskrepanz zwischen den Gesamtmengen und 100 % ist Material, welches durch die Analytik nicht bestimmbar ist; es wird größtenteils als unlösliches Krustenmaterial interpretiert.

5.1.4. Chemische Zusammensetzung der ländlichen PM₁₀ Hintergrundkonzentration

Um die Partikelquellen untersuchen zu können, die möglicherweise für hohe PM Konzentrationen verantwortlich sind, wurden Daten zur chemischen Zusammensetzung des Gesamt PM₁₀ verwendet. Langzeitdaten der chemischen Zusammensetzung waren allerdings nur für die ländliche Station Melpitz verfügbar. Abbildung 5.6 zeigt, dass PM₁₀ aus Ammoniumnitrat, Sulfat sowie elementarem und organischem Kohlenstoff und einem erheblichen Teil nicht-definierten Materials, welches allgemein als Krustenmaterial interpretiert wird, besteht. Dies stimmt grob mit den meisten bereits untersuchten Orten in West-, Mittel- und Nordeuropa überein [Putaud et al. 2010].

Die Sommerdaten zeigen zwei Auffälligkeiten: Erstens ist Nitrat in PM₁₀ größtenteils nicht vorhanden, was sehr wahrscheinlich dadurch hervorgerufen wird, dass Nitrat bei hoher Temperatur hauptsächlich in der Gasphase anzutreffen ist [Flechar and Fowler 1998]. Aerosol-Massen-Spektrometer (AMS) Messungen in Melpitz [Poulain et al. 2011] belegen, dass das Verteilungsgleichgewicht zur Gasphase bei Nitrat ein hauptsächlich temperaturabhängiger Effekt ist, welcher nicht nur als Jahresgang sondern auch als Tagesgang auftritt.

Zweitens ist der Anteil von nicht-bestimmbarem Material im Sommer am höchsten (40 % an Überschreitungstagen und 50 % an nicht-Überschreitungstagen, Abb. 5.6). Dieses Material wird mit unlöslichem Krustenmaterial in Verbindung gebracht, welches normalerweise in der trockenen Sommerzeit die höchsten Emissionsraten aufweist. In der Literatur wird davon ausgegangen, dass der nicht-bestimmbare Anteil größtenteils

aus Silikaten und nichtlöslichen Karbonaten besteht [z.B. Espinosa et al. 2002]. Diese Annahme wird durch die leicht erhöhten Grobstaubkonzentrationen im Sommer (s. Abb. 5.5) gestützt. Sie steht außerdem im Einklang mit einer mehrjährigen Studie in Augsburg [Birmili et al. 2010], in der ein Maximum von Grobstaub im Sommer gefunden wurde, was offensichtlich durch Grobstaub-Aufwirbelung entstanden war.

Das entscheidende Ergebnis ist, dass Überschreitungstage mit einer Überhöhung von EC, OC und Ammoniumsulfat, aber einem geringeren Anteil von nicht-bestimmbarem Material, Ammoniumnitrat und Natriumchlorid in Verbindung stehen. Da EC, OC und Ammoniumsulfat typische Indikatoren für anthropogene Emissionen über dem Kontinent sind, kann geschlussfolgert werden, dass diffuse anthropogene Emissionen eine wichtige Rolle bei der Erhöhung der PM Konzentrationen im ländlichen Hintergrund spielen und schlussendlich zu PM₁₀ Überschreitungen in Verkehrsnähe führen. Die höchsten EC und OC Konzentrationen konnten während Überschreitungstagen im Winter gefunden werden.

5.1.5. Meteorologische Einflüsse

Tabelle 5.3 stellt Überschreitungstage und nicht-Überschreitungstage anhand von lokalen meteorologischen Parametern und Spurengaskonzentrationen gegenüber. Fettgedruckte Werte stehen für signifikante Unterschiede der zwei Teil-Datensätze auf Basis eines Mann-Whitney-U Tests [Wilcoxon 1945; Mann and Whitney 1947] mit Signifikanzniveau $\alpha = 0,95$. Die Ergebnisse für verschiedene PM Parameter sind der Vollständigkeit halber hinzugefügt, obwohl die Tatsache, dass PM Parameter während der Überschreitungstage erhöht sind natürlich nicht überraschend, wenn nicht gar trivial ist.

Zwei Haupterkenntnisse gehen aus Tabelle 5.3 hervor, welche das Auftreten von Überschreitungstagen in der kalten bzw. warmen Jahreszeit erklären:

In der kalten Jahreszeit, hauptsächlich an den Winterdaten zu erkennen, sind Überschreitungstage gekennzeichnet durch eine Kombination von a) geringer Temperatur, b) hohem Luftdruck, c) geringer Windgeschwindigkeit, d) geringer Niederschlagsmenge, e) erhöhter Konzentration von SO₂, NO und NO₂, und f) geringer Konzentration von O₃. An Überschreitungstagen wurden geringe Taupunkttemperatur und absolute Feuchte gefunden, aber eine signifikante Korrelation mit der relativen Feuchte konnte nicht identifiziert werden.

Diese Umstände beschreiben synoptische Großwetterlagen über Mitteleuropa, welche hauptsächlich durch hohen Luftdruck und sich langsam bewegende Luftmassen gekennzeichnet sind. Diese Wetterlagen wurden im Hinblick auf das atmosphärische Aerosol in [Birmili et al. 2001] beschrieben.

Ein überraschendes Ergebnis ist, dass der relative Anteil des Verkehrsinkrements während dieser winterlichen Überschreitungen nicht erhöht war. Das PM₁₀ Verkehrsinkrement betrug meist etwa 1/3 der verkehrsnahen Konzentration und dieser Anteil

war während Herbst, Winter und Frühjahr praktisch nicht variabel (Tab. 5.3). Daraus folgt eine Kopplung zwischen der mittleren regionalen Hintergrundkonzentration und dem Verkehrsinkrement, obwohl das Verkehrsinkrement selbst stark variieren kann (s. Abb. 5.2 b). Mit anderen Worten bedeutet diese Korrelation, dass das Verkehrsinkrement in ähnlichem Maße erhöht ist, wenn bereits die regionale Hintergrundkonzentration hoch ist. Diese Erkenntnis zeigt, dass die Effekte von lokalen und entfernten Quellen auf die absolute verkehrsnaher Massenkonzentration von PM₁₀ nicht wirklich voneinander getrennt werden können. Beide Anteile können deshalb als gleichwertig verantwortlich für eine Überschreitung des Grenzwertes der Tagesmittelkonzentration angesehen werden. Die Reduzierung von einem der beiden würde demnach helfen, die Anzahl der PM₁₀ Überschreitungen zu verringern.

Ein deutlich anderer Mechanismus gilt für die relativ wenigen Überschreitungstage im Sommer ($n = 11$): Hier hat das Verkehrsinkrement einen ungewöhnlich hohen Wert von 51 % verglichen mit 26 % an nicht-Überschreitungstagen (Tab. 5.3). Dies zeigt sehr deutlich, dass Überschreitungstage im Sommer nur auftreten können, wenn ein ungewöhnlich hoher Beitrag von lokalen Verkehrsquellen existiert. Der regionale Hintergrundanteil ist hier meist geringer, was vermutlich durch die erhöhte Konvektion begründet ist. Es gibt keinerlei Hinweise darauf, dass der Grobpartikelmode zu diesen Sommerüberschreitungen mehr als seinem üblichen Anteil beiträgt. Diese Sommerüberschreitungen scheinen eher zufällige Ereignisse zu sein, die allerdings eine höhere Temperatur und geringere Windgeschwindigkeit als ansonsten im Sommer üblich aufweisen.

Tabelle 5.3. – Charakterisierung der Überschreitungstage (Zahlen links, auch durch n angedeutet) verglichen mit nicht-Überschreitungstagen (Zahlen rechts). Fettdruck symbolisiert einen signifikanten Unterschied im Mann-Whitney-U Test bei einem Signifikanzniveau von $\alpha = 0,95$. Der Test wurde für den Gesamtdatensatz und jede der vier Jahreszeiten separat durchgeführt. Rote Zahlen stehen für signifikant höhere Werte, blaue für signifikant geringere Werte. Die Temperatur-Abweichung wurde berechnet als die Differenz der Tagesmitteltemperatur und der klimatologischen Mitteltemperatur für den jeweiligen Tag des Jahres.

Parameter	Einheit	alle ($n = 232$)	Frühjahr ($n = 79$)	Sommer ($n = 11$)	Herbst ($n = 59$)	Winter ($n = 83$)
Temperatur	°C	5,9 / 11,1	8,7 / 10,3	20,9 / 18,7	10,2 / 10,6	-1,9 / 2,9
Temperatur-Abweichung	°C	-0,5 / 0,6	0,9 / 0,3	3,6 / 0,3	1,1 / 0,7	-3,5 / 1,2
Taupunkt	°C	3,1 / 7,7	4,4 / 6,2	16,8 / 13,6	8,1 / 8,1	-3,8 / 1,0
relative Feuchte	%	82,3 / 79,4	74,4 / 75,5	77,4 / 72,2	86,9 / 84,4	87,2 / 87,3
absolute Feuchte	g/kg	5,9 / 8	6,4 / 7,2	14,1 / 11,6	8,3 / 8,2	3,7 / 5,2
Luftdruck	hPa	1011 / 1006	1008 / 1003	1010 / 1007	1011 / 1008	1015 / 1006
Windgeschwindigkeit	m/s	1,5 / 2,5	1,5 / 2,4	1,1 / 1,9	1,5 / 2,6	1,5 / 3,3
Niederschlag	mm/day	0,2 / 1,3	0,2 / 1,3	1,8 / 1,8	0,1 / 1,2	0,1 / 0,9
SO ₂	µg/m ³	5,0 / 2,7	4,5 / 2,7	2,5 / 2,3	3,4 / 2,6	6,8 / 3,3
O ₃	µg/m ³	48 / 61	72 / 70	87 / 79	34 / 46	31 / 45
NO ₂	µg/m ³	15,6 / 9,1	12,2 / 8	7,9 / 6,5	13,9 / 10,2	21,1 / 12,4
NO	µg/m ³	2,7 / 1,4	1,8 / 1,3	1,1 / 1,2	2,9 / 1,4	3,5 / 1,6
PM ₁₀						
verkehrsnahe	µg/m ³	64* / 28	63* / 29	59* / 26	59* / 29	69* / 28
urbaner Hintergrund	µg/m ³	42 / 19	42 / 20	29 / 19	37 / 19	46 / 19
ländlicher Hintergrund	µg/m ³	40 / 19	40 / 20	29 / 19	35 / 18	44 / 19
Verkehrsincrement	µg/m ³	24 / 9	23 / 9	30 / 7	24 / 10	25 / 9
Verkehrsanteil	%	35 / 31	33 / 32	51 / 26	37 / 35	33 / 32
urbaner Anteil	%	3 / 0	4 / 0	0 / 1	3 / 1	3 / 0
regionaler Anteil	%	62 / 69	63 / 70	49 / 73	59 / 64	64 / 67
PM _{2,5}						
verkehrsnahe	µg/m ³	38 / 15	40 / 16	31 / 13	36 / 16	37 / 18
ländlicher Hintergrund	µg/m ³	33 / 15	31 / 17	22 / 13	29 / 14	39 / 16
PM _[2,5;10]						
verkehrsnahe	µg/m ³	23 / 13	22 / 13	26 / 12	23 / 13	26 / 12
ländlicher Hintergrund	µg/m ³	6,4 / 4,2	8,0 / 3,9	6,6 / 5,4	6,5 / 4,5	5,0 / 3,1
Verkehrsanteil	%	38 / 46	35 / 45	46 / 49	39 / 47	41 / 42
regionaler Anteil	%	17 / 22	21 / 18	21 / 28	19 / 24	11 / 17

*trivial, weil Überschreitungstage durch PM₁₀ > 50 µg/m³ definiert sind.

5.2. Rückwärtstrajektorien-Clusteranalyse

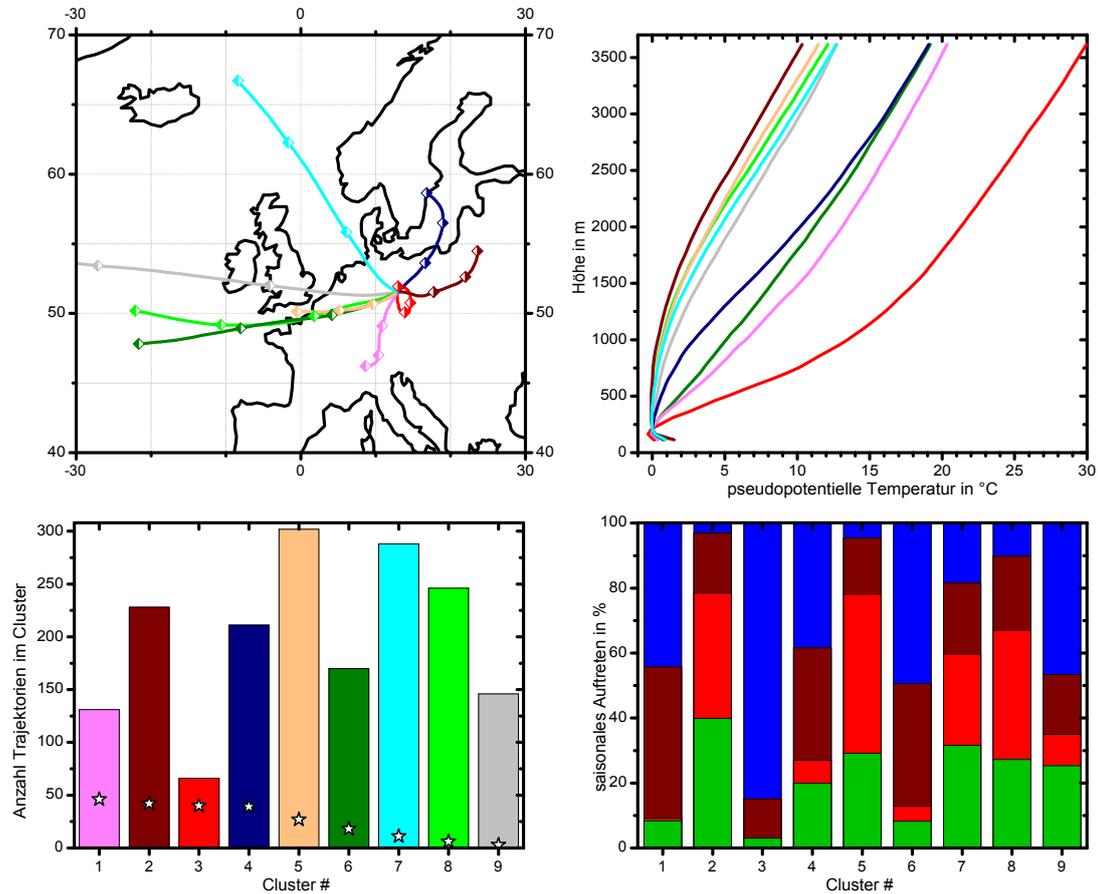


Abbildung 5.7. – Ergebnisse der Rückwärtstrajektorien-Clusteranalyse, 2005-2009: **(a)** mittlere Rückwärtstrajektorien, **(b)** mittlere Pseudopotentielle Temperatur-Profile, **(c)** Anzahl der Tage in jedem Cluster (Säulen) einschließlich der Anzahl der Überschreitungstage (Sterne), **(d)** saisonales Vorkommen jedes Clusters (grün: Frühjahr, rot: Sommer, braun: Herbst, blau: Winter).

Die Rückwärtstrajektorien-Clusteranalyse wurde durchgeführt, um den möglichen Einfluss von synoptisch-skaligen meteorologischen Verhältnissen an der Ausbildung von PM_{10} Überschreitungstagen zu bestimmen. In Abbildung 5.7 sind die Ergebnisse der Clusteranalyse mit $k = 9$ Clustern dargestellt. Im Einzelnen werden die geographische Herkunft der Luftmassen, die vorherrschende vertikale Schichtung der Atmosphäre, die absolute Anzahl von PM_{10} Überschreitungen sowie die saisonale Verteilung der Messtage auf die einzelnen Cluster gezeigt. In Abbildung 5.7 wurden die Cluster entsprechend ihrer absoluten Anzahl an PM_{10} Überschreitungen absteigend angeordnet.

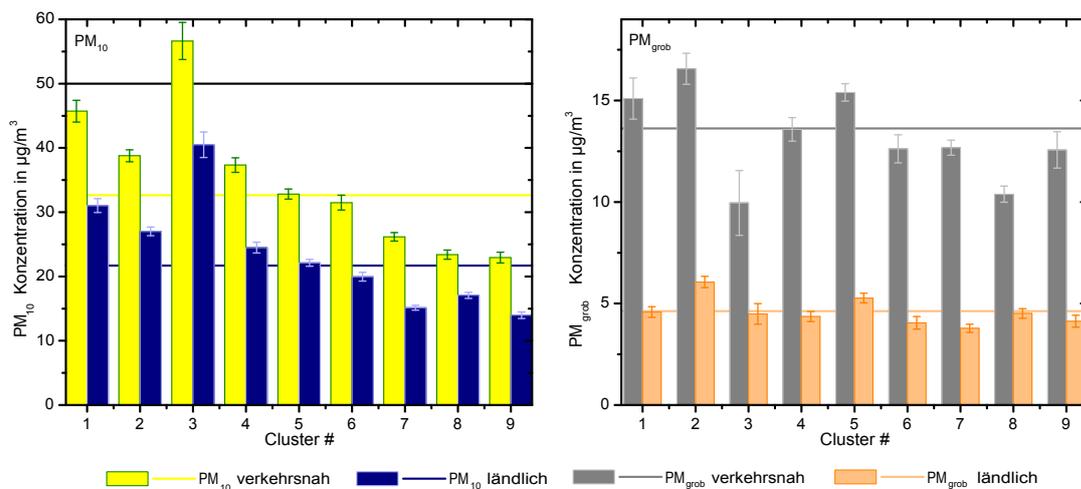


Abbildung 5.8. – PM_{10} und $PM_{[2,5;10]}$ Konzentration in Verkehrsnahe und im ländlichen Hintergrund sowie Standardabweichungen für jedes Cluster. Horizontale Linien zeigen die Mittelwerte für einen bestimmten Parameter.

5.2.1. Charakterisierung der Cluster

Die Clusteranalyse unterscheidet zwischen zwei grundsätzlichen meteorologischen Aspekten: a) Luftmassenherkunft und Vorticity der Strömung und b) vertikale Schichtung am Mittag, welche klimatologisch mit der Jahreszeit zusammenhängt. Die Cluster 1 bis 4 haben das gemeinsame Hauptmerkmal, dass ihre Rückwärtstrajektorien aus kontinentalen Gebieten stammen und eine antizyklonale Krümmung aufweisen (Abb. 5.7 a). Genauer gesagt repräsentiert Cluster 1 langsam fortschreitende Luftmassen aus Südeuropa, Cluster 2 Luftmassen aus Osteuropa. Cluster 3 steht für stagnierende Luftmassen und Cluster 4 für Luftmassen aus Skandinavien. Alle anderen Cluster (5 bis 9) haben ihren Ursprung über dem Nordatlantik und verweilen wesentlich kürzere Zeit über dem Kontinent.

Die neun Cluster können ebenso aufgeschlüsselt werden in fünf Cluster, welche größtenteils aus Winter- und Herbsttagen bestehen (1, 3, 4, 6 und 9) und vier hauptsächlich Frühjahr- und Sommer-Cluster (2, 5, 7 und 8, Abb. 5.7 d). Diese Jahreszeitenabhängigkeit spiegelt sich auch in den vertikalen Profilen der pseudopotentiellen Temperatur wider, welche zur Mittagszeit typischerweise Temperaturinversionen in der kalten Jahreszeit und neutrale Schichtung (bzw. gute Durchmischung) in der warmen Jahreszeit zeigen (Abb. 5.7 d).

5.2.2. PM_{10} Niveaus

Die neun Cluster wurden anhand ihrer absoluten Anzahl an PM_{10} Überschreitungstagen in Leipzig-Mitte sortiert. Insgesamt traten 72 % aller PM_{10} Überschreitungen allein in den ersten vier Clustern (1 bis 4) auf. Die augenscheinliche Gemeinsamkeit dieser

Cluster ist, dass die drei-Tages Rückwärtstrajektorien über kontinentalen Gebieten entspringen und antizyklonale Tendenzen aufweisen (Abb. 5.7).

Cluster 3 fällt besonders ins Auge, weil es die höchsten PM_{10} Massenkonzentrationen sowohl im Hintergrund als auch verkehrsnah zeigt (Abb. 5.8). In diesem Cluster erreicht PM_{10} eine mittlere ländliche Hintergrundkonzentration von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Offensichtlich ergibt sich daraus die Konsequenz, dass es auch die höchste Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Grenzwertüberschreitungen an der Verkehrsstation aufweist (61 %, siehe auch Tab. 5.4). Cluster 3 lässt sich meteorologisch durch stagnierende Luft, den höchsten Anteil an Wintertagen (85 %, Abb. 5.7 d) und die am deutlichsten ausgeprägten Temperaturinversionen (Abb. 5.7 b) charakterisieren. Diese Umstände beschreiben den mitteleuropäischen Luftmassentyp „cP“ oder „cA“ [Birmili et al. 2001]. Trotz der extrem hohen PM_{10} Massenkonzentrationen repräsentiert Cluster 3 eine Wetterlage, die nur sehr selten vorkommt (4 % der Zeit), weshalb es erst an dritter Stelle in der Liste der absoluten Anzahl an Überschreitungstagen erscheint.

Für die Cluster 1 bis 6 kann jeweils ein (oder mehrere) meteorologischer Faktor für die auftretenden PM Überschreitungen verantwortlich gemacht werden: Aufenthaltsdauer von mehr als drei Tagen über dem Kontinent (1 bis 5) und/oder stabile vertikale Schichtung (1, 3, 4 und 6). Die Wahrscheinlichkeit einer PM Überschreitung fällt nur für die letzten drei Cluster (7 bis 9) unter 4 %, welche sowohl den Atlantik als Herkunftsregion (Abb. 5.7 a), eine Windgeschwindigkeit von mehr als $2,5 \text{ m/s}$ sowie eine neutral-stabile Schichtung (Abb. 5.7 b) aufweisen. Diese Cluster machen zusammen 38 % der Beobachtungsdauer aus, beinhalten jedoch nur 8 % der PM_{10} Überschreitungen (Tab. 5.4).

5.2.3. Beziehung zu Meteorologie und Spurengasen

In Tabelle 5.4 werden die Eigenschaften der neun Cluster einschließlich der Mittelwerte von meteorologischen Parametern, Spurengaskonzentrationen und PM Parametern zusammengefasst. Wie bereits im vorangehenden Abschnitt (5.1.5) wurden auch hier Mann-Whitney-U Tests durchgeführt, um zu untersuchen, ob ein Cluster hinsichtlich der meteorologischen, Spurengas- oder PM-Daten signifikant vom Gesamtmittel abweicht. Fettdruck in Tabelle 5.4 symbolisiert statistisch relevante Unterschiede, wobei die Tendenz wiederum farblich gekennzeichnet ist.

Die Temperatur scheint ein wichtiger Faktor für Cluster 3 zu sein, für das eine mittlere Temperatur von $-2,1 \text{ }^\circ\text{C}$ und eine Temperaturabweichung von $-4,3 \text{ }^\circ\text{C}$ bestimmt wurden. Über dem Kontinent führt die Bildung einer Temperaturinversion (wie aus Abb. 5.7 b) ersichtlich) zum Auftreten einer so geringen Temperatur. Bei starker Kälte können verstärkte Emissionen durch Stromerzeugung und häusliche Heizung erwartet werden. Daher tragen diese Faktoren höchstwahrscheinlich zu den extrem hohen PM_{10} Konzentrationen von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei.

Tabelle 5.4. – Häufigkeit, mittlere meteorologische Parameter und Spurengaskonzentrationen für jedes Cluster. Fettdruck symbolisiert Cluster mit einem signifikanten Unterschied zur Gesamtpopulation im Mann-Whitney-U Test bei einem Signifikanzniveau von $\alpha = 0,95$. Rote Zahlen stehen für signifikant höhere Werte, blaue für signifikant geringere Werte. Die Temperatur-Abweichung wurde berechnet als die Differenz der Tagesmitteltemperatur und der klimatologischen Mitteltemperatur für den jeweiligen Tag des Jahres. Der Jahreszeiten-Index ist eine Zahl zwischen -1 (entspricht Winteranfang, 21.12.) und $+1$ (Sommeranfang, 21.6.) und vermittelt einen Eindruck über die saisonale Verteilung eines Clusters.

Parameter / Cluster	Einheit	Mittelwert	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Luftmasse			S	O	st.	NO	WSW	WSW	NW	WSW	W
Jahreszeiten-Index			-0,46	0,43	-0,69	-0,12	0,44	-0,46	0,13	0,29	-0,23
Häufigkeit	%		7	13	4	12	17	9	16	14	8
Überschreitungstage		232	46	42	40	39	27	18	11	6	3
Überschreitungswahrscheinlichkeit	%	13	35	18	61	18	9	11	4	2	2
Temperatur	°C	10,4	5,8	16,1	-2,1	5,1	15,9	7,3	8,3	14,2	8,8
Temperatur-Abweichung	°C	0,5	0,6	1,9	-4,3	-1,8	1,5	2,3	-2,2	1,5	2,9
Taupunkt	°C	7,1	4,2	10,7	-4	3,0	11,8	5,1	5,0	10,2	5,5
relative Feuchte	%	80	90	70	87	86	76	86	79	77	80
absolute Feuchte	g/kg	7,7	6,4	9,6	3,6	5,9	10,4	6,8	6,7	9,4	6,9
Luftdruck	hPa	1007	1005	1010	1015	1012	1004	1006	1007	1005	1002
Windgeschwindigkeit	m/s	2,4	2,0	1,7	1,8	2,1	1,7	2,8	2,5	2,9	4,3
Niederschlag	mm/day	1,2	1,0	0,8	0,1	0,6	1,6	1,5	0,9	1,9	1,5
SO ₂	µg/m ³	3	3,6	3,2	8,0	3,5	2,6	3,0	2,1	2,4	2,1
O ₃	µg m ⁻³	59	31	80	31	46	73	41	59	67	60
NO ₂	µg/m ³	10,0	15,6	7,8	18,9	11,2	9,2	13,7	7,8	7,9	8,4
NO	µg/m ³	1,6	2,6	1,4	3,2	1,6	1,6	1,9	1,1	1,1	1,0
PM ₁₀											
verkehrsnahe	µg/m ³	32,6	45,7	38,8	56,7	37,3	32,8	31,5	26,2	23,4	22,9
urbaner Hintergrund	µg/m ³	22,0	31,1	30,2	46,2	25,8	23,6	20,5	16,2	17,4	14,9
ländlicher Hintergrund	µg/m ³	21,7	31	27	40,5	24,5	22,1	20,0	15,1	17,1	14,0
Verkehrsinkrement	µg/m ³	11,2	14,6	11,9	16,2	13,3	11,1	11,6	11,1	6,7	9,2
Verkehrsanteil	%	29	32	22	18	31	28	35	38	26	35
urbaner Anteil	%	4,9	0,2	8,3	10	3,4	4,5	1,7	4	1,5	4
regionaler Anteil	%	66	68	70	72	66	67	63	58	73	61
PM _{2,5}											
verkehrsnahe	µg/m ³	18,2	28,1	21,6	33,1	23,7	20,3	16,7	11,0	12,6	10,6
ländlicher Hintergrund	µg/m ³	17,4	26,6	21,0	36,0	20,2	16,8	16,0	11,5	12,8	9,9
PM _[2,5;10]											
verkehrsnahe	µg/m ³	13,6	15,1	16,6	10,0	13,6	15,4	12,6	12,7	10,4	12,6
ländlicher Hintergrund	µg/m ³	4,6	4,6	6,1	4,5	4,4	5,3	4,1	3,8	4,5	4,1
Verkehrsanteil	%	42	33	43	18	36	47	40	49	45	55
regionaler Anteil	%	21	15	22	12	18	23	19	23	26	27

Drei der ersten Cluster (1, 3, 4) sind außerdem durch eine geringere absolute Feuchte als im Mittel gekennzeichnet (Tab. 5.4). Dies ist wahrscheinlich durch die kontinentale Geschichte der Luftmassen begründet und führt generell zu geringen Niederschlagsmengen, was auch in der Tabelle bestätigt wird.

Die ersten fünf Cluster (1 bis 5) zeigen eine Windgeschwindigkeit unter oder um den Mittelwert (Tab. 5.4). Dies bestätigt, dass die schlechten Ausbreitungsbedingungen, welche mit dieser schwachen Windgeschwindigkeit einher gehen, ebenfalls Faktoren sind, die zur Ausbildung von PM Überschreitungen führen können. Der Luftdruck ist insofern ein Indikator, als dass Cluster 3 und 4 mit Hochdruckgebieten über oder knapp nördlich von Mitteleuropa verbunden sind (Tab. 5.4).

Cluster 2 ist insofern eine Ausnahme, als dass es eine deutliche Anzahl an Überschreitungen beinhaltet, jedoch warme Tage mit guter vertikaler Durchmischung repräsentiert (Abb. 5.7 b). Seine Trajektorien weisen auf Quellregionen in Osteuropa hin (Abb. 5.7 a) und außerdem konnte eine gewisse Überhöhung von Grobstaub sowohl in Verkehrsnähe als auch im ländlichen Hintergrund festgestellt werden (Abb. 5.8 b). Es kann davon ausgegangen werden, dass die eher warmen und sonnigen Bedingungen (wie durch die Ozonkonzentration von $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu erahnen) zu verstärkter Aufwirbelung von grobem PM auf den ausgetrockneten Oberflächen führten. Wie aus den Daten des Grobstaub in Abbildung 5.8 b) deutlich wird, tritt diese verstärkte Aufwirbelung sowohl regional als auch lokal auf.

Außerdem wurde festgestellt, dass die Cluster der kalten Jahreszeit 1, 3 und 4 eine signifikante Korrelation mit gasförmigen Schadstoffen wie SO_2 und NO_2 aufweisen (Tab. 5.4). Besonders SO_2 kann als Indikator für regionale Luftverschmutzung und Transport von entfernten Quellregionen angesehen werden. Wenig überraschend ist, dass auch hier die höchsten Konzentrationen im oben beschriebenen Wintercluster 3 gefunden werden konnten.

5.2.4. Chemische Zusammensetzung von PM_{10} im ländlichen Hintergrund

Die chemische Zusammensetzung von PM_{10} an der ländlichen Hintergrundstation Melpitz ist stark von der Luftmassenherkunft abhängig (Abb. 5.9). Nitrat kam in den Clustern 2, 5 und 8, welche mit warmen Episoden zusammenhängen, nur in geringem Maße vor. Analog Abschnitt 5.1.4 kann dies mit dem thermodynamischen Gleichgewicht von Nitrat zwischen Partikel- und Gasphase erklärt werden. Nitrat machte einen großen Anteil der Partikel in Cluster 6 aus (fast 25 % der Masse), also Luftmassen, welche sich aus westlichen Richtungen langsam zur betrachteten Region bewegten. Sulfat wurde in allen Clustern gefunden, der größte Anteil jedoch in Cluster 3, welches als stagnierende Inversionswetterlage im Winter identifiziert wurde.

Die Cluster, welche zu den meisten PM Überschreitungen geführt haben, sind durch hohe Massen von kohlenstoffhaltigen Spezies - OC und EC - gekennzeichnet. EC macht

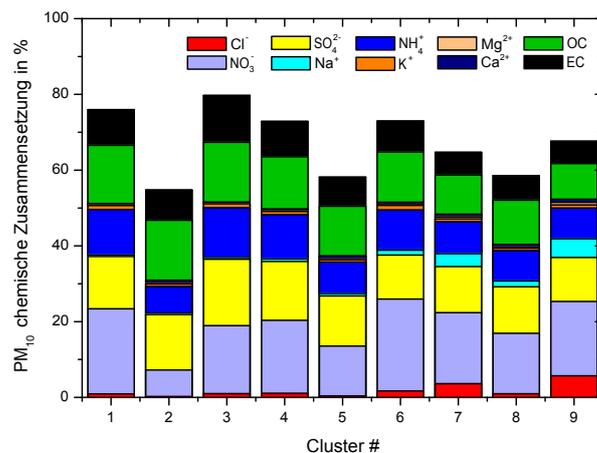


Abbildung 5.9. – Chemische Massenfraktionen des ländlichen PM₁₀ Hintergrunds für jedes Cluster. Die Diskrepanz zwischen den Gesamtmengen und 100 % ist Material, welches durch die Analytik nicht bestimmbar ist; es wird größtenteils als unlösliches Krustenmaterial interpretiert.

ungefähr 10 % der Masse in Cluster 3 aus. Da EC und OC hauptsächlich über Land emittiert werden, werden diese hohen Werte als weiterer Hinweis für die bedeutende Rolle von Emissionen über dem Kontinent für die Bildung von erhöhten PM₁₀ Hintergrundkonzentrationen angesehen. Chlorid war nur in Spuren vorhanden, zeigt aber eine deutliche Abhängigkeit zu hoher Windgeschwindigkeit und maritimen Quellregionen (Cluster 7 und 9; Abb. 5.9). Die relativen Anteile von Chlorid in PM₁₀ waren umgekehrt proportional zur Anzahl der Überschreitungen, folglich spielt Seesalz (maritime Luftmassen) keine Rolle für die Bildung von Überschreitungen in Leipzig.

Die größte Variabilität zeigte sich jedoch in dem Anteil an PM, welcher durch die chemische Analytik nicht identifizierbar ist. Diese undefinierten Massenanteile machten in einigen Clustern nahezu 50 % aus. Interessanterweise war dieser Anteil in der warmen Jahreszeit (Cluster 2, 5 und 8) am höchsten. Hier schließt sich der Kreis, da unlösliches Krustenmaterial, welches als Hauptbestandteil der undefinierten Masse angesehen wird, in der warmen und trockenen Jahreszeit reichlich vorhanden ist. In Cluster 2 machte die undefinierte Masse 17,5 µg/m³ aus. Gleichzeitig betrug die Massenkonzentration des Grobstaubs (im Größenbereich 2,5-10 µm) 16,6 µg/m³. Die Ähnlichkeit dieser Werte deutet auf eine Schlüsselrolle der diffusen Quelle Aufwirbelung für die Gesamtmasse von PM₁₀ in Cluster 2 hin. Ein Verkehrsanteil im Grobstaubbereich von 10,5 µg/m³ macht die Bedeutung der Aufwirbelung aufgrund lokalen Verkehrs für die PM₁₀ Überschreitungen in Leipzig deutlich.

5.3. Diskussion der Ergebnisse für die Stadt Leipzig

5.3.1. Lokale und regionale Beiträge

Wenn man die PM Niveaus in Verkehrsnähe und im ländlichen Hintergrund vergleicht, kann man auch für die neun Cluster einen positiven Trend erkennen (Abb. 5.8). Die relativen Beiträge der lokalen verkehrsbedingten Quellen waren für geringe Hintergrundkonzentrationen am höchsten, dennoch lagen die regionalen Beiträge zwischen 58 und 73 % der lokalen PM_{10} Massenkonzentration. Dies steht in guter Übereinstimmung mit den Werten von Lenschow et al. [2001] für die Stadt Berlin, wo 50 % des urbanen PM_{10} aus dem regionalen Hintergrund stammten. Der Verkehr wurde hier als wichtigste Gruppe von Quellen herausgestellt, welche hohe PM_{10} Massenkonzentrationen in Verkehrsnähe erzeugen, wobei bis zu 15 % der PM_{10} Massenkonzentration durch aufgewirbelten Straßenstaub entstehen. Diese Beiträge zeigen, dass die horizontale Herkunft einer Luftmasse allein nicht ausreicht, um Überschreitungstage an einer Verkehrsstation zu erklären, jedoch auf jeden Fall eine bedeutende Rolle spielt. Dennoch waren die Quellbeiträge aus regionalen, urbanen und verkehrsbedingten Quellen für alle Cluster erstaunlich ähnlich, unabhängig von der Wetterlage. Dies ist der Grund für die Annahme, dass sowohl regional als auch lokal in Bodennähe emittierte Partikel im Falle von meteorologisch günstigen Bedingungen in der Grenzschicht angereichert werden können, die Quellen nichtsdestotrotz ähnlich sind. Dies würde unterschiedliche absolute Massen aber die gleichen relativen Anteile zur Folge haben. Um dies detailliert beurteilen zu können, muss die chemische Zusammensetzung betrachtet werden, was in Abbildung 5.9 für die regionale Hintergrundstation Melpitz dargestellt wurde.

5.3.2. Parallelen in Europa

Frühere Studien haben ergeben, dass die Aufenthaltsdauer einer Luftmasse über dem Kontinent zur Akkumulation von troposphärischem Aerosol führt. Ein Grund dafür ist die Gegenwart von natürlichen sowie anthropogenen Quellen über Land. Ein weiterer ist der Verlust von Feuchtigkeit über Land, was in Luftmassen, die sich eine längere Zeit über dem Kontinent bewegt haben, zu einem geringeren Grad von nasser Deposition führt. Auch beispielsweise Inversionswetterlagen und eine geringe Mischungsschichthöhe wurden in anderen europäischen [Kukkonen et al. 2005] oder deutschen Städten [Schäfer et al. 2006] mit hohen Konzentrationen von Gasen oder Partikeln in Verbindung gebracht. Nitrat wurde als maßgebliche chemische Komponente in PM_{10} während Grenzwertüberschreitungen identifiziert [Yin and Harrison 2008]. In jener Studie wurden Beiträge von bis zu 40 % in Verkehrsnähe gefunden. In dieser Arbeit wurden im Vergleich gemäßigte Beiträge von ungefähr 20 % für Überschreitungstage gefunden, diese sekundäre Quelle trug aber dennoch auch einen Hauptanteil zur PM_{10} Massenkonzentration bei.

Messungen im Großbritannien zeigten, dass die Advektion von Luftmassen aus dem kontinentalen Europa und die regionale Bildung von Sekundäraerosol für eine Vielzahl von Überschreitungstagen verantwortlich waren [Charron et al. 2007]. Diese Autoren fanden auch einen erhöhten regionalen Hintergrundanteil an Überschreitungstagen. Außerdem konnten Viana et al. [2007] in Westeuropa deutliche Episoden von Luftverschmutzung hinsichtlich PM₁₀ aufgrund von Luftmassen europäischen Ursprungs identifizieren. Die Autoren schlussfolgerten daraus, dass die Entstehung der Überschreitungen anthropogen verursacht waren, jedoch nicht zwangsläufig nur von lokaler Verschmutzung sondern auch von Ferntransport. Tatsächlich treten Luftmassen aus Osteuropa häufig zeitgleich mit antizyklonalen Wetterlagen auf, was zu stagnierenden Luftmassen führt.

In Spanien konnte von Escudero et al. [2007] eine vergleichbare Anzahl an Überschreitungstagen gefunden werden, die Ursachen lagen jedoch selten in kontinentalen Luftmassen. In Südeuropa spielt offensichtlich Staub, welcher durch Aufwirbelung über trockenen Gebieten entsteht oder auch vom Ferntransport von Saharastaub stammt, eine entscheidende Rolle in der Bildung von PM Überschreitungen. Nichtsdestotrotz scheinen antizyklonale Wetterlagen im Winter selbst über der Iberischen Halbinsel eine Akkumulation von regionalen Schadstoffen hervorzurufen.

5.3.3. Ausblick

Für Deutschland werden weiterhin sinkende nationale Emissionen für PM₁₀ erwartet (aktualisierte Information von UBA [2009]). Dieser anhaltende Trend von sinkenden Emissionen konnte bisher jedoch nicht in den Netzwerken zur Überwachung der Luftqualität beobachtet werden. Daher bleibt auch die Frage weiterhin offen, ob die den für die Luftqualität zuständigen Behörden bekannten Emissionen auch den realen Werten entsprechen.

Im Jahr 2011 wurde in der Stadt Leipzig eine sog. Umweltzone eingeführt. Dies kann als lokale staatliche Maßnahme zur Reduktion der PM₁₀ Massenkonzentrationen in der Stadt angesehen werden. Die Umweltzone regelt, dass nur noch Fahrzeuge, welche verbesserte Emissionsstandards erfüllen (Euro 4 oder besser), in die Stadt einfahren dürfen. Es wird erwartet, dass diese Maßnahme die lokalen Beiträge zur PM₁₀ Massenkonzentration einschließlich der toxikologisch relevanten Substanzen, welche im Dieselruß enthalten sind, reduzieren wird.

Da allerdings die Mehrheit der verkehrsbedingten PM₁₀ Emissionen auf Abrieb und Aufwirbelung zurückzuführen sind [Harrison et al. 2008], ist unklar, ob die PM₁₀ Reduktion deutlich genug ausfallen wird, um zukünftige Verletzungen des gesetzlichen Grenzwertes zu vermeiden. Dijkema et al. [2008] konnten eine effektivere Reduktion von PM₁₀ in Verkehrsnähe aufgrund von Geschwindigkeitsbegrenzungen (und daraufhin weniger aufgewirbeltem Straßenstaub) im Vergleich zur Auswirkung von emissionsarmen Fahrzeugen beobachten. Die nicht-Auspuff-bedingten Verkehrsemissionen,

welche mit ansteigendem Verkehrsaufkommen unabhängig von Auspuffemissions-Regelungen ebenfalls ansteigen, sind hingegen für die Umwelt von großer Bedeutung, weil sie Spurenmetalle enthalten können, welche auch negative Gesundheitsauswirkungen haben können [Weckwerth 2001; Sternbeck et al. 2002]. Die nicht-Auspuffbedingten Emissionen sind über das Jahr gesehen mehr oder weniger konstant aber abhängig vom Verkehrsaufkommen, dem Straßentyp, dem Straßenbelag und den meteorologischen Bedingungen. Sie werden durch Niederschlag von mindestens 2 mm/h reduziert, wahrscheinlich weil dadurch eine längere Episode mit nasser Straßenoberfläche entsteht und dies zu geringerer Aufwirbelung führt [Keuken et al. 2010].

6 Die regionale PM₁₀ Belastung in Deutschland: räumliche Herkunft und meteorologische Einflussfaktoren

Im Auftrag des Umweltbundesamtes (UBA) wurde am TROPOS eine Querschnittsstudie zum Thema „Charakterisierung und Quantifizierung der räumlichen Herkunft der PM₁₀ Belastung an hoch belasteten Orten“ durchgeführt [UBA 2012], deren Ergebnisse ebenfalls einen wesentlichen Teil dieser Arbeit ausmachen und aus diesem Grunde hier präsentiert werden. Diese Studie untersuchte die Ursachen von PM₁₀ Grenzwertüberschreitungen anhand der Tagesmittelwerte der PM₁₀ Massenkonzentrationen an deutschen Luftgütemessstationen. Um den Einfluss von städtischen und Verkehrsquellen zu charakterisieren, wurde die Trajektorien-Clusteranalyse auf fünf abgegrenzte Regionen in Deutschland angewendet. Die gleichzeitige Betrachtung mehrerer Stationen in je einer Analyse hat den Vorteil, dass die gewonnenen Interpretationen robuster bezüglich der zu ermittelnden Witterungseinflüsse auf die PM₁₀ Massenkonzentrationen ausfallen.

Eine präzise Zuordnung der Grenzwertüberschreitungen zu bestimmten lokalen Ursachen oder großräumigen Prozessen hat sich wegen der diffusen Verteilung der Quellen und der Langlebigkeit bestimmter Schadstoffkomponenten als generell schwierig erwiesen. Die Richtung der Trajektorien erlaubt in grenznahen Gebieten dennoch eine zumindest teilweise Erklärung der beobachteten PM₁₀ Massenkonzentrationen durch grenzüberschreitenden Transport. Die Betrachtung der vertikalen Atmosphärenschichtung erlaubt in vielen Fällen eine Erklärung von bodennahen Schadstoffniveaus durch Inversionswetterlagen. Dieser Teil der Arbeit ist vom Ansatz her dem vorangegangenen Kapitel 5 ähnlich, stellt jedoch eine Erweiterung dar, da hier eine großräumige Betrachtungsweise im Mittelpunkt steht. Obwohl bei benachbarten Regionen Parallelen gezogen werden können, lieferten die Analysen nicht immer vollständig äquivalente

Ergebnisse bezüglich der Wetterlagen. Dieser Teil der Arbeit beginnt mit Region A, Ostbrandenburg und Ostsachsen. Diese Region ist aufgrund der Grenznähe zu Polen und Tschechien von großem Interesse bezüglich des grenzüberschreitenden PM Transports.

6.1. Das Verkehrsinkrement

Analog zu Abbildung 5.2 b) wurde auch für die einzelnen Regionen das Verkehrsinkrement ΔPM_{10} in Abhängigkeit von der ländlichen PM₁₀ Hintergrundkonzentration berechnet, was in Abbildung 6.1 gezeigt wird. Auch hier wurde das Verkehrsinkrement über Kanäle des ländlichen PM₁₀ gemittelt, wobei die x-Achsen-Fehlerbalken die Kanalbreite und die y-Achsen-Fehlerbalken den Stichprobenfehler anzeigen. Für Region A ist im Bereich bis 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ nur ein additiver Effekt von ca. 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ erkennbar. Lediglich für sehr hohe ländliche PM₁₀ Massenkonzentrationen ist ein Anstieg des Verkehrsinkrementes zu verzeichnen. In den Regionen B und C läßt sich im Bereich bis 40/45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sowohl ein additiver Effekt von ca. 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als auch ein multiplikativer Effekt von ca. 3-3,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pro 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM₁₀ Anstieg im Hintergrund erkennen. Dies steht in grober Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus Abschnitt 5.1.1, was insofern nicht verwunderlich ist, als dass die Stadt Leipzig in Region C liegt. Für Regionen D und E ist im Bereich bis 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sowohl ein additiver als auch ein multiplikativer Effekt vorhanden. Diese liegen in Region D bei ca. 9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. 4,5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pro 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM₁₀ Anstieg im Hintergrund und bei Region E bei ca. 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. ca. 2,5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pro 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM₁₀ Anstieg im Hintergrund.

Der additive Effekt des Verkehrsinkrementes läßt sich analog Lenschow et al. [2001] interpretieren: es existiert ein regionaler Hintergrund von PM₁₀, der durch die lokalen Quellen absolut erhöht wird. Der multiplikative Effekt hingegen setzt voraus, dass ΔPM_{10} vom bereits im ländlichen Hintergrund vorhandenen PM₁₀ abhängig ist. Großräumige meteorologische Bedingungen sind zweifellos für die Region als auch das Ballungsgebiet identisch, können also analog zur Anreicherung (deshalb multiplikativ) von sowohl regional (transportierten) als auch lokal (emittierten) Schadstoffen führen. Lediglich bei Region A ist dieses Verhalten nicht so stark ausgeprägt, weil es sich hier nicht um ein großes Ballungsgebiet wie bei den anderen Regionen handelt und daher nicht so starke lokale (urbane) Schadstoffquellen vorhanden sind und außerdem durch die Grenznähe der grenzüberschreitende Transport für die Hintergrundkonzentrationen eine verstärkte Rolle spielt.

6.2. Ergebnisse der Clusteranalyse

Die Anwendung des Trajektorien-Clusteralgorithmus für die einzelnen Regionen für den Zeitraum 2005-2009 lieferte als Optimum 12 verschiedene Wetterlagen (Trajektori-

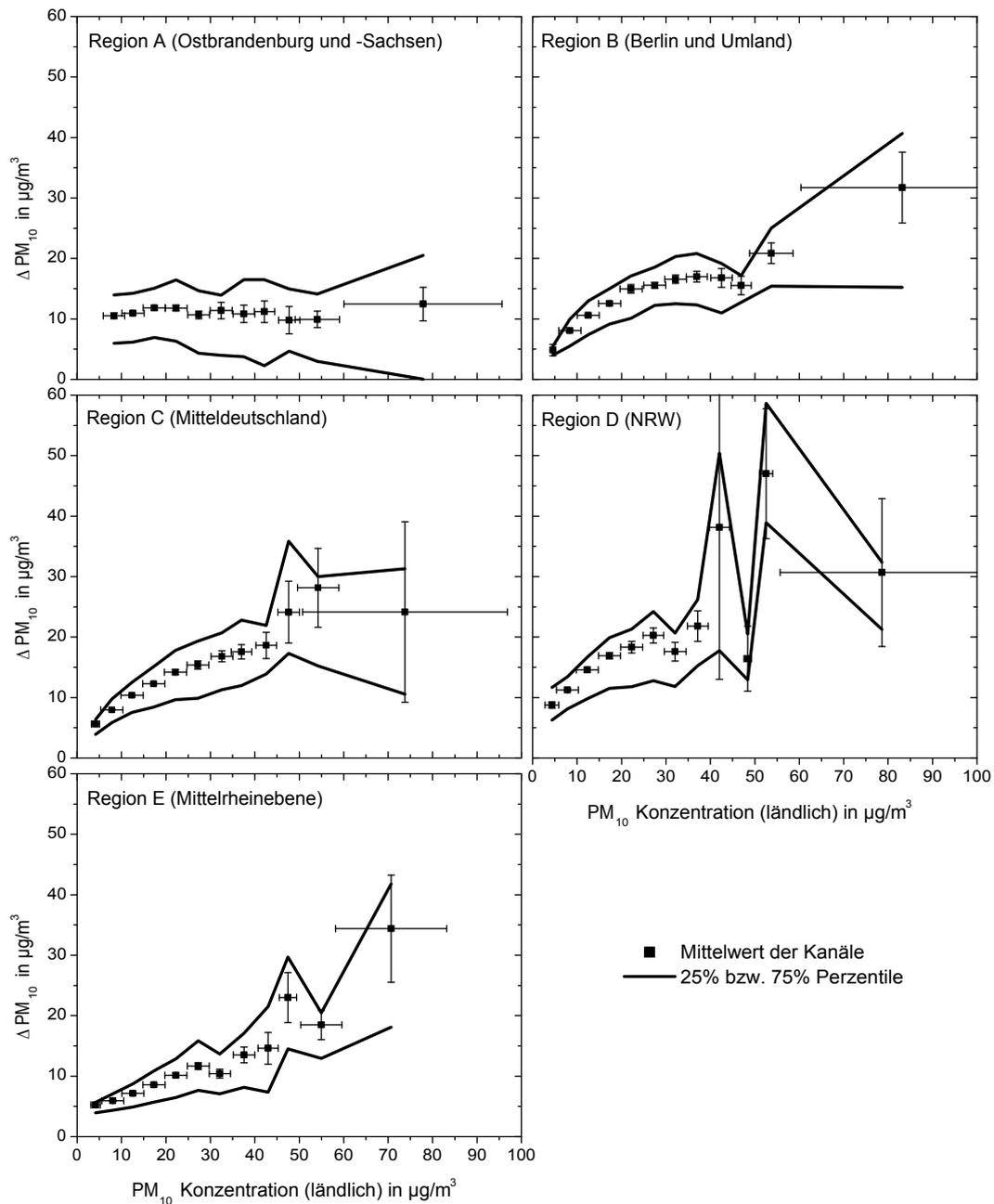


Abbildung 6.1. – Verkehrsinkremente ΔPM_{10} für die einzelnen Regionen. Die Datenpunkte wurden über Kanäle der ländlichen PM_{10} Massenkonzentration gemittelt (dargestellt durch x-Achsen-Fehlerbalken). Y-Achsen-Fehlerbalken zeigen den Stichprobenfehler.

encluster). Die Einteilung in Luftmassen erfolgte jedoch nicht exakt analog zwischen den einzelnen Regionen, sondern es wurde für jede Region ein neuer Durchlauf des Algorithmus gestartet. Hauptgrund ist, dass das Clusterverfahren (siehe Abschnitt 3.2.2) insgesamt darauf optimiert ist, einen möglichst großen Kontrast zwischen den Trajektorienclustern (Luftmassen, Wetterlagen) bei den PM_{10} Massenkonzentrationen

zu erzeugen. Dieser optimale Kontrast kann prinzipiell für eine ganz unterschiedliche Luftmasseneinteilung entstehen, wird aber in der Praxis bei benachbarten Regionen aufgrund ähnlicher Meteorologie bzw. Klimatologie sehr ähnlich ausfallen. An der Anzahl der Cluster (12) wurde jedoch schon aus Konsistenzgründen für alle Regionen festgehalten.

6.2.1. meteorologische Beschreibung der einzelnen Cluster

Abbildung 6.2 und Tabelle 6.1 zeigen die mittleren Rückwärtstrajektorien dieser 12 Cluster sowie das saisonale Auftreten jedes Clusters für die Regionen A-E. Man erkennt, dass jedes Cluster eine bestimmte Himmelsrichtung vertritt. Es ist jedoch anzumerken, dass eine einzelne Trajektorie aus einem Cluster teilweise erheblich von dessen mittlerer Trajektorie abweichen kann. Gleichzeitig gibt es starke Unterschiede bezüglich der mittleren Windgeschwindigkeit, die einerseits aus einer optimalen Abgrenzung der Cluster resultiert, andererseits auch klimatisch bedingt ist (z.B. stärkere West und Nordwestwinde als Ost- und Südostwinde). Ähnliche Cluster (z.B. A2 und B2) sind in der Regel nicht exakt deckungsgleich, stimmen aber meist in der klaren Mehrheit der Einzeltage überein und repräsentieren somit die gleiche Wetterlage.

Tabelle 6.1. – Zuordnung der einzelnen Cluster jeder Region zu Herkunftsgebieten und saisonalem Auftreten. Die Wetterlagen sind in absteigender Reihenfolge der Überschreitungssereignisse in Region A geordnet. Dunkelgrüne bzw. hellgrüne Farbe stehen für häufige bzw. mäßig häufige Überschreitungstage in den jeweiligen Regionen und Clustern.

Jahreszeit	Herkunft	Region A	Region B	Region C	Region D	Region E
Wi/He	Polen (Süd)	A1	B1	C1	D3	E5
Wi/He	Polen (Süd)			C3		
Wi	D/PL/CZ	A2	B2	C2	D1	E2
Wi/He	D (Süd)					E1
Wi/He	Frankreich (Süd)	A3	B4	C5	D4	E7
Frü/So	Polen (Mitte)	A4	B3	C4	D6	E6
So	BeNeLux	A5	B5	C7	D2	E8
Wi/He	Dänemark	A6	B8		D5	E4
Wi/He	Atlantik (UK)	A7	B7	C6	D10	
Wi/He	Ostsee	A8	B6	C8	D7	E3
Wi/He	Atlantik (Süd)	A9	B9	C12	D9	E11
So	Atlantik (Mitte)	A10	B10	C11	D8	E9
-	Atlantik (Nord)	A11	B11	C9	D11	E12
Wi/He	Atlantik (Mitte)	A12	B12	C10	D12	E10

Für die östlich gelegenen Regionen A bis C kann meist eins dieser Cluster direkt als winterlich geprägte (A1, B1, C1, C3) sowie eins als sommerlich geprägte (A4, B3, C4) Luftmassen interpretiert werden, die über das Nachbarland Polen nach Deutschland gekommen sind. In den Regionen D und E sind aufgrund der räumlichen Entfernung zu den Regionen A, B und C leicht abgewandelte meteorologische Verhältnisse erkennbar.

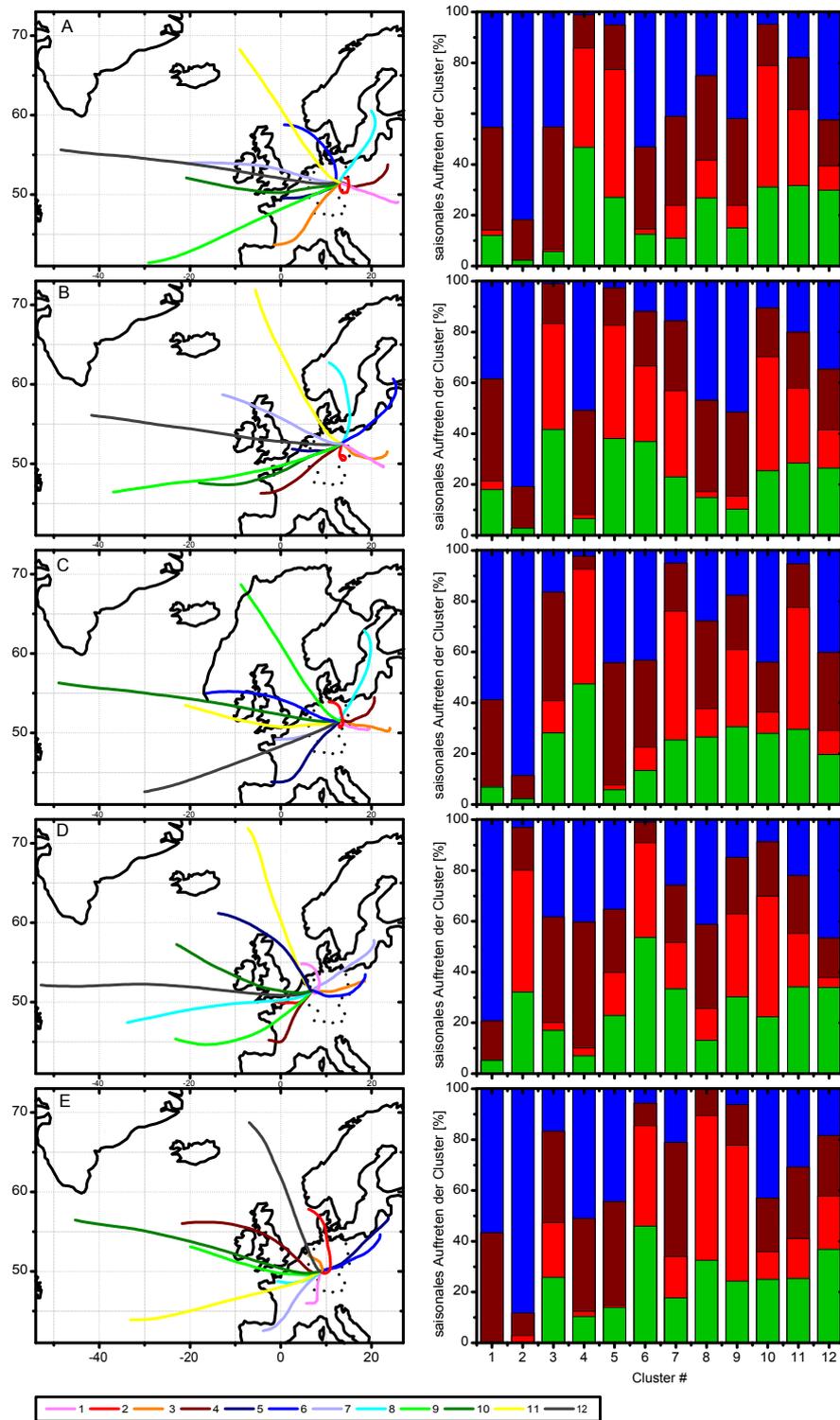


Abbildung 6.2. – Herkunft und saisonales Auftreten der einzelnen Cluster jeder Region. Links: mittlere Rückwärtstrajektorien (72 h), und rechts: saisonales Auftreten jedes Clusters (grün: Frühjahr, rot: Sommer, braun: Herbst, blau: Winter).

Eine Vielzahl an Clustern aus allen Regionen beinhalten Wetterlagen, bei denen ein grenzüberschreitender Transport aus Polen bzw. Tschechien möglich erscheint. Auch diese teilen sich in winterlich (A8, A2, B2, C8, C2, D3, E5) bzw. sommerlich geprägte Wetterlagen (B6, D7, D6, E6) auf.

Eine Vielzahl von Überschreitungstagen und generell sehr hohe PM₁₀ Massenkonzentrationen traten in allen Regionen in Verbindung mit stagnierenden winterlichen Hochdruckwetterlagen mit maximalem vertikalen Temperaturgradienten auf (A2, B2, C2, D1, E1 und E2). In diesen Clustern konnte ein vertikaler Gradient von Θ_e von 13 bis 18 K/1000 m Höhe bestimmt werden (vgl. Abb. B.1).

Insbesondere bei den kontinental geprägten Luftmassen dominiert der Transport über Deutschland und aus den dahinterliegenden Regionen (Frankreich, BeNeLux). Auch westliche Wetterlagen tragen zu einer geringen Anzahl von Überschreitungstagen bei. Hierzu zählen insbesondere die winterliche Südwestanströmung (A3, B4, C5, D4, E7) aus Südfrankreich sowie die langsame sommerliche Westanströmung (A5, B5, C7, D2, E3) aus der BeNeLux-Region.

Weitere Anströmungen traten aus allen westlichen und nördlichen Richtungen zahlreich auf. Bei diesen Trajektorienclustern dominiert in erster Linie der Transport über Deutschland, dann aus den zeitlich dahinterliegenden Regionen (Westeuropa, Atlantik, Skandinavien). In den zu winterlich geprägten Wetterlagen gehörigen Trajektorien wird auch zumeist eine antizyklonale Tendenz deutlich, die auf absinkende Luftmassen hindeutet. Außerdem gab es ausgeprägte Sommer- und Frühjahrs Wetterlagen aus westlichen bis nordwestlichen Richtungen. Diese sind durch eine gute Durchmischung der Grenzschicht, meist mit Grenzschichthöhen von 1000-3000 m, gekennzeichnet.

6.2.2. Die PM₁₀ Belastung bei den unterschiedlichen Wetterlagen

Abbildung 6.3 schlüsselt die PM₁₀ Massenkonzentrationen als Funktion der Wetterlagen (Trajektoriencluster) auf. Zunächst sieht man in allen Regionen deutliche Kontraste der PM₁₀ Massenkonzentration zwischen den Wetterlagen. Dies tritt insbesondere bei Region A zu Tage, wesentlich weniger stark ausgeprägt auch bei Region D. Die bei weitem höchsten Konzentrationen traten bei den Clustern A2, B2, C2, D1 und E2 auf, der winterlichen Hochdruckwetterlage. Hier liegen die Mittelwerte der PM₁₀ Massenkonzentrationen im ländlichen Bereich bei ca. 20 µg/m³ (D1), 30 µg/m³ (C2), fast 40 µg/m³ (E2), 45 µg/m³ (B2) bzw. über 50 µg/m³ (A2). Verkehrsnah liegen die Mittelwerte der PM₁₀ Massenkonzentrationen bei etwas über 50 µg/m³ (D1), knapp 60 µg/m³ (C2, E2), über 60 µg/m³ (B2) bzw. über 70 µg/m³ (A2). Naturgemäß ergibt sich daraus bei dieser Wetterlage auch die höchste Wahrscheinlichkeit von Grenzwertüberschreitungen.

Dieser Wetterlage folgen die Cluster A1, B1, C1 und D3, welche als winterliche Ostanströmung, mit Quellgebieten in Südpolen charakterisiert werden können (vgl. Abb. 6.2), sowie die winterliche Anströmung aus Süddeutschland (E1). Danach folgen nach absteigenden Mittelwerten der PM₁₀ Massenkonzentrationen an den verkehrs-

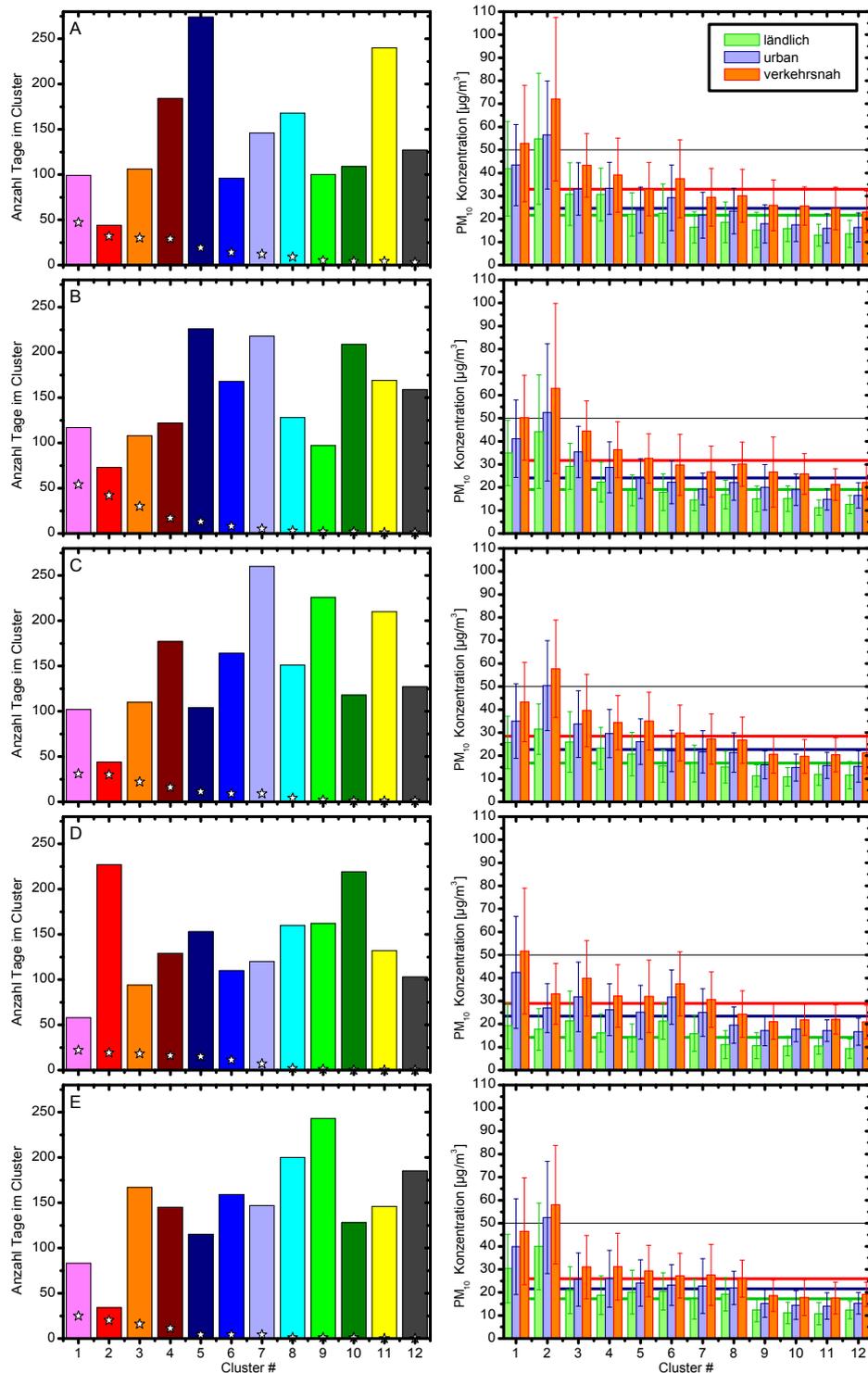


Abbildung 6.3. – Absolute Häufigkeit der Cluster (Balken) und Zahl der Grenzwertüberschreitungen (*) in Tagen (links) und PM₁₀ Massenkonzentrationsmittelwerte für die einzelnen Regionen (rechts), getrennt nach ländlichen, städtischen und verkehrsnahen Stationen. Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.

nahen Stationen geordnet für die einzelnen Regionen unterschiedliche Wetterlagen. Während in Region A die winterliche Südwestanströmung mit Quellregion Frankreich (A3) die nächst höheren Konzentrationen zeigt, ist es in Region B, C und D eine frühlingshafte und herbstliche Ostwetterlage mit Quellregion Südpolen (B3, C3, D6). Für die übrigen Cluster in Region E sind die Messwerte fast generell auf einem einheitlich niedrigen Niveau. Weiterhin folgt in Region A dann bereits die sommerliche Ostanströmung (A4), dann erst die winterliche antizyklonale Nordanströmung (A7). In Region B, C und D folgen dann die winterliche Südwestwetterlage (B4, C5) und die sommerliche Westwetterlage aus Deutschland und BeNeLux (B5, D2), die sommerliche Ostwetterlage (C4) bzw. die winterliche Nordostlage (D7). Alle anderen Cluster zeigen ähnlich Region E einheitlich geringe PM₁₀ Mittelwerte.

Wesentlich für die entstehenden PM₁₀ Massenkonzentrationen erscheint also eine Kombination von stabiler vertikaler Schichtung, welche das bodennahe Mischungsvolumen klein hält, sowie einer Anströmung der Luftmasse aus kontinentalen Quellgebieten. Ein interessantes Resultat ist auf jeden Fall, dass Grenzwertüberschreitungen auch in Luftmassen aus südwestlicher Richtung zu verzeichnen waren (Cluster A3, B4, C5, D4, E7). Gleichzeitig ist zu erkennen, dass bei jeder Wetterlage immer signifikante lokale (also städtische bzw. verkehrsnah) Beiträge vorhanden sind (Abb. 6.3). Es ist sogar so, dass diese Inkremente mit zunehmender Hintergrundbelastung selbst noch zunehmen. Dies ist eine wichtige Erkenntnis, denn es bedeutet, dass der absolute lokale Beitrag zur Belastung wie die Hintergrundbelastung in ähnlicher Weise von der Wetterlage abhängt (vgl. hierzu Abschnitt 6.1).

Wie bereits erwähnt, wurde die Clusteranalyse unter gleichzeitiger Betrachtung mehrerer Stationen auf die fünf Regionen angewendet. Dies hatte den entscheidenden Vorteil, dass die sich daraus ergebenden Mittelwerte der PM₁₀ Massenkonzentrationen als weniger anfällig für ungenaue Stationsklassifizierungen erwiesen. Generell scheinen die Messstationen der Regionen A bis E Konzentrationen entsprechend ihrer Kennzeichnungen aufzuweisen (ländlich < städtisch < verkehrsnah, siehe Abb. B.2). Insbesondere die städtischen Stationen wiesen sehr ähnliche mittlere Belastungen auf. In einigen Fällen wich die eine oder andere Station jedoch vom Ensemble ab, z.B. die urbanen Hintergrundstationen DEBB042 (A), DEBE034 (B), DESN019 (C), DENW038 (D) oder DEBY003 (E). Die Abweichungen der einzelnen Stationen vom Ensemblemittel scheint für die Regionen C und D größer als dies bei den Regionen A, B und E zu beobachten ist. Die Annahme des Konzentrationsgefälles zwischen den Stationstypen (ländlich < städtisch < verkehrsnah) gilt hier teilweise nicht mehr. Die Schwankungen innerhalb der ländlichen Kategorie der Regionen C bis E rühren im Wesentlichen von der Höhenlage einzelner Stationen her. Die Differenzierung nach Einzelmessstationen belegt auf jeden Fall den Nutzen der regionalen Herangehensweise im Gegensatz zur Verwendung von Stationstripeln (je 1 Station ländlich, städtisch, verkehrsnah), welche störanfälligere Ergebnisse im Hinblick auf die konkrete Stationswahl liefern können.

6.2.3. Überschreitungen des PM₁₀ Grenzwertes

Aus Abbildung 6.3 wurde bereits deutlich, dass die unterschiedlichen Wetterlagen zu deutlich unterschiedlichen PM₁₀ Massenkonzentrationen führen können. Daraus ergeben sich auch unterschiedlich häufige Überschreitungen des PM₁₀ Tagesmittelgrenzwertes von 50 µg/m³, welche für die einzelnen Regionen in Tabelle 6.2 zusammengefasst werden. Zusätzlich findet sich im Anhang eine Tabelle mit den Häufigkeiten des Auftretens, den Wahrscheinlichkeiten für Grenzwertüberschreitungen etc. für die einzelnen Cluster jeder Region (Tab. B.1).

Tabelle 6.2. – Beitrag verschiedener Wetterlagen zur Zahl der PM₁₀ Grenzwertüberschreitungen an verkehrsnahen Messstationen 2005-2009 in den Regionen A bis E (absolut (#) und pro Jahr (#/a)). Die Wetterlagen sind analog Tabelle 6.1 geordnet.

Jahreszeit	Herkunft	Region A		Region B		Region C		Region D		Region E	
		#	#/a								
Wi/He	Polen (Süd)	47	9,6	54	11	31	6,3	18	3,7	4	0,8
Wi/He	Polen (Süd)					22	4,5				
Wi	D/PL/CZ	32	6,5	42	8,5	30	6,1	22	4,5	20	4,1
Wi/He	D (Süd)									25	5,1
Wi/He	Frankreich (Süd)	30	6,1	17	3,5	11	2,2	16	3,3	4	0,8
Frü/So	Polen (Mitte)	29	5,9	30	6,1	16	3,3	11	2,2	4	0,8
So	BeNeLux	19	3,9	13	2,6	9	1,8	19	3,9	1	0,2
Wi/He	Dänemark	14	2,8	3	0,6			15	3,1	11	2,2
Wi/He	Atlantik (UK)	12	2,4	5	1	9	1,8	-	-		
Wi/He	Ostsee	9	1,8	8	1,6	4	0,8	7	1,4	16	3,3
Wi/He	Atlantik (Süd)	5	1	2	0,4	1	0,2	1	0,2	-	-
So	Atlantik (Mitte)	4	0,8	2	0,4	1	0,2	2	0,4	1	0,2
-	Atlantik (Nord)	4	0,8	1	0,2	2	0,4	-	-	-	-
Wi/He	Atlantik (Mitte)	3	0,6	1	0,2	1	0,2	-	-	1	0,2
GESAMT		208	42,3	178	36,2	137	27,9	111	22,6	87	17,7

In den einzelnen Regionen traten insgesamt an zwischen 208 und 87 Tagen Grenzwertüberschreitungen auf, also etwa 42 bis knapp 18 ÜS/Jahr. In Region A konnten die meisten Überschreitungstage gefunden werden, die wenigsten hingegen in Region E. Die meisten Überschreitungen traten während stagnierender bzw. östlicher Anströmung mit extrem kontinental geprägter Luft auf (A1,A2,A4, B1-B3, C1-C4, D1, E1-E3). Dies gilt nahezu für alle betrachteten Regionen, jedoch lassen sich naturgemäß Unterschiede zwischen den Regionen erkennen. In Region A waren ca. 22 ÜS/Jahr auf diese stagnierenden Luftmassen zurückzuführen, weitere 6 ÜS/Jahr auf kontinental geprägte winterliche Südwestanströmungen. In Region B waren im Mittel ca. 26 ÜS/Jahr den östlichen Anströmungen bzw. der stagnierenden Wetterlage zuzuordnen. Ein wesentlicher Anteil der Überschreitungsereignisse resultierte aus anderen Anströmungen, insbesondere Südwesten und Westen (B4 und B5, 6 ÜS/Jahr). In Region C waren im Mittel ca. 20 ÜS/Jahr den östlichen Anströmungen bzw. der stagnierenden Wetterlage zuzuordnen. Ein wesentlicher Anteil der Überschreitungsereignisse fand unter anderen Anströmungen statt, insbesondere Südwesten und Westen (C5

bis C7, 6 ÜS/Jahr). In Region D traten deutlich weniger Überschreitungstage auf als in den vorherigen Regionen. Der wesentliche Teil davon fand unter stagnierenden winterlichen Bedingungen statt (D1, 4,5 ÜS/Jahr), der Rest verteilte sich auf eine Vielzahl von Wetterlagen (vor allem D2-D6) in allen Jahreszeiten und bei verschiedenen Anströmungen. Die wenigen Überschreitungseignisse in Region E konzentrierten sich fast ausschließlich auf winterliche Inversionswetterlagen (E1 und E2, 9 ÜS/Jahr), eine ganzjährig vertretene Stagnationswetterlage (E3, 3,3 ÜS/Jahr) und eine antizyklonale Winterwetterlage mit Transport aus Richtung England, BeNeLux und NRW (E4, 2 ÜS/Jahr). Insbesondere für Region D kann man keine Vorzugswindrichtung für verschmutzte Luftmassen erkennen. Aber auch in den anderen Regionen sind die PM₁₀ Grenzwertüberschreitungen an den verkehrsnahen Messstationen nur begrenzt durch die großräumige Wetterphänomenologie erklärbar. Auch das systematische Auftreten eines städtischen und verkehrsnahen Inkrements (Abb. 6.3) führt zu dem Schluss, dass viele PM₁₀ Grenzwertüberschreitungen sowohl durch lokale als auch durch regionale PM₁₀ Quellen hervorgerufen werden.

Einzelne Jahre sind maßgeblich für die Anwendung der EU-Feinstaubrichtlinie [2008/50/EC 2008] bezüglich eines Maximums von 35 Überschreitungen des Tagesmittelwertes pro Jahr. Insbesondere in den Regionen A bis C ist eine hohe zwischenjährliche Variabilität in der Zahl der Grenzwertüberschreitungen festzustellen, welche weitgehend von der Ausprägung der Wetterlagen im Winter abhängen. In Region A bis C gab es zwei Jahre, in denen Grenzwertüberschreitungen häufiger als 35 Mal pro Jahr auftraten (2005, 2006) sowie zwei Jahre mit einer Häufigkeit unter 35 (2007, 2008) (siehe Tab. B.2, welche die Grenzwertüberschreitungen an den verkehrsnahen Messstationen der betrachteten Regionen nach Einzeljahren aufschlüsselt). Im Jahr 2009 traten nur in Region A mehr als die erlaubten 35 Grenzwertüberschreitungen auf. In Region D und E kam es in keinem der betrachteten Jahre häufiger als 35 Mal pro Jahr zu Grenzwertüberschreitungen. In allen Jahren mit einer Häufigkeit über 35 kann jedoch festgestellt werden, dass sich die Grenzwertüberschreitungen trotz bestimmter Präferenzen für die Wetterlagen A/B/C1 bis A/B/C4 stets auf eine Vielzahl von Wetterlagen, sowohl östlicher als auch westlicher Anströmung, im Winter wie im Sommer verteilen.

Für eine detailliertere Betrachtung der Saisonalität, wurden die Tage der einzelnen Cluster in Monatszeiträume eingeteilt (siehe Abb. B.3). Das dominanteste Auftreten eines Einzelmonats hat der Januar, gefolgt vom Dezember mit insgesamt ca. 80 % relativer Häufigkeit bei der winterlichen Hochdruckwetterlage in allen Regionen (A2, B2, C2, D1, E2, Abb. B.3, links). Bezüglich der PM₁₀ Grenzwertüberschreitungen ergibt sich ein facettenreiches Bild (Abb. B.3, rechts): Die absolut häufigsten Grenzwertüberschreitungen traten in den Regionen A bis D zwischen Oktober und März bei der winterlichen Ostanströmung (Wetterlagen A/B/C1, C3, D3) auf. Danach folgt die stagnierende Hochdruckwetterlage (A/B/C/E2, D/E1) mit nahezu ausschließlich Tagen im Januar und Dezember. Weitere zahlreiche Grenzwertüberschreitungen wurden in der win-

terlichen Südwestanströmung (A3, B4, C5, D4) sowie außerhalb des Winterhalbjahres in frühlingshafter Ost- bzw. Westanströmung (A4/5, B3/5, C4/7, D2/6) gefunden. Insbesondere in Region E konzentrierten sich die Tage mit Grenzwertüberschreitungen an den Verkehrsstationen fast ausschließlich auf die Monate Dezember bis Februar. In den Regionen A bis D traten in einigen Clustern aber auch Überschreitungstage im Frühjahr (März bis Mai), in Region D einige wenige im Sommer (Juni bis August) auf.

6.3. Schlussfolgerungen

Obwohl bei benachbarten Regionen Parallelen gezogen werden können, liefern die Analysen nicht immer vollständig äquivalente Ergebnisse bezüglich der Wetterlagen. Generell kann man feststellen, dass die Problematik der Grenzwertüberschreitungen in den westlichen Regionen (D und E) weniger ausgeprägt ist als in den östlichen Regionen (A, B und C). Dies lässt sich direkt an der Zahl der 2005 bis 2009 insgesamt aufgetretenen Grenzwertüberschreitungen, definiert auf Basis der über alle Verkehrsstationen gemittelten Tagesmittelwerte, erkennen: 111 (Region D) und 87 (Region E) gegenüber 208 (Region A), 178 (Region B) und 137 (Region C). Region A und B lassen sich ganz ähnlich interpretieren: Es dominieren die winterlichen stagnierenden und östlichen Luftmassen (26 ÜS/Jahr) die Gesamtanzahl. Aber auch hier tragen westliche Wetterlagen, insbesondere die winterliche Südwestanströmung und die sommerliche Westanströmung im Mittel zu je 3 bis 6 ÜS/Jahr bei. In Region C finden sich ganz analoge Ergebnisse.

In den Regionen D und E führen vor allem schwachwindige Winterwetterlagen zu hohen PM_{10} Massenkonzentrationen. Eine Ausnahme ist die Sommersmogwetterlage D5 in Nordrhein-Westfalen. Dies führt zum Schluss, dass die relativ wenigen Grenzwertüberschreitungen in diesen beiden Regionen vor allem durch lokale und regionale Quellen bedingt sind. In den Regionen A bis C hingegen tritt zu diesen Mechanismen der Feinstaubeintrag aus Quellgebieten in östlicher Richtung hinzu: Grenzwertüberschreitungen sind hier bei östlicher Anströmung am wahrscheinlichsten. Diese können am ehesten im Winter, aber auch im Frühjahr und Herbst auftreten. Hinzu kommt die in allen Regionen A bis C vorkommende stagnierende Winterwetterlage (Hochdruckeinfluss), bei der ein wesentlicher Beitrag örtlicher und regionaler Quellen wahrscheinlich ist. Die als grenzüberschreitend definierbaren Wetterlagen machen jedoch nur ca. 2/3 der Überschreitungstage an den Verkehrsstationen aus.

Bei der Betrachtung des Verkehrsinkrements ließ sich für alle Regionen ein additiver Effekt nachweisen, der im Sommer teilweise noch stärker ausgeprägt war. Als Konsequenz daraus wird der additive Effekt als Aufwirbelung von trockenem Straßenstaub interpretiert. Der multiplikative Effekt ist für Region C bis E im Winter verstärkt vorhanden. Dies deutet darauf hin, dass sowohl für hohe PM_{10} Massenkonzentrationen im ländlichen Hintergrund als auch für ein verstärktes Verkehrsinkrement ΔPM_{10}

ähnliche Ursachen verantwortlich sind. Durch meteorologisch günstige Bedingungen können sowohl regional als auch lokal emittierte Schadstoffe in Bodennähe stärker akkumulieren als bei guter Durchmischung der atmosphärischen Grenzschicht. Die Verletzung der EU-Richtlinie (mehr als 35 ÜS/Jahr) ist daher nicht ohne die Beteiligung regionaler bzw. lokaler Quellen erklärbar.

7 Die regionale Belastung mit Schadstoffen: Validierung des Aerosol-Mikrophysik-Moduls ext-M7

In den Kapiteln 5 und 6 wurde bereits eine Quantifizierung der verschiedenen Quellbeiträge zu den beobachteten Belastungen bezüglich der Partikelmasse PM_{10} vorgestellt. Da jedoch sowohl Wolkenprozesse als auch Gesundheitseffekte stark von der Partikelanzahl, Partikelgröße und chemischen Partikelzusammensetzung abhängen [z.B. Grützun 2008; Pope III et al. 2002], ist auch eine Bilanzierung hinsichtlich der Partikelgrößenverteilung und der chemischen Aerosolzusammensetzung von großem Interesse. Atmosphärische Transportmodelle bieten dafür eine geeignete Möglichkeit. Deren Genauigkeit bezüglich der Partikelanzahl ist jedoch nicht ausreichend geklärt. Hierzu soll dieser Teil der Arbeit einen Beitrag leisten. Ziel war eine Modellvalidierung sowie eine genauere Parametrisierung von Partikelemissionen unter Berücksichtigung der zur Verfügung stehenden experimentell bestimmten Daten. Durch die Modellevaluierung konnten jedoch auch Fehler im Modell-Code zum Beispiel bei der Berechnung der Depositionsgeschwindigkeit (siehe Abschnitt 7.4.2) oder Modell-Inkonsistenzen wie beispielsweise die Verwendung des trockenen Partikeldurchmessers für das *Mode-Merging* (siehe Abschnitt 7.4.3) gefunden und korrigiert werden.

7.1. Modellvergleich mit massenbasiertem Schema

Für den Zeitraum 23.12.2006 bis 1.1.2007 wurde ein erster Modelllauf für das Gebiet Sachsens (N3) mit einer räumlichen Auflösung von $3,5 \text{ km} \times 3,5 \text{ km}$ durchgeführt und mit experimentell bestimmten meteorologischen Größen, Spurengaskonzentrationen und einigen Aerosolparametern aus Sachsen verglichen (Abb. C.1). Hierfür wurde im Aerosolmodul noch der massenbasierte Mechanismus benutzt, der hauptsächlich die

heterogene Kondensation von sekundärem anorganischen Material auf vorhandene Aerosolpartikel betrachtet [Hinneburg et al. 2009]. Bei einigen Parametern fiel der Vergleich gut oder zufriedenstellend aus, andere hingegen wiesen starke Unterschiede zwischen Modell und Beobachtung auf. Ein Teil der berechneten Werte stimmte nur teilweise (also entweder die mittleren Konzentrationen oder die Trends) oder an einigen Tagen der Vergleichsepisode überein.

Beim Vergleich meteorologischer Parameter (Temperatur, relative Feuchte, Windrichtung und -geschwindigkeit für eine ländliche (Melpitz) und eine urbane Station (Dresden)) wurde im Allgemeinen eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtungsdaten gefunden (vgl. Abb. C.1). Deutliche Abweichungen (24./25.12.) ließen sich schließlich durch einen Frontdurchgang im Modellgebiet während der Vergleichsepisode erklären, da die Lage der Frontalzone vom Modell nicht akkurat wiedergegeben wurde. Insgesamt sollte die gute Übereinstimmung hinsichtlich der Meteorologie allerdings nicht überbewertet werden, da ein anerkanntes Vorhersagemodell (COSMO) mit einer geringen Vorhersagedauer (72 h) verwendet wurde. Außerdem wurden die Konzentrationen verschiedener Spurengase (NO, NO₂ und SO₂) zwischen Modell und Beobachtung verglichen (vgl. Abb. C.1). Der Vergleich für NO fiel sehr schlecht aus, da das Modell Probleme hatte, sowohl die realen Konzentrationsniveaus als auch den zeitlichen Verlauf der Konzentrationen abzubilden. Für NO₂ konnten sowohl die Schwankungen als auch die absoluten Konzentrationen recht gut wiedergegeben werden, der zeitliche Verlauf von SO₂ konnte nur ungenau simuliert werden.

Die Simulationsergebnisse des massenbasierten Aerosolmoduls wurden mit den gemessenen Werten der Gesamtmasse und der chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel kleiner 10 µm verglichen. Für die PM₁₀ Massenkonzentration stimmten sowohl die zeitlichen Schwankungen als auch die absoluten Konzentrationen zwischen Modell und Messung gut überein. Die simulierten Sulfatkonzentrationen lagen in der gleichen Größenordnung wie die gemessenen, die Ammoniumkonzentration wurde vom Modell meist unterschätzt, wobei ein leichter zeitlicher Versatz zu verzeichnen war.

In diesem ersten Test wurde festgestellt, dass das Modell aufgrund der gewählten Auflösung die kleinräumigen urbanen Verhältnisse sowie Bergstationen nur sehr schlecht auflösen kann. Da auch der aufgewirbelte Straßenstaub nicht berücksichtigt wird, ist das regionale Modell in dem für diese Arbeit verwendeten Setup für die Skala der städtischen Effekte ungeeignet. Diese lassen sich jedoch ausreichend gut mit den vorhandenen Daten beschreiben (s. Kapitel 5 und 6). Aus diesem Grunde wurden in dieser Arbeit der städtische Aspekt und der regionale Schadstofftransport entkoppelt voneinander betrachtet.

Für den Modellvergleich wurde eine neue Episode ausgewählt (25.3.-20.4.2009), da für diesen Zeitraum eine Vielzahl an weiteren Größenspektrometer- sowie Rußmessdaten (als Indikator für anthropogene Verschmutzung) zur Verfügung standen und

außerdem extrem hohe Schadstoffniveaus beobachtet werden konnten. Es wurde auf Hintergrundstationen aus ganz Deutschland zurückgegriffen [Nordmann et al. 2009; Birmili et al. 2009] und nur noch die Rechnungen für das Modellgebiet N2 (entspricht in etwa Deutschland, s. Kapitel 4.2) verwendet. Wie bereits erwähnt, soll hierfür das Aerosolmodul ext-M7 (Kapitel 4.3) Verwendung finden. Da dies jedoch eine Parametrisierung der nur als Jahressummen vorhandenen primären Partikelemissionen notwendig macht, wurde zuvor ein Schema zur Aufspaltung der primären Gesamtpartikelmassen (pPM) in einzelne chemische Komponenten und die vier benutzten Größenbereiche anhand der Literatur erarbeitet.

7.2. Emissionsparametrisierung

Schadstoffquellen werden in verschiedene Quellgruppen, sogenannte „Snaps“, eingeordnet (z.B. Energieerzeugung, Verkehr, Landwirtschaft, industrielle Verbrennung, Müllbeseitigung etc.), wobei für jeden dieser Snaps und jeden Schadstoff ein Emissionskataster existiert. Da die Schadstoffemissionen leider nur als Jahressummen vorliegen, muß eine geeignete Parametrisierung für die Emissionsflüsse bei der Modellanwendung verwendet werden. Die jahres-, wochentags- und tageszeitlichen Schwankungen können beschrieben werden, indem die Jahresemissionswerte mit Hilfe der aktuellen emittentenspezifischen saisonalen und diurnalen Verteilungsfunktion zeitlich aufgespalten werden. Biogene Emissionen werden unter Berücksichtigung von Bewuchs und Tageszeit separat berechnet, wobei Informationen über Wolkenbedeckung, Temperatur und andere meteorologische Parameter vom COSMO übernommen werden. Wie bereits im vorangehenden Abschnitt erwähnt, muss bei Anwendung von ext-M7 eine Parametrisierung verwendet werden, die die pPM Emissionen auf die einzelnen chemischen Komponenten sowie die unterschiedlichen Größenbereiche verteilt. Die Parametrisierung der pPM_{10} bzw. $\text{pPM}_{2,5}$ Emissionen sollte sich idealerweise an realen Messungen orientieren, was allerdings schwierig zu bewerkstelligen ist, da in der Literatur nur sehr wenig über direkte Emissionen existiert. Die einzelnen Arbeiten über Emissionen stellen außerdem nur Punktmessungen dar, deren generelle Anwendbarkeit nicht klar ist. Daher wurden hier Immissionsdaten für die Aufspaltung herangezogen [Herrmann et al. 2006; Putaud et al. 2004; Gietl et al. 2008]. In Tabelle 7.1 ist die aus der Literatur gewonnene Parametrisierung der $\text{pPM}_{2,5}$ Emissionen („Emission-Split“) zusammengefasst.

Tabelle 7.1. – Emissionsparametrisierung für die $pPM_{2,5}$ Gesamtmasse [%]. Die Summe über alle Moden und Komponenten ergibt 100% im jeweiligen „Snap“.

Aerosolmode	Sulfat	Nitrat	Ammonium	OC	EC	Staub	Seesalz
Verkehr							
1: Nukleationsmode, löslich	0	0	0	0	0	0	0
2: Aitkenmode, löslich	1,5	2,1	1,2	5,2	14,7	2,5	0,4
3: Akkumulationsmode, löslich	5,9	7,5	4,5	6,9	12,5	3,4	2,1
4: Grobmode, löslich	1,6	4,8	1	3,2	3	6,3	2,7
5: Aitkenmode, unlöslich	0	0	0	0,6	1,6	0,3	0
6: Akkumulationsmode, unlöslich	0	0	0	0,8	1,4	0,4	0,2
7: Grobmode, unlöslich	0	0	0	0,4	0,3	0,7	0,3
Verbrennung							
1: Nukleationsmode, löslich	0	0	0	0	0	0	0
2: Aitkenmode, löslich	2,2	1,6	1,5	4,3	4,6	2,1	0,2
3: Akkumulationsmode, löslich	11,5	12	9,1	7,8	11,5	7,8	1,6
4: Grobmode, löslich	1,3	4	1	1,7	1,4	4,9	2,2
5: Aitkenmode, unlöslich	0	0	0	0,5	0,5	0,2	0
6: Akkumulationsmode, unlöslich	0	0	0	0,9	1,3	0,9	0,2
7: Grobmode, unlöslich	0	0	0	0,2	0,2	0,5	0,2
Hintergrund							
1: Nukleationsmode, löslich	0	0	0	0	0	0	0
2: Aitkenmode, löslich	0,4	0,2	0,2	0,8	0,4	0,2	0,1
3: Akkumulationsmode, löslich	14,9	14,1	11,1	9,5	11,8	9,6	2,1
4: Grobmode, löslich	2	4,8	1,6	2,5	1,4	4,9	2,5
5: Aitkenmode, unlöslich	0	0	0	0,1	0	0	0
6: Akkumulationsmode, unlöslich	0	0	0	1,1	1,3	1,1	0,2
7: Grobmode, unlöslich	0	0	0	0,3	0,2	0,5	0,3

7.3. Charakterisierung der meteorologischen Verhältnisse während der Vergleichsepisode

Für den Vergleich von Modellsimulationen und Beobachtungsdaten wurde die Episode vom 25.3. bis 20.4.2009 ausgewählt. In Abbildung 7.1 sind zur Verdeutlichung die Karten der 500 hPa relativen Topographie für 8 Tage dieser Episode dargestellt. Zu Beginn der Episode war eine Nordwest-Lage mit polarer Kaltluftadvektion wetterbestimmend, wobei Deutschland trogrückseitig lag. Diese schwächte sich am 27.3. etwas ab und es konnte sich schwacher Zwischenhocheinfluss mit zonaler Strömung durchsetzen. Am 28.3. wurde neue Kaltluft nach Deutschland geführt. Deutschland lag bei südwestlicher Anströmung wieder trogvorderseitig. Dieser Trog löste sich auf, so dass sich ab 31.3. eine stabile Hochdrucklage ausbilden konnte. Das Hochdruckgebiet blieb für mehrere Tage stationär über Mitteleuropa, wobei anfangs wieder eine zonale Strömung ab 2.4. dann eine Südost-Anströmung warme Luft nach Deutschland transportierte. Ab 5.4. wurde die Strömung wieder zonal, wobei ein kleines stabiles Hochdruckgebiet weiterhin über Mitteldeutschland bestehen blieb. Ab 8.4. lag Deutschland dann wieder trogvorderseitig, wobei sich die Wetterlage auf Südwest umstellte. Ab 9.4. setzte sich ein Hochdruckgebiet weiter durch und blieb relativ stationär. Die Anströmung war sehr schwach aus südlicher Richtung. Durch das blockierende Hochdruckgebiet bildete sich ein abgeschnürtes Tiefdruckgebiet, eine sog. „cut-off-Zyklone“ (ab 12.4.), welches sich südlich von Deutschland nach Osteuropa verlagerte. Auch ab 15.4. schnürte sich erneut ein Höhentief ab, dieses zog aber nördlicher, also über Deutschland hinweg, östwärts. Der Hochdruckeinfluss schwächte sich deutlich ab, so dass ab 17.4. bei Süd- bis Südost-Anströmung wieder Tiefausläufer über Deutschland wetterbestimmend waren. Ab 19.4. entwickelte sich wieder eine zonale Strömung.

Insgesamt besteht die Episode aus 27 Tagen, von denen die Hälfte (also 14 Tage) in die Cluster zwei oder vier aus Kapitel 5 einzuordnen sind. Diese beiden Cluster repräsentieren frühlingshafte Wetterlagen mit sehr langsamer Anströmung aus im Mittel östlicher bis nordöstlicher Richtung. Die Tage des Hochdruckeinflusses bei südwestlicher Anströmung (31.3. bis 3.4.) wurden Cluster vier zugeordnet. Das Ende der Episode (ab 11.4.) wurde wechselnd in Cluster zwei und vier eingeordnet. Außerdem gehörten jeweils drei bis fünf Tage zu den Clustern fünf, sieben oder acht, welche marine Luftmassen aus West bis Nordwest repräsentieren. Zehn Tage (also reichlich 1/3) konnten als Überschreitungstage identifiziert werden, wobei die Mehrzahl auf Cluster vier und zwei zurückzuführen ist. Dies ist jedoch kein sonderlich überraschendes Ergebnis, wurde doch in Kapitel 5 bereits herausgestellt, dass diese beiden Cluster zu einer beträchtlichen Zahl von Überschreitungstagen im Frühjahr beitragen. Um die Schadstoffbelastung während der Vergleichsepisode noch näher zu beleuchten, ist in Abbildung 7.2 für die gleichen Tage wie in Abbildung 7.1 jeweils eine Karte der PM₁₀ Tagesmittelkonzentrationen von Deutschland zu sehen.

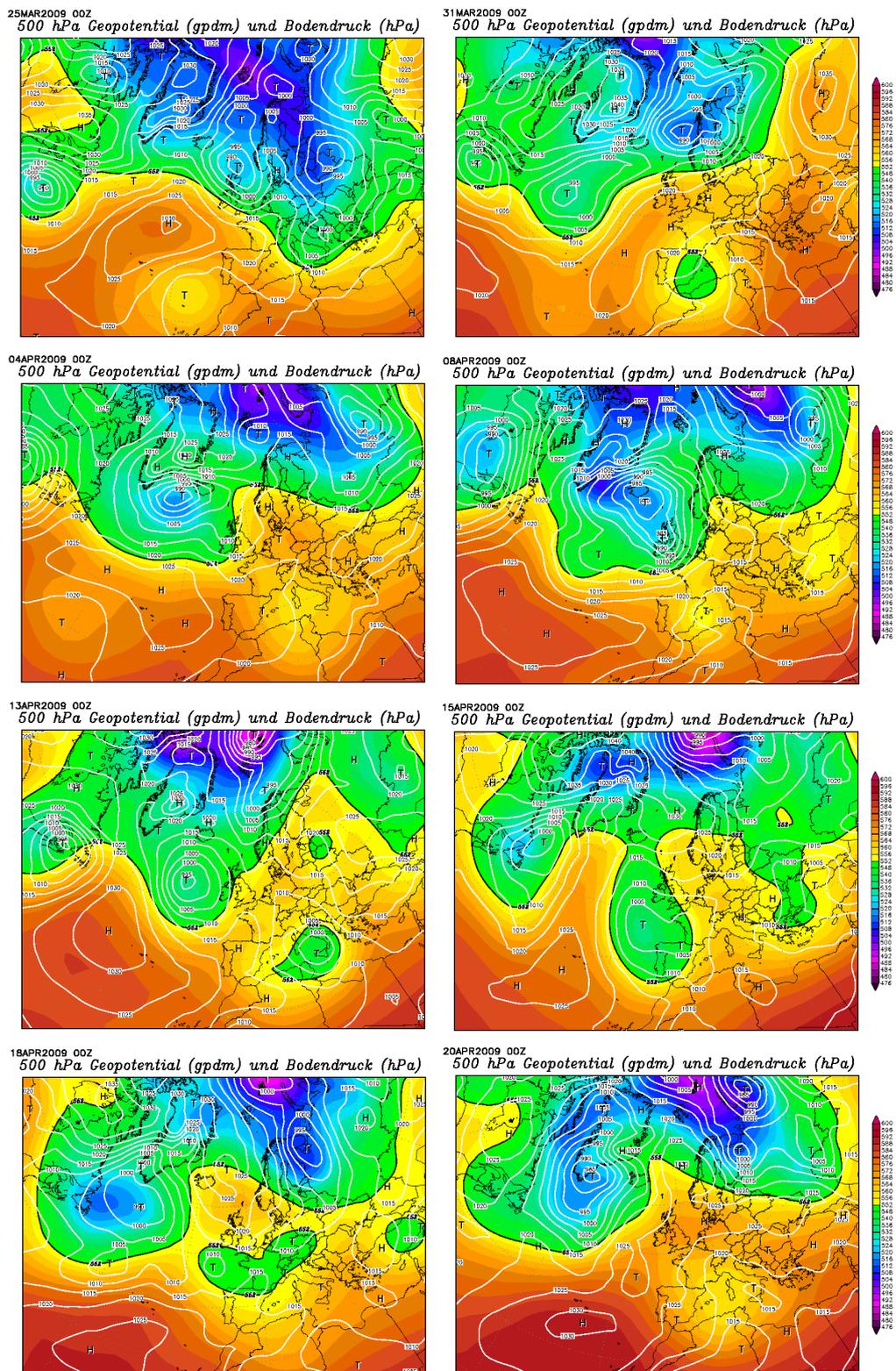


Abbildung 7.1. – 500 hPa Relative Topographie für ausgewählte Tage der Vergleichsepisode 25.3. bis 20.4.2009, jeweils 00:00 MEZ.

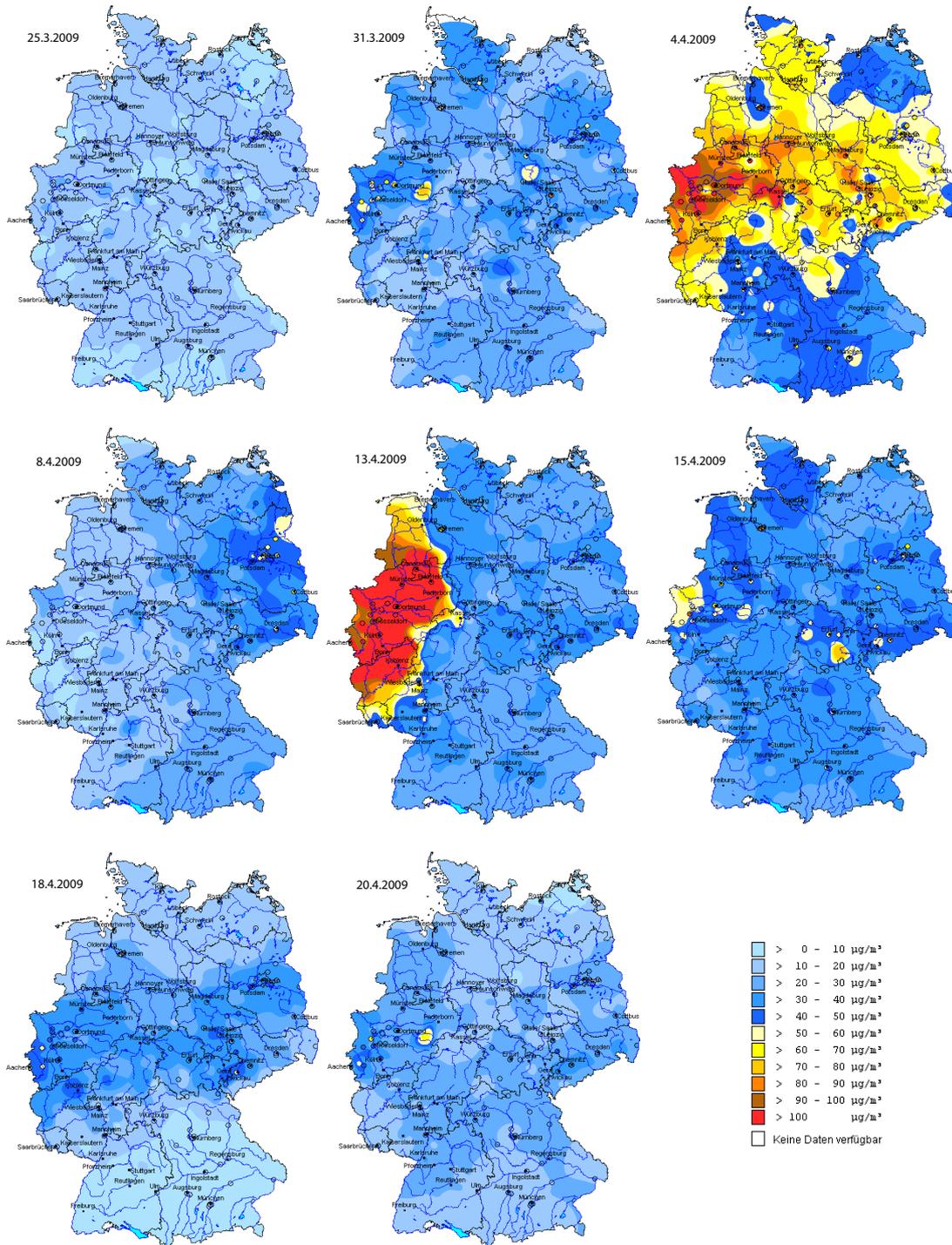


Abbildung 7.2. – PM₁₀ Beobachtungsdaten (Tagesmittelwerte) für ausgewählte Tage der Vergleichsepisode 25.3. bis 20.4.2009. Die Karten wurden vom Umweltbundesamt (UBA) zur Verfügung gestellt.

Zu Beginn der Episode wurden deutschlandweit nur geringe PM₁₀ Massenkonzentrationen gemessen. Auch mit dem Kaltlufteinbruch und der Umstellung auf zonale Anströmung ab 27. bzw. 28.3. war noch keine nennenswerte Änderung zu verzeichnen. Erst bei Ausbildung der stabilen Hochdrucklage ab dem 30.3. in der Mitte Deutschlands, ab dem 31.3. verbreitet in ganz Deutschland konnte eine leichte Erhöhung der Konzentrationen beobachtet werden. Erst am 2.4. waren dann in Ostdeutschland auch im ländlichen Bereich Überschreitungen des 50 µg/m³ Grenzwertes zu beobachten. Am 3.4. waren auch vereinzelt in Westdeutschland Überschreitungen zu beobachten. Dies verstärkte sich am 4.4. deutlich. So konnten in ganz Deutschland PM₁₀ Massenkonzentrationen von bis zu 80 µg/m³ im ländlichen Bereich, in Ballungszentren (Ruhrgebiet) sogar über 100 µg/m³ nachgewiesen werden. Diese Schadstoffwolke verlagerte sich am 5.4. etwas nach Süden, in Sachsen stiegen die Konzentrationen auch im ländlichen Bereich auf örtlich über 80 µg/m³ an.

Die Situation entspannte sich am 6. und 7.4. deutlich, so dass nur noch im Osten und äußersten Westen Deutschlands ländliche Konzentrationen von bis zu 80 µg/m³ und vereinzelt urbane Konzentrationen von bis zu 100 µg/m³ zu beobachten waren. Im übrigen Bundesgebiet lagen die Werte wieder unter dem Grenzwert von 50 µg/m³. Die folgenden zwei Tage (8., 9.4.) waren deutschlandweit von deutlich geringeren Konzentrationen geprägt (meist zwischen 20 und 50 µg/m³), so konnten stellenweise sogar Werte unter 10 µg/m³ registriert werden. Mit Umstellung auf die Hochdrucklage ab 9. bzw. 10.4. erhöhten sich die Konzentrationen erst im Osten, dann noch deutlicher im Nordwesten Deutschlands wieder spürbar, so dass am 11.4. im ländlichen Bereich wieder Grenzwertüberschreitungen mit Konzentrationen von bis zu 70 µg/m³ auftraten. Durch die stabile Hochdrucklage konnten sich die Schadstoffe in der Luft weiter anreichern, so dass die PM₁₀ Massenkonzentrationen in den folgenden zwei Tagen (12., 13.4.) im Westen Deutschlands auf deutlich über 100 µg/m³ ansteigen konnten.

Bereits am 14.4. deutete sich die allmähliche Auflösung der Hochdrucklage durch deutlich geringere PM₁₀ Massenkonzentrationen an. In den folgenden zwei Tagen traten dann nur noch sehr vereinzelt Grenzwertüberschreitungen in ländlichen Gebieten auf. Mit Durchzug der Tiefausläufer zog sich ab 17.4. ein Streifen von leicht erhöhten Konzentrationen (aber immer noch unter dem Grenzwert) in Ost-West-Orientierung über die Mitte Deutschlands, der sich am folgenden Tag etwas südlich verlagerte und sich am darauffolgenden Tag weiter abschwächte. Außerhalb dieses Streifens lagen die Konzentrationen bei sehr geringen Werten von teilweise unter 10 µg/m³. Am letzten Tag der Vergleichsepisode waren die Konzentrationen über Deutschland nahezu gleichmäßig auf geringem Niveau zwischen 10 bis 30 µg/m³, was sich auf die Advektion von mariner Luft aus Westen zurückführen lässt.

7.4. Validierung des Aerosol-Mikrophysik-Moduls ext-M7

Für die Modellgebiete N1 bzw. N2 wurden mehrere Modellläufe mit ext-M7 gerechnet, von denen hier vier Läufe (R1 bis R4) chronologisch vorgestellt werden. Eine Übersicht über die Läufe, die simulierten Modellgebiete und Modellunterschiede ist in Tabelle 7.2 zu finden.

Tabelle 7.2. – Überblick über die verwendeten Modellgebiete und Modifikationen der einzelnen Modellläufe R1 bis R4.

Modelllauf	Modellgebiet	Modifikationen
R1	N1	Implementierung der Emissionsparametrisierung
R2	N1	<i>Mode-Merging</i>
R3	N2	Korrektur des D_p bei Berechnung der Depositionsgeschwindigkeit, andere Profile der Anfangskonzentrationen
R4	N2	<i>Mode-Merging</i> mit feuchtem D_p , Initialisierung der Anzahlkonzentration modifiziert

7.4.1. Vergleich von Partikelvolumen V , -anzahl N und PM: R1 und R2 mit ext-M7

Im ersten Lauf R1 wurde die Emissionsparametrisierung aus Abschnitt 7.2 implementiert. Für einen ersten Eindruck wurden die simulierten PM_{10} Massenkonzentrationen in der bodennahen Schicht auf dem Gebiet Deutschlands für jeden Tag der Vergleichsepisode jeweils um 00:00 und 12:00 MEZ räumlich dargestellt und mit den Karten der gemessenen Tagesmittelwertkonzentrationen von PM_{10} (siehe auch Abb. 7.2) verglichen. Exemplarisch ist dies in Abbildung 7.3 für die gleichen Tage wie in Abbildung 7.2, jeweils um 12:00 MEZ zu sehen.

Quantitativ wurde bereits beim ersten Modelllauf eine gute Übereinstimmung der räumlichen Verteilung der Gesamtpartikelmasse PM_{10} gefunden. Zu Beginn der Vergleichsepisode (29.3.) war im Modelloutput eine kleinere Schadstoffwolke von Westen her zu finden, die in der Realität so nicht vorhanden war. Allerdings waren die Konzentrationen auf einem relativ geringen Niveau (ca. $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Am folgenden Tag verstärkte sich dies durch den zunehmenden Hochdruckeinfluss weiter und entsprach nun auch der realen Verteilung, wenn auch mit etwas höheren Konzentrationen als real. Die erhöhten PM_{10} Massenkonzentrationen am 31.3. wurden gut wiedergegeben. Auch die Schadstoffwolke am 4.4. konnte vom Modell reproduziert werden. Diese wurde

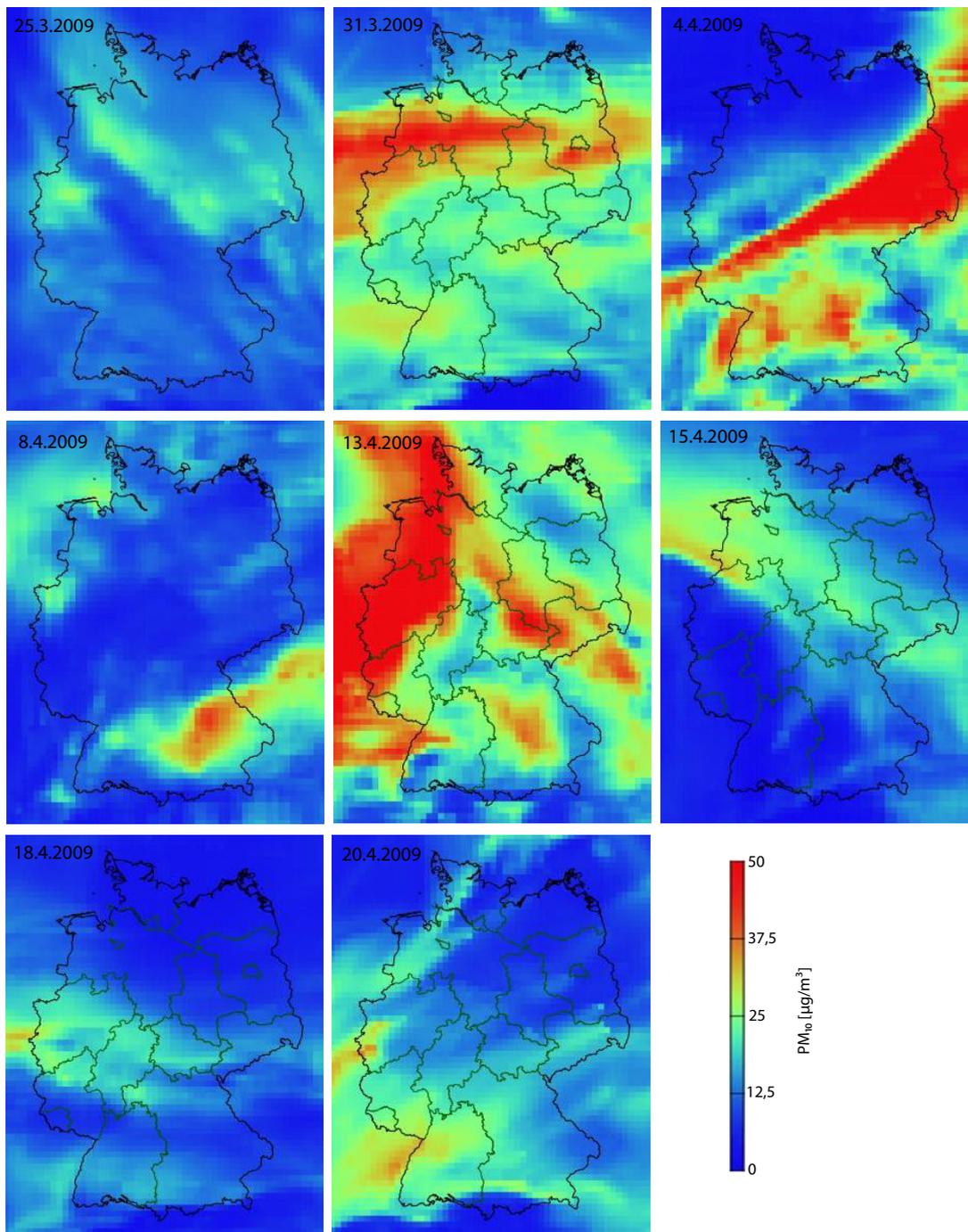


Abbildung 7.3. – R1: Simulierte PM₁₀ Massenkonzentrationen für das Gebiet Deutschland in der bodennahen Schicht für ausgewählte Tage der Vergleichsepisode 25.3. bis 20.4.2009, jeweils 12:00 MEZ.

allerdings in der Realität eher von Westen nach Deutschland transportiert, im Modell von Nordwesten.

Ab 5.4. lag dann ein Streifen mit hohen PM_{10} Massenkonzentrationen quer über Deutschland, was sich auch in der Simulation so wiederfinden ließ. Hier zogen die erhöhten Werte allerdings schon einen Tag früher als in den Beobachtungen nach Norden aus dem betrachteten Gebiet. Auch an den beiden folgenden Tagen (8., 9.4.) wurde wieder eine kleinere Schadstoffwolke simuliert, die so in der Wirklichkeit nicht existierte. Diese verstärkte sich weiter und zog dann am 12.4. wieder von Westen her nach Deutschland, wobei sich die Konzentrationen am folgenden 13.4. sogar noch weiter erhöhten. Diese Erscheinung wurde in der Simulation sehr realistisch wiedergegeben. Dies gilt ebenso für die folgende Verdünnung und den Transport aus dem betrachteten Gebiet heraus.

Der Streifen von erhöhten PM_{10} Massenkonzentrationen, der sich zwischen dem 16. und 19.4. quer über Deutschland erstreckte, wurde auch in der Simulation wiedergegeben, ebenso wie die wieder einheitlich geringen Konzentrationen am 20.4.2009. Generell konnte also eine gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Beobachtung festgestellt werden. Allerdings bleibt anzumerken, dass teilweise sowohl die genaue Lage der Schadstoffe als auch die zeitlichen Abläufe z.B. des Transports oder der Verdünnung nicht genau übereinstimmen. Aber gerade räumliche (wenn auch teilweise nur leichte) Abweichungen können zu starken Unterschieden in den später betrachteten Zeitreihen führen, je nachdem welcher Ort zum Modellvergleich verwendet wird und auf welcher Seite der Luftmassengrenze sich dieser befunden hat. Aus diesem Grunde werden später auch mehrere Orte zum Modellvergleich herangezogen. Für die Station Melpitz ist in Abbildung 7.4 der Vergleich des ersten Modelllaufes mit ext-M7 mit den Beobachtungsdaten für Partikelmasse M , -volumen V und -anzahl N , jeweils der Gesamtpartikelpopulation und des Akkumulationsmode, dargestellt. Die Zeitachse ist in Tagen seit dem 1.1.2005 bemessen, Tag 1544 entspricht also dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009. Außerdem findet sich im Anhang eine Übersicht über die gemessenen und simulierten Konzentrationen bzw. Größen für alle vier dargestellten Modellläufe (Tab. C.1).

Für die Gesamtmassenkonzentrationen PM_{10} sowie $PM_{2,5}$ fällt der Modellvergleich insgesamt positiv aus. Auch die zeitliche Entwicklung der Konzentrationen stimmt recht gut mit den Beobachtungsdaten überein. Lediglich einzelne Tage mit außergewöhnlich hohen gemessenen Konzentrationen (in der Mitte und am Ende der Vergleichsepisode) wurden vom Modell unterschätzt. Für einen überwiegenden Teil der Episode war auch der Vergleich des Gesamtpartikelvolumens V_{tot} zufriedenstellend. Zu Beginn und Ende überschätzte das Modell hingegen die relativ niedrigen Konzentrationen deutlich. Die Partikelanzahl N_{tot} wird jedoch sehr ungenau vom Modell beschrieben. Sie wurde ca. um einen Faktor zwei überschätzt, aber auch der zeitliche Verlauf wurde nicht wiedergegeben. Die simulierten Anzahlkonzentrationen sind fast einheitlich

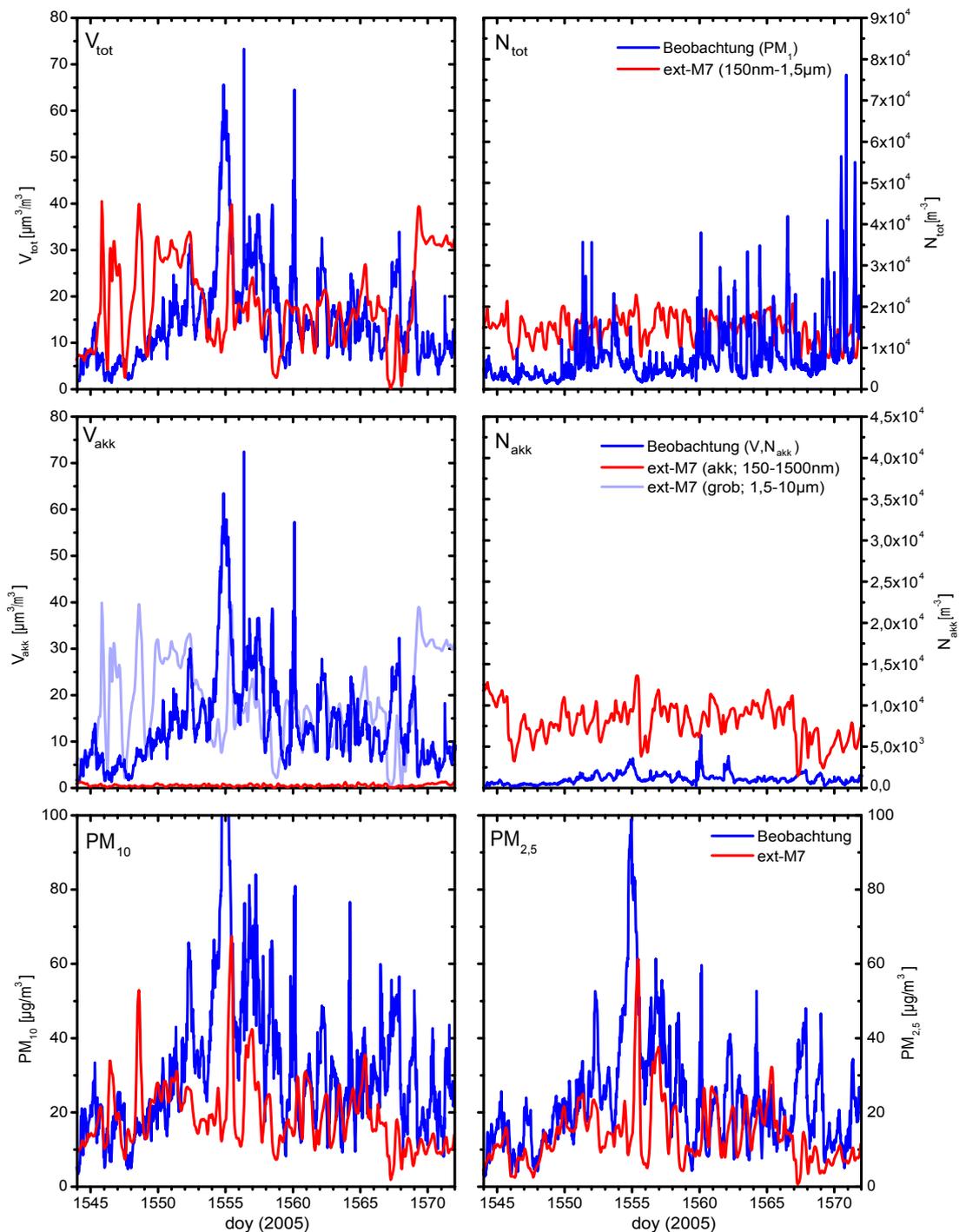


Abbildung 7.4. – R1: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Melpitz. Dargestellt sind Partikelanzahl und -volumen der gesamten Partikelpopulation (N_{tot} , V_{tot}) sowie des Akkumulationsmode (N_{akk} , V_{akk}), außerdem $\text{PM}_{2.5}$ und PM_{10} . Tag 1544 (Tagesnummer seit 1.1.2005) entspricht hierbei dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009.

auf dem gleichen Niveau, unabhängig davon, ob in der Realität geringe oder starke Schwankungen zu beobachten waren.

Für den Vergleich des Akkumulationsmode wurden von den gemessenen Partikelgrößenverteilungen die Volumen- und Anzahlintegrale für die entsprechenden Größenintervalle (analog der im Modell verwendeten Grenzen zwischen den einzelnen Moden) berechnet. Partikelvolumen und -anzahl im Akkumulationsmode wurden vom Modell um ca. eine Größenordnung unter- bzw. überschätzt und zeitliche Verläufe gar nicht wiedergegeben. Allerdings konnte festgestellt werden, dass das simulierte Partikelvolumen im Grobmode zumindest zeitweise sehr gut mit den realen Werten des Akkumulationsmode korreliert. Wie beim Gesamtvolumen waren lediglich zu Anfang und am Ende der Vergleichsepisode höhere Werte im Modell zu verzeichnen. Dies deutete darauf hin, dass die Volumenaufteilung zwischen den einzelnen Moden im Modell überprüft werden sollte. Hierbei stellte sich heraus, dass das sog. *Mode-Merging*, also das Herüberschieben von gealterten und damit gewachsenen Partikeln aus dem Akkumulationsmode in den Grobmode nicht realitätsnah beschrieben war. Deshalb wurde die hierfür im Modell verwendete Parametrisierung für den folgenden Modelllauf, dessen Ergebnisse in Abbildung 7.5 zu sehen sind, verändert.

Bei Betrachtung des Partikelvolumens, sowohl der Gesamtpartikelpopulation als auch des Akkumulationsmodes fällt eine deutliche Verbesserung der Beschreibung auf. Nach wie vor gab es aber einzelne Tage (z.B. 1554 bis 1556 oder 1567 (4.-6.4., 17.4.), Abb. 7.5), an denen das Modell die tatsächlichen Konzentrationen deutlich unterschätzte, die Größenordnungen jedoch übereinstimmten. Da dies in der Mitte der Vergleichsepisode auftrat, als ein räumlich begrenztes Gebiet mit hohen Konzentrationen über Deutschland zu finden war, könnte dies jedoch, wie oben bereits angedeutet, darin begründet sein, dass die Lage der Luftmassengrenze vom Modell nicht absolut korrekt reproduziert wurde. Melpitz lag zwar in Wirklichkeit im Gebiet der hohen Schadstoffbelastung, im Modell allerdings auf der weniger belasteten Seite. Für andere Vergleichstationen sind diese Unterschiede weniger auffällig (vgl. Abschnitt 7.4.2).

Die Partikelanzahl wurde vom Modell allerdings weiterhin deutlich überschätzt. Für die Gesamtpopulation simulierte das Modell am Anfang der Episode ca. Faktor 10, am Ende der Episode nur noch Faktor zwei zu viele Partikel. Im Akkumulationsmode lagen die modellierten Konzentrationen ca. eine Größenordnung über den tatsächlich beobachteten. Die zeitlichen Schwankungen der Anzahlkonzentrationen konnte nicht wieder gegeben werden. Da das Partikelvolumen gut, die Partikelanzahl jedoch unrealistisch simuliert wurden, wurde für die folgenden Modellläufe außerdem der Partikeldurchmesser als Vergleichsparameter herangezogen, da Partikelvolumen und -anzahl in ext-M7 über den mittleren Partikeldurchmesser im Mode miteinander verknüpft sind. Dies wird im folgenden Abschnitt genauer beleuchtet.

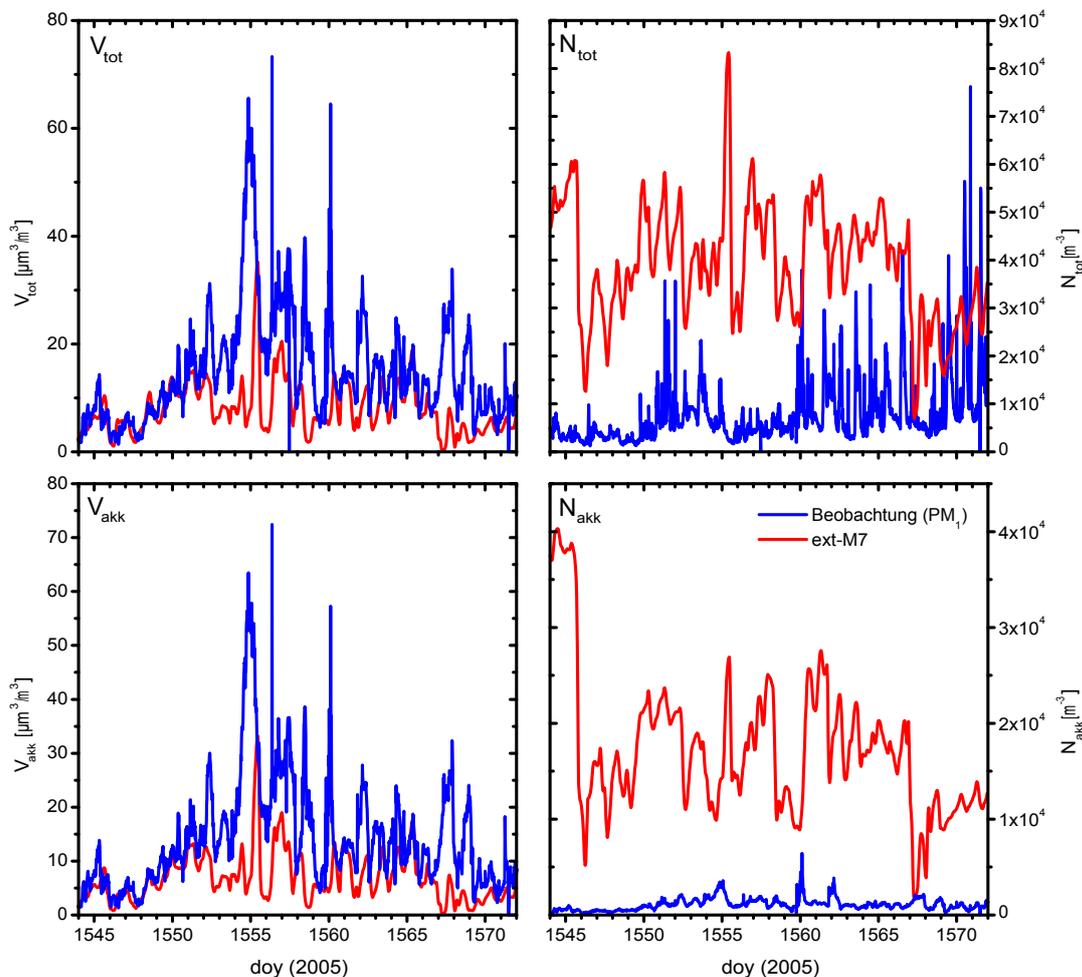


Abbildung 7.5. – R2: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Melpitz. Dargestellt sind Partikelanzahl und -volumen der gesamten Partikelpopulation (N_{tot} , V_{tot}) sowie des Akkumulationsmode (N_{akk} , V_{akk}). Tag 1544 (Tagennummer seit 1.1.2005) entspricht hierbei dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009.

7.4.2. Vergleich von Partikelvolumen V , -anzahl N und Partikeldurchmesser D_p : R3 mit ext-M7

Ein Vergleich der Partikeldurchmesser D_p ist nur für die einzelnen Moden möglich. Daher wurden die gemessenen Partikelgrößenverteilungen ebenfalls in zumeist drei Moden unterteilt und log-Normalmoden mit der gleichen Standardabweichung σ_i wie im Modell verwendet angefitet (vgl. Kapitel 3.1.3). Zum Vergleich mit den bisher verwendeten Volumen- und Anzahlintegralen über ein bestimmtes Größenintervall der gemessenen Partikelgrößenverteilungen wurden außerdem die Volumen- und Anzahlintegrale der gefitteten Moden berechnet. An dieser Stelle sollen lediglich Volumen, Anzahl und Durchmesser für den Akkumulationsmode verglichen werden. Im Grobmode ist ein großer Anteil der Partikelmasse enthalten, Messungen für diesen

Größenbereich sind aber nur teilweise (nur in Melpitz) vorhanden und unsicher. Im Aitkenmode ist hingegen ein sehr großer Anteil der Partikelanzahl enthalten, dieser wird aber vom Modell noch ungenauer als der Akkumulationsmode beschrieben. Durch den Vergleich des Partikeldurchmessers zwischen Modell und Beobachtung wurde an dieser Stelle ein Fehler im Modell-Code identifiziert, weshalb dieser hier nicht vorgestellt werden soll. Die Depositionsgeschwindigkeit wurde mit einem fehlerhaften Partikeldurchmesser berechnet. Außerdem konnten Probleme bei der Initialisierung der Partikelanzahl identifiziert werden. Aus diesen Gründen wurden andere Profile für die Anfangskonzentrationen (Partikelanzahl) verwendet und die Berechnung der Depositionsgeschwindigkeit korrigiert. Die Ergebnisse des ersten Vergleiches von experimentell bestimmten und simulierten Partikeldurchmessern für den folgenden Modelllauf (R3) sind in Abbildung 7.6 dargestellt.

Die anfänglichen Anzahlkonzentrationen stimmten jetzt deutlich besser mit den real gemessenen Werten überein als im vorherigen (nicht gezeigten) Lauf. Allerdings reduzierten sich die Anzahlkonzentrationen im Verlauf mehrerer Tage durch Koagulation, Deposition und Mischungsprozesse deutlich, sodass am Ende der Episode die simulierten Anzahlkonzentrationen um bis zu eine Größenordnung unterschätzt wurden. Die Ursachen hierfür könnten unterschätzte Emissionen von Partikeln oder aber überschätzte Deposition bzw. Verdünnung im Modell sein. Sowohl der zeitliche Verlauf als auch die Größenordnung der Partikelvolumenkonzentration im Akkumulationsmode stimmten zwischen Modell und Messung gut überein, jedoch unterschätzte das Modell die tatsächlichen Konzentrationen um bis zu Faktor drei. Die Volumen- und Anzahlkonzentrationen, die als Integral über ein Größenintervall der gemessenen Partikelgrößenverteilung berechnet wurden, waren für die gesamte Zeit gut mit den Integralen der gefitteten log-Normalmoden vergleichbar. Dies wird als Beleg dafür interpretiert, dass die im vorigen Abschnitt getroffenen Aussagen hinsichtlich der über das Größenintervall berechneten Konzentrationen ähnlich auch für die gefitteten Moden gelten.

Gegen Ende der Episode ist eine auffällige Abweichung zwischen Modell und Messung zu beobachten. An den Tagen 1568 und 1569, was dem 18. und 19.4.2009 entspricht, sind deutlich zu geringe Partikelvolumen- und -anzahlkonzentrationen simuliert worden. Dies hat wahrscheinlich seine Ursache in den Tiefausläufern, die an diesen beiden Tagen in Mitteldeutschland wetterwirksam waren. Wie eingangs schon erwähnt, ist die akkurate Simulation der genauen Lage der Frontalzone im Modell schwierig und kann in derartigen Grenzfällen zu erheblichen Unsicherheiten in der Simulation der Aerosolmikrophysik an einem bestimmten Ort führen.

Durch die sehr realistische Partikelanzahl zu Beginn der Episode zeigen auch die simulierten Partikeldurchmesser eine sehr gute Übereinstimmung zu den Beobachtungen, da sich diese aus dem Partikelvolumen bzw. der -masse und der entsprechenden Anzahl ergeben. Der simulierte Durchmesser erhöhte sich allerdings in der zweiten

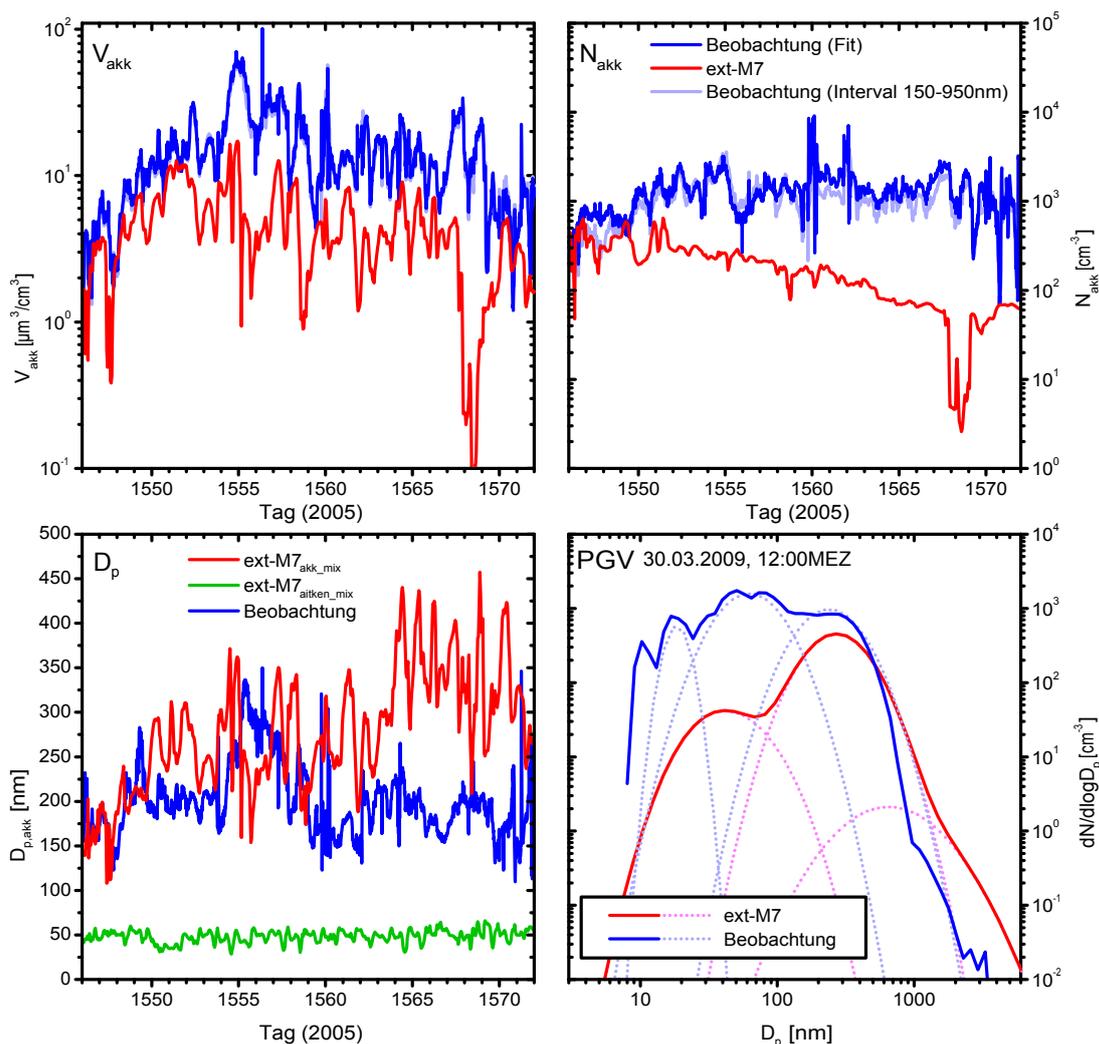


Abbildung 7.6. – R3: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Melpitz. Dargestellt sind Partikelanzahl und -volumen im Akkumulationsmode (N_{akk} , V_{akk}) und der trockene mittlere Durchmesser des Akkumulations- und Aitkenmodes (D_p). Tag 1544 (Tagesnummer seit 1.1.2005) entspricht hierbei dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009. Außerdem ist exemplarisch der Vergleich zwischen einer gemessenen und gefitteten Partikelgrößenverteilung sowie den simulierten Moden und der daraus resultierenden Partikelgrößenverteilung für den 30.3.2009, 12:00 MEZ zu sehen.

Hälfte der Episode (ab ca. Tag 1560, entspricht dem 10.4.) und wurde zum Ende der Episode (ab Tag 1564, entspricht dem 14.4.) deutlich um bis zu Faktor zwei überschätzt. Die Größenordnung konnte also vom Modell in der ersten Hälfte der Vergleichsepisode gut wiedergegeben werden, was jedoch nicht für die Variabilität gilt. Kleinere Abweichungen sollten jedoch nicht überbewertet werden, da auch das Fitten von Moden an die realen Partikelgrößenverteilungen subjektiv und damit fehlerbehaftet ist. Auch der Durchmesser des Aitkenmode lag in einem realistischen Größenbereich.

Die dargestellte Partikelgrößenverteilung ist nur exemplarisch zu verstehen, da sie in jedem Fall eine Momentaufnahme darstellt. Allerdings wird deutlich, dass sowohl der Aitken- aber erst recht der Nukleationsmode nicht hinreichend genau mit dem Modell beschrieben werden können. Der Durchmesser des Aitkenmode liegt, wie bereits erwähnt, in einem realistischen Bereich, aber die Partikelanzahl und damit auch das Partikelvolumen bzw. die -masse sind in der Simulation zu gering. Der Akkumulations- und Grobmode werden annähernd wiedergegeben, wobei festzustellen ist, dass es teilweise nicht möglich ist, an den gemessene Größenverteilung einen Grobmode anzufitten. Dies gilt insbesondere, wenn die Standardabweichung der log-Normalmoden σ_i , wie in dieser Arbeit (um Konsistenz zwischen Modell und Beobachtungen zu gewährleisten), festgelegt werden. Es wurde festgestellt, dass σ_i für die Messungen teilweise zu breit war und mit schmalen Moden in vielen Fällen eine bessere Übereinstimmung der Fits mit der tatsächlichen Größenverteilung hätte erreicht werden können. So verschwindet der Grobmode in dem gezeigten Beispiel in der groben Flanke des Akkumulationsmode, obwohl mit schmalen Modes durchaus ein separater Grobmode gefittet hätte werden können.

7.4.3. Vergleich von Partikelvolumen V , -anzahl N , Partikeldurchmesser D_p und chemischer Zusammensetzung: R4 mit ext-M7

Um zu testen, ob die Probleme der Beschreibung des Frontdurchgangs am 18./19.4. mit der gewählten Zykluslänge erklärbar sind, wurde ein weiterer Modelllauf mit 24 h-Zyklen statt den bisher verwendeten 48 h-Zyklen aber ansonsten den gleichen Initialisierungsbedingungen wie in Lauf R3 durchgeführt. Da sich aber keine nennenswerte Verbesserung der beschriebenen Probleme ergab, soll an dieser Stelle auf eine detaillierte Vorstellung dieser Modellrechnung verzichtet werden. Folgend wurde noch ein letzter Lauf mit veränderter Partikelanzahl-Initialisierung berechnet (R4), dessen Ergebnisse in den Abbildungen 7.7 bis 7.11 zu sehen sind. Für diese Modellrechnung wurde außerdem der feuchte Durchmesser der Aerosolpartikel benutzt, um die Verschiebung von einem Mode in den nächstgrößeren aufgrund von Alterungsprozessen zu beschreiben (*Mode-Merging*). Dies entspricht eher den realen Verhältnissen in der Atmosphäre.

An der Station Melpitz (Abb. 7.7) ist der Unterschied zum im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Modelllauf gering. Das simulierte Partikelvolumen zeigt lediglich für den beschriebenen Frontdurchgang etwas weniger auffällige Abweichungen von den Beobachtungsdaten. Die Partikelanzahl liegt im neuen Lauf etwas höher als vorher, was wiederum auch für den Tag des Frontdurchganges zutrifft. Der zeitliche Verlauf von beiden Größen sowie des Partikeldurchmessers ist nahezu identisch zum vorangegangenen Modelllauf. Allerdings liegen die simulierten Partikeldurchmesser jetzt etwas höher, was jedoch eine Verschlechterung gegenüber dem vorigen Lauf darstellt. Bei der Simulation des Partikeldurchmessers im Aitkenmode gab es keine sichtbare Veränderung. Des Weiteren ist ein Boxplot zum deutlicheren Vergleich von experimentell

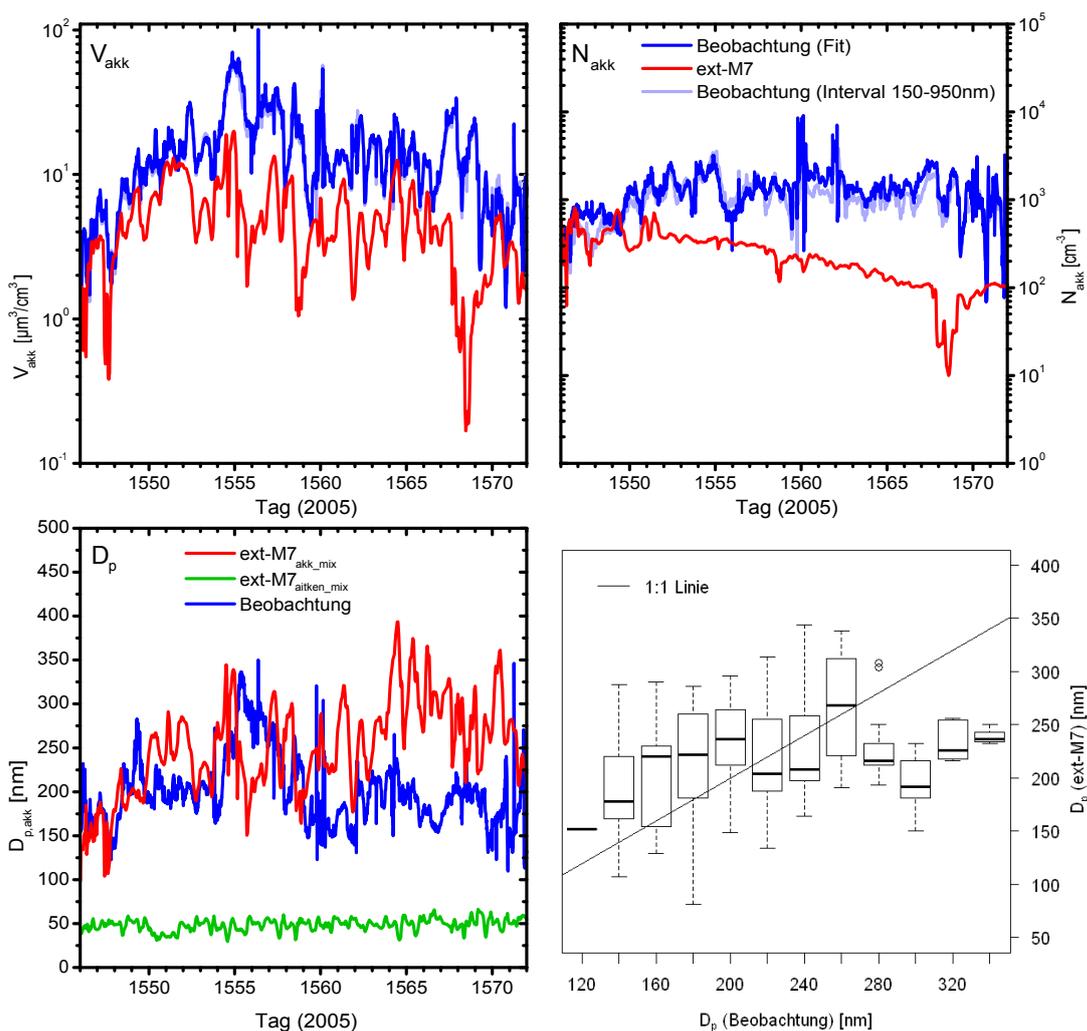


Abbildung 7.7. – R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Melpitz. Dargestellt sind Partikelanzahl und -volumen im Akkumulationsmode (N_{akk} , V_{akk}) und der trockene mittlere Durchmesser des Akkumulations- und Aitkenmodes (D_p). Tag 1544 (Tagesnummer seit 1.1.2005) entspricht hierbei dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009. Außerdem ist ein Boxplot als Vergleich des Partikeldurchmessers im Akkumulationsmode zwischen Beobachtung und ext-M7 zu sehen. Dargestellt sind die Mediane, Quartile (Boxen) sowie Minimum- und Maximumwerte (Fehlerbalken). Die Kreise stellen evtl. auftretende Ausreißer dar.

bestimmten und simulierten Partikeldurchmessern dargestellt. Hier wird deutlich, dass die Größenordnung durchaus realistisch wiedergegeben werden konnte, allerdings traf dies nicht auf die real vorkommende Schwankungsbreite zu. Das Modell erzeugt Werte auf einem fast einheitlichen Niveau im Bereich von ca. 180 bis 260 nm, wohingegen die experimentell bestimmten Werte zwischen 110 und 350 nm lagen. Für kleinere Partikel wird der Partikeldurchmesser im Akkumulationsmode im Modell also überschätzt, für größere Partikel unterschätzt.

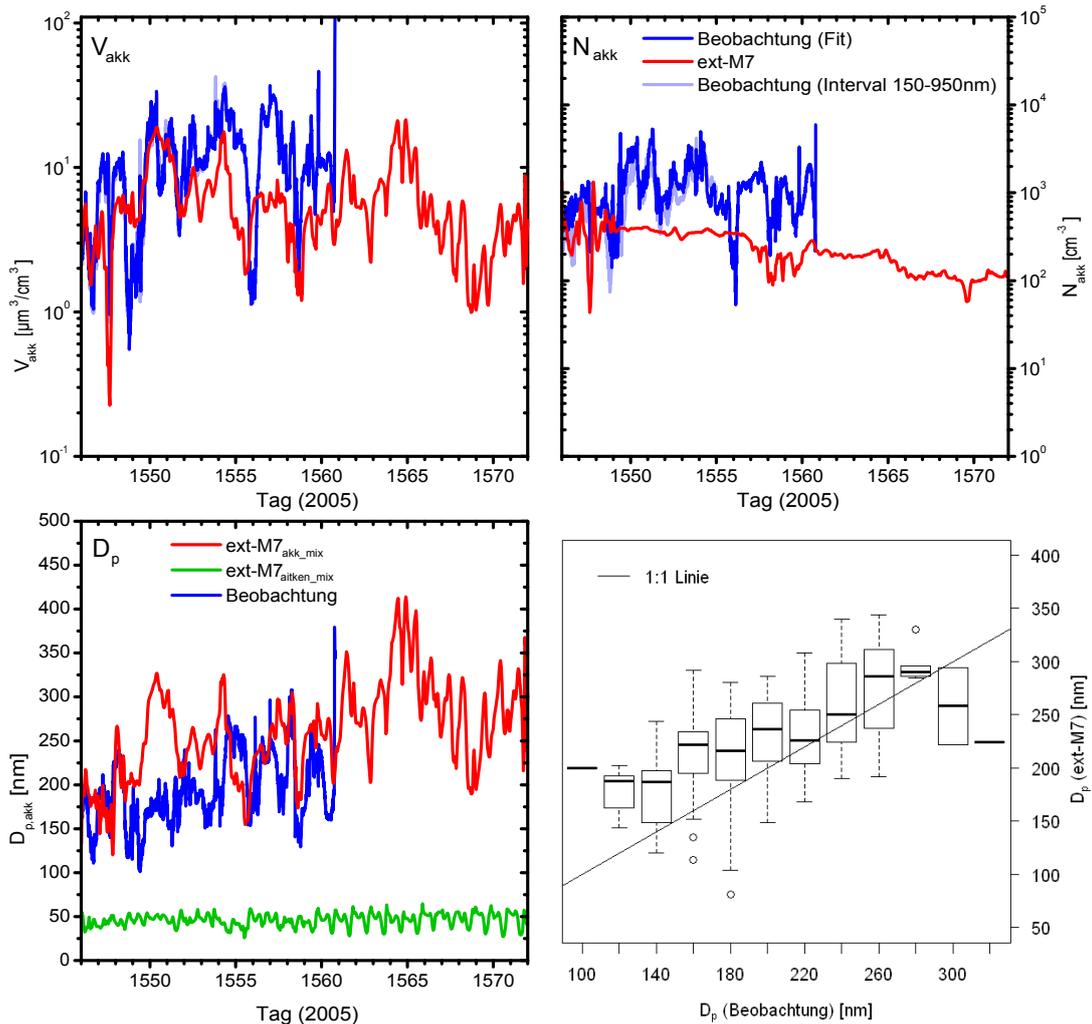


Abbildung 7.8. – R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Bösel. Dargestellt sind Partikelanzahl und -volumen im Akkumulationsmode (N_{akk} , V_{akk}) und der trockene mittlere Durchmesser des Akkumulations- und Aitkenmodes (D_p). Tag 1544 (Tagesnummer seit 1.1.2005) entspricht hierbei dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009. Außerdem ist ein Boxplot als Vergleich des Partikeldurchmessers im Akkumulationsmode zwischen Beobachtung und ext-M7 zu sehen. Dargestellt sind die Mediane, Quartile (Boxen) sowie Minimum- und Maximumwerte (Fehlerbalken). Die Kreise stellen evtl. auftretende Ausreißer dar.

An der Station Bösel (Abb. 7.8) waren für den Vergleichszeitraum leider nicht komplett Beobachtungsdaten verfügbar. Für die erste Hälfte der Episode allerdings stimmten das experimentell bestimmte und das simulierte Partikelvolumen im Akkumulationsmode gut überein. Dies gilt sowohl für den zeitlichen Verlauf als auch größtenteils für die absoluten Konzentrationen. Der Vergleich der Partikelanzahl fiel ähnlich zu Melpitz aus: Am Anfang der Vergleichsepisode stimmte die simulierte Partikelanzahl für einige Tage sehr gut mit der gemessenen Konzentrationen überein. Auch hier fiel

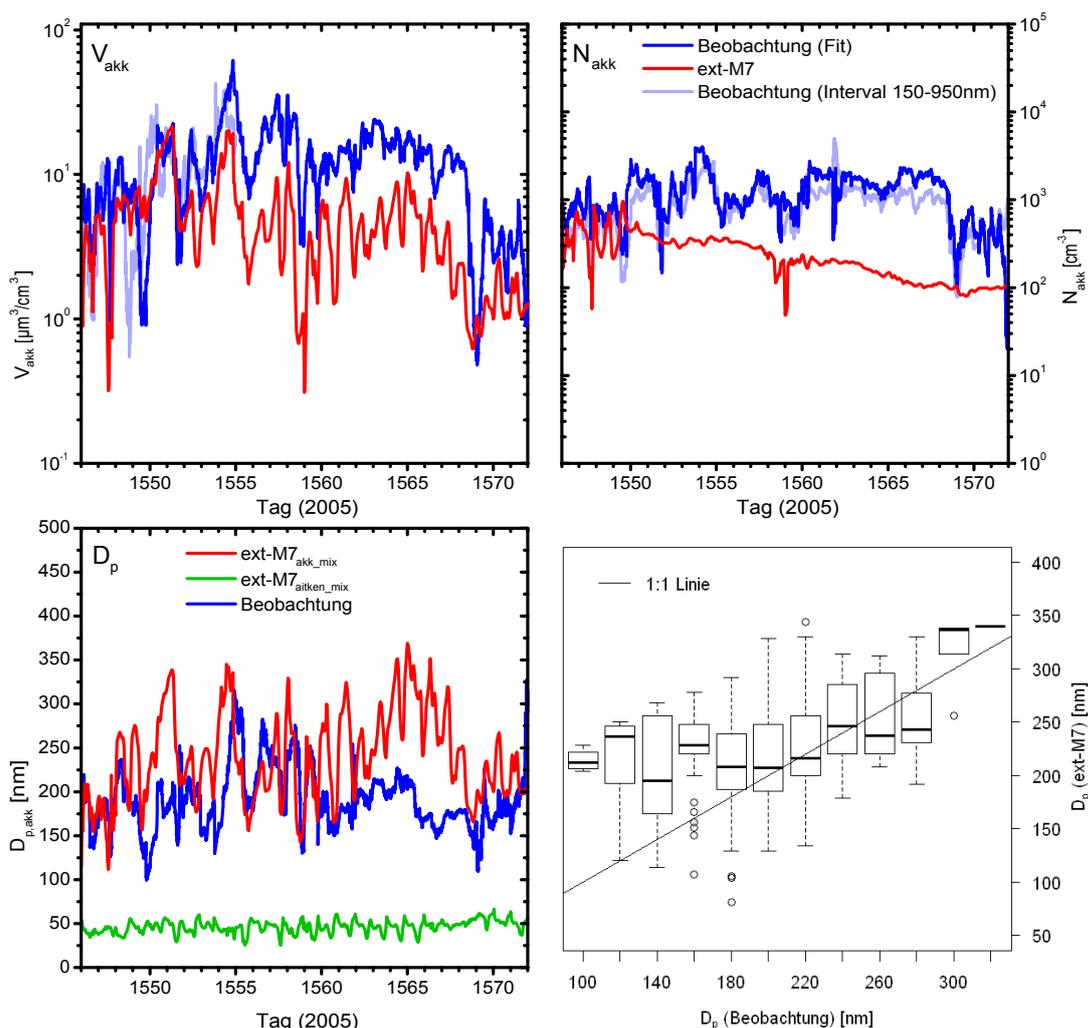


Abbildung 7.9. – R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Waldhof. Dargestellt sind Partikelanzahl und -volumen im Akkumulationsmode (N_{akk} , V_{akk}) und der trockene mittlere Durchmesser des Akkumulations- und Aitkenmodes (D_p). Tag 1544 (Tagesnummer seit 1.1.2005) entspricht hierbei dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009. Außerdem ist ein Boxplot als Vergleich des Partikeldurchmessers im Akkumulationsmode zwischen Beobachtung und ext-M7 zu sehen. Dargestellt sind die Mediane, Quartile (Boxen) sowie Minimum- und Maximumwerte (Fehlerbalken). Die Kreise stellen evtl. auftretende Ausreißer dar.

die Anzahlkonzentration über den gesamten Zeitraum hinweg wieder ab, so dass die realen Konzentrationen unterschätzt wurden. Für die Zeit des Frontdurchganges am 18./19.4.2009 (Tag 1568/69) ist aufgrund der fehlenden Beobachtungsdaten leider kein Vergleich möglich. Der Partikeldurchmesser wurde im Modell zeitweise etwas überschätzt (9.-11.4., Tag 1549-1551), lag aber generell auf einem realistischen Niveau. Die zeitlichen Verläufe wurden bis auf diesen Zeitraum von ca. drei Tagen gut wiedergegeben, der simulierte Durchmesser stieg jedoch auch hier in der zweiten Hälfte

der Vergleichsepisode etwas an. Die verglichen mit Melpitz bessere Übereinstimmung der Partikeldurchmesser findet man auch im Boxplot wieder. Die Schwankungsbreite wurde diesmal genauer wiedergegeben, die Boxen liegen deutlich näher an der 1:1 Linie.

Für die Station Waldhof (Abb. 7.9) war die Übereinstimmung des Partikelvolumens für den Anfangsbereich der Episode (also etwa bis Tag 1555, entspricht dem 5.4.) sehr gut. Danach wurde das Partikelvolumen etwas unterschätzt, der zeitliche Verlauf aber dennoch gut wiedergegeben. Der Frontdurchgang vom 18./19.4.2009 war hier erstmals auch in den Messungen deutlich zu erkennen. Dies wurde für den korrekten Zeitpunkt auch im Modell wiedergegeben, allerdings wurde kein derartig schneller Abfall der Konzentration simuliert, wie dies real zu beobachten war. Auch in Waldhof fiel der Vergleich der Partikelanzahl ähnlich zu den beiden vorherigen Stationen aus: die vier Tage zu Beginn der Episode zeigten eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtungsdaten, danach trat wiederum ein Absinken der Werte über die restliche Vergleichsdauer auf, was zu einer Unterschätzung der Partikelanzahl führte. Auch der zeitliche Verlauf konnte nur für den Beginn der Episode vom Modell reproduziert werden. In der ersten Hälfte der Episode (bis etwa Tag 1560, 10.4.) stimmten sowohl die absoluten Werte als auch der zeitliche Verlauf zwischen experimentell bestimmtem und simuliertem Partikeldurchmesser des Akkumulationsmodes sehr gut überein. Zum Ende des Vergleichszeitraumes wurde der Partikeldurchmesser auch in Waldhof vom Modell wieder deutlich überschätzt. Auch der Boxplot zeigt eine bessere Übereinstimmung des Schwankungsbereichs der Partikelgröße im Vergleich zur Station Melpitz: So befinden sich für fast alle Kanäle die Boxen bzw. die Fehlerbalken auf der 1:1 Linie. Dennoch wurden auch hier die Werte für kleine Partikel über- und für große Partikel unterschätzt.

In den Abbildungen 7.10 und 7.11 sind die Vergleiche der PM_{10} und PM_1 (also dem Akkumulationsmode) Gesamtmassenkonzentrationen sowie der Einzelmassen der wichtigsten chemischen Aerosolkomponenten an der Station Melpitz dargestellt. Für die anderen beiden Vergleichsstationen waren leider keinerlei Beobachtungsdaten der chemische Partikelzusammensetzung verfügbar. Im Modell wurde die Gesamtmasse von PM_{10} unterschätzt, wobei der zeitliche Verlauf gut reproduziert werden konnte. PM_1 wurde leicht unterschätzt. Der zeitliche Verlauf lässt sich kaum vergleichen, da die Beobachtungsdaten von PM_1 leider nur für jeden sechsten Tag vorhanden waren. Der zeitliche Verlauf des Nitratanteils im PM_{10} stimmte bis auf zwei Tage gegen Ende der Vergleichsepisode (1564/65, 14./15.4.) gut überein, die absoluten Werte wurden jedoch etwas unterschätzt. Dies gilt in ähnlicher Weise auch für den Ammoniumanteil im PM_{10} . Der Nitrat- und auch der Ammoniumanteil im PM_1 wurde vom Modell deutlich überschätzt (um bis zu Faktor fünf), wobei auch hier der Vergleich aufgrund der nur wenigen verfügbaren Beobachtungsdaten schwierig ist. Der Sulfatanteil im PM_{10} stimmte gut überein und auch der zeitliche Verlauf des Sulfatanteils im PM_1

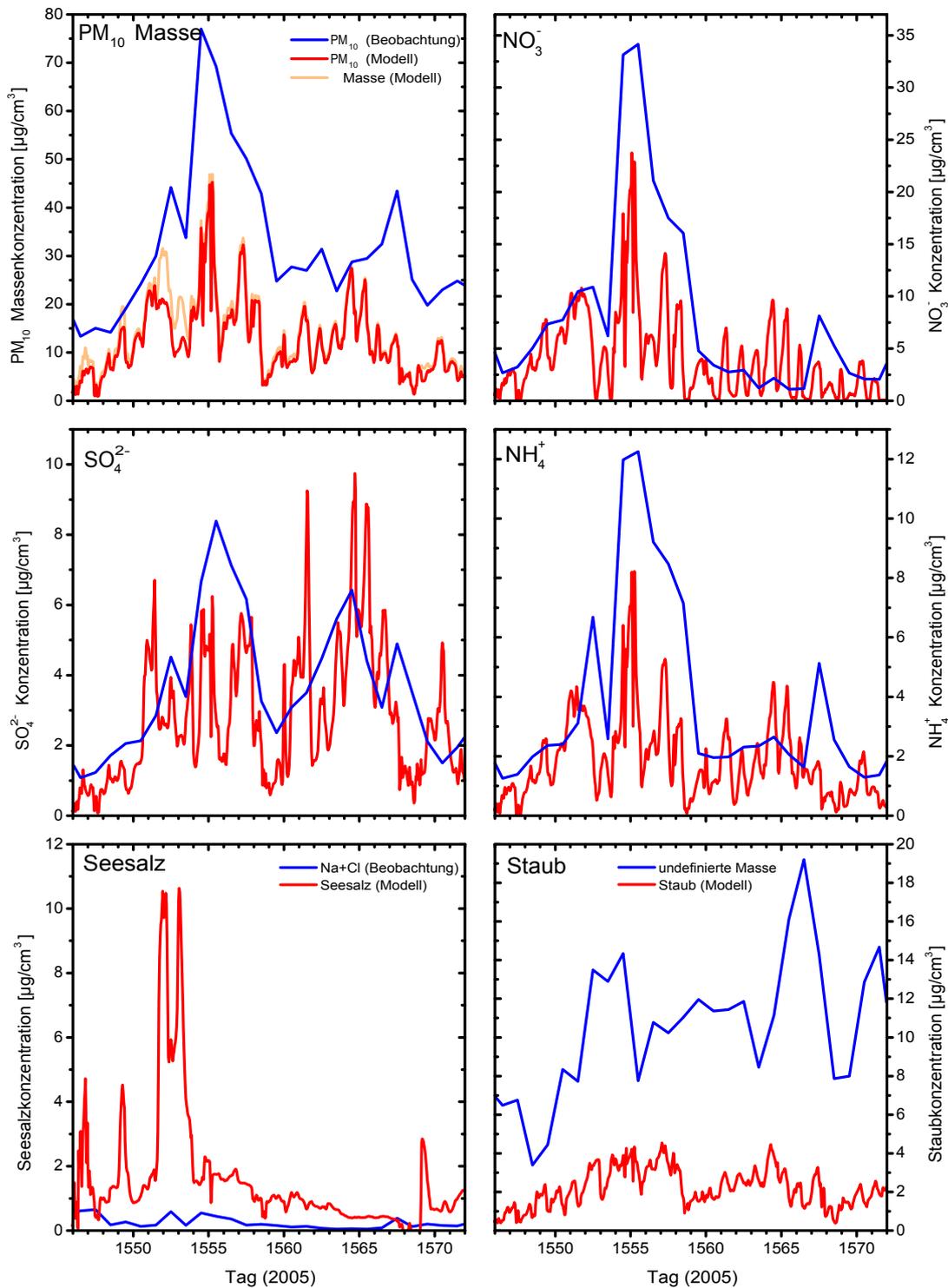


Abbildung 7.10. – R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten: chemische Zusammensetzung von PM₁₀ für die Station Melpitz. Dargestellt sind die Gesamtmassenkonzentration PM₁₀ sowie die Einzelmassen der Komponenten NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺, Seesalz und Staub. Tag 1544 (Tagesnummer seit 1.1.2005) entspricht hierbei dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009.

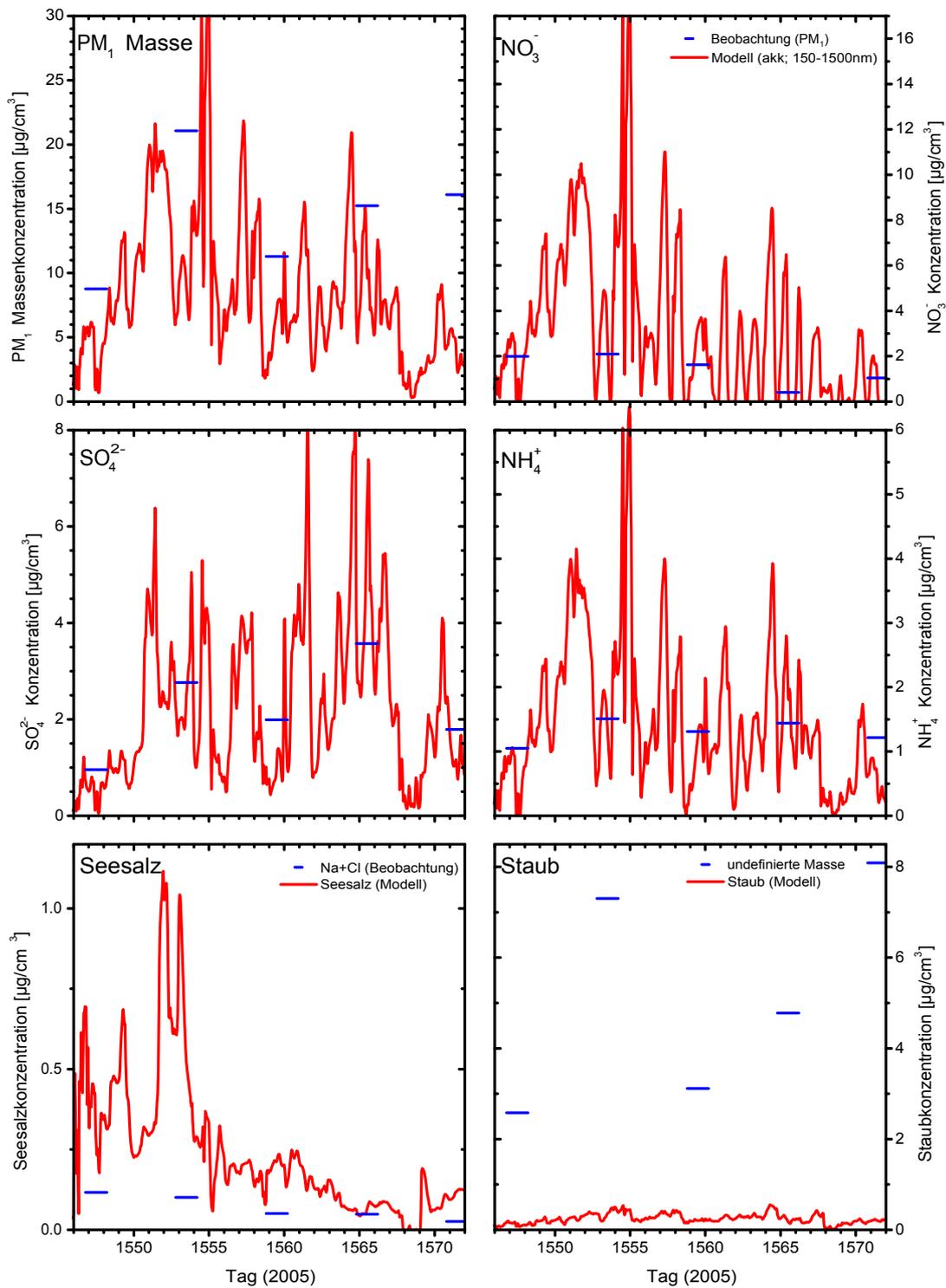


Abbildung 7.11. – R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten: chemische Zusammensetzung von PM₁ für die Station Melpitz. Dargestellt sind die Gesamtmassenkonzentration PM₁ sowie die Einzelmassen der Komponenten NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺, Seesalz und Staub. Tag 1544 (Tagesnummer seit 1.1.2005) entspricht hierbei dem 25.3., Tag 1571 dem 21.4.2009.

war zufriedenstellend, auch wenn die absoluten Konzentrationen etwas überschätzt wurden. Der Seesalzanteil wurde im Modell sowohl für PM_{10} als auch für PM_1 deutlich (um einen Faktor bis zu 10) überschätzt. In den Beobachtungsdaten konnte keine zeitliche Variation über die Vergleichsepisode beobachtet werden, im Modell hingegen wurde Anfang April eine deutliche Population von Seesalzpartikeln simuliert. Dies könnte mit der Tatsache zusammenhängen, dass sich zu dieser Zeit vorübergehend wiederum eine zonale Strömung einstellte und somit im Modell marines Aerosol vom Atlantik nach Deutschland transportiert wurde. Der Staubanteil wurde vom Modell für PM_{10} und PM_1 deutlich unterschätzt. Dies kann jedoch auch damit zusammenhängen, dass die experimentell bestimmten Daten ungenau sind. Die als undefiniert deklarierte Masse könnte außer Staub auch noch weitere nicht untersuchte Komponenten oder Artefakte enthalten, denn sie wird als Differenz zwischen der Gesamtmasse und den untersuchten Einzelkomponenten bestimmt. Daher ist sie in mehrfacher Weise anfällig für Messunsicherheiten. Im Modell hingegen wird hier nur reiner Mineralstaub betrachtet.

Für den letzten Modelllauf R4 sind zusätzlich zu den Zeitreihenvergleichen in Tabelle 7.3 die Korrelationskoeffizienten R^2 und die mittleren relativen Abweichungen des Modells von der jeweiligen Messung MNB (*mean normalized bias*) aufgelistet. Zum besseren Vergleich der einzelnen Modellläufe untereinander findet sich im Anhang jeweils eine weitere Tabelle mit den Korrelationskoeffizienten und MNB Werten aller Modellläufe (C.2) sowie den mittleren Konzentrationen der Beobachtungsdaten und aller Modellläufe R1 bis R4 (C.1). MNB wurde beispielsweise von Boylan and Russell [2006] definiert als

$$MNB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\frac{C_m - C_o}{C_o} \right). \quad (7.1)$$

Dies entspricht der Abweichung zwischen Modell und Messung für jedes Modell-Messung-Datenpaar (C_m bzw. C_o), normalisiert mit dem jeweiligen Messwert (C_o), bevor dann der Mittelwert gebildet wird. In der Tabelle hervorgehoben sind Werte von $R^2 > 0,4$ sowie von $-0,3 < MNB < 0,3$, was einer Abweichung des Modells von maximal 30 % zur Messung entspricht. Aus dieser Übersicht wird deutlich, dass das Aerosol-Mikrophysik-Modul nach wie vor Probleme hat, den realen Zustand des bodennahen Aerosols abzubilden. Korrelationen waren zum Teil gar nicht vorhanden (z.B. bei Partikelanzahl, Partikeldurchmesser, Seesalzmasse), zum Teil eher mäßig (z.B. Partikelvolumen). Die mittlere Abweichung von den realen Messungen war teilweise beträchtlich (z.B. Seesalz- oder Staubmasse), teilweise aber auch schon geringer als 30 % (Partikeldurchmesser an allen Stationen). Dies deutet darauf hin, dass die Beschreibung des Aerosols nach wie vor verbessert werden muss und stellt gleichzeitig den Nutzen einer solchen Vergleichsstudie heraus.

Ursachen und damit Ansatzpunkte für zukünftige Verbesserungsmöglichkeiten liegen hier beispielsweise in der Beschreibung des Mineralstaubes. So werden in der

Tabelle 7.3. – Korrelationskoeffizienten R^2 und mittlere relative Abweichung MNB zwischen Modell und Messung für Modelllauf R4. In Fettdruck sind Werte von $R^2 > 0,4$ bzw. $-0,3 < \text{MNB} < 0,3$ (entspricht einer maximalen Abweichung des Modells von $\pm 30\%$ zur Messung) hervorgehoben.

Parameter	R^2			MNB		
	Melpitz	Bösel	Waldhof	Melpitz	Bösel	Waldhof
PM ₁₀ ¹⁾	0,46	0,16	0,34	-0,57	-0,24	-0,21
N_{tot}	0	0,01	0	-0,62	-0,64	-0,62
V_{tot}	0,44	0,26	0,29	-0,42	0,43	-0,17
N_{akk}	0,02	0	0	1,74	3,64	1,03
V_{akk}	0,26	0,06	0,3	-0,57	-0,17	-0,45
$D_{p,akk}$	0	0,09	0,05	0,22	0,16	0,22
PM ₁₀ ²⁾	0,57			-0,56		
Sulfat ³⁾	0,37			-0,23		
Nitrat ³⁾	0,67			-0,26		
Ammonium ³⁾	0,47			-0,42		
Seesalz ³⁾	0,05			6,57		
Staub ³⁾	0,09			-0,76		
PM ₁ ²⁾	0,44			-0,53		
Sulfat ⁴⁾	0,91			-0,31		
Nitrat ⁴⁾	0,02			0,55		
Ammonium ⁴⁾	0,09			-0,34		
Seesalz ⁴⁾	0,14			2,57		
Staub ⁴⁾	0,27			-0,72		

1) Stundenmittel (TEOM)

2) Tagesmittel (Gravimetrie)

3) Massenanteil in PM₁₀

4) Massenanteil in PM₁

hier angewendeten Modellversion keine Staubaufwirbelungen, Emissionen aus der Landwirtschaft oder Ferntransport über die Modellränder hinweg (Saharastaub) berücksichtigt. Seesalz wird im Modell stark überschätzt, wo eine Verbesserung der Parametrisierung des Seesalz-Emissionsschemas (z.B. ein Wechsel der Parametrisierung von Gong [2003] zu Long et al. [2011]) ansetzen könnte. Zur Verbesserung der simulierten Partikelanzahl könnte die Verwendung von Emissionsdaten mit Informationen über die emittierte Partikelanzahl einen Beitrag leisten. Die Ergebnisse von Luftqualitäts- und auch Klimamodellen müssen daher sehr kritisch interpretiert werden, da viele Prozesse in der Atmosphäre (z.B. der direkte Strahlungsantrieb oder Wolken- und Niederschlagsbildung) stark vom Aerosol beeinflusst werden und für deren Simulation daher eine akkurate Repräsentation des Aerosols in den Modellen die Grundlage bildet.

7.5. Fazit

Ziel der vorliegenden Arbeit war eine objektive Bewertung der Herkunft und des Zustandes der an einem Messort ankommenden Luftmasse und der damit verbundenen Schadstoffniveaus. Die verschiedenen Quellbeiträge zu den beobachteten Aerosolbelastungen sollten quantifiziert werden. Eine präzise Zuordnung der beobachteten extrem hohen Schadstoffkonzentrationen zu bestimmten lokalen Verursachern oder großräumigen Prozessen hat sich wegen der diffusen Verteilung der Quellen und der Langlebigkeit bestimmter Schadstoffkomponenten als generell schwierig erwiesen. Prinzipiell bieten sich für solche Quell-Rezeptor-Studien atmosphärische Transport-Modelle an, was auch der Ansatzpunkt dieser Arbeit war. Das regionale Modell mit der verwendeten Auflösung (die auf die Beschreibung regionaler Prozesse abzielte) war erwartungsgemäß nicht in der Lage, die kleinräumige urbane Skala aufzulösen. An erster Stelle wurde eine Vielzahl von Langzeitmessdaten für diese Bilanzierung herangezogen. Damit konnten lokale Verkehrseffekte genauso wie regionale meteorologische Einflüsse bei verschiedenen Wetterlagen charakterisiert werden. Deutlich wurde hierbei, dass durch meteorologisch günstige Bedingungen sowohl lokal als auch regional emittierte Schadstoffe in Bodennähe akkumulieren oder aber sowohl vertikal als auch horizontal verteilt werden können. Daraus ergibt sich der Schluss, dass nur eine Kombination aus kommunalen, nationalen und internationalen Maßnahmen effektiv zur Reduzierung von sowohl lokalen als auch regionalen Schadstoffniveaus führen können. Zu bedenken ist außerdem, dass (wie oben beschrieben) der Transport von regionalen Schadstoffen deutlich zur lokalen Belastung beiträgt, andererseits aber die lokal emittierten Schadstoffe eben genau diesen Transportanteil an anderen Orten ausmachen. Mit anderen Worten: eine Reduktion von lokalen Schadstoffemissionen trägt folglich nicht nur in der betreffenden Kommune sondern in der gesamten Region zu geringeren Schadstoffbelastungen bei. Als Erweiterung zur hier beschriebenen messdatenbasierten Quantifizierung könnte dafür das verwendete Transportmodell auf regionaler Skala angewendet werden. Ebenso ist eine Prognose von kritischen Wetterlagen für erhöhte Schadstoffniveaus für einige (wenige) Tage möglich, die die Basis für kurzfristige, effektive Minderungsmaßnahmen bilden könnten. Partikelkonzentrationen und meteorologische Bedingungen beeinflussen sich aber, wie gezeigt, gegenseitig, so dass für eine Prognose des einen die akkurate Beschreibung des anderen Voraussetzung ist. Und genau dort setzte diese Arbeit mit der beschriebenen Modellvalidierung an, denn die Kenntnis darüber, wie genau ein Modell die Realität abbilden kann, bildet die Grundlage der gesamten Prognose. Dem hier vorgestellten systematischen Modellvergleich könnte also in Zukunft eine modellbasierte Abschätzung der einzelnen Beiträge aus unterschiedlichen Quellregionen an der lokalen Anzahl- sowie Massenkonzentration atmosphärischer Partikel und damit ein Prognosetool für bedenkliche Schadstoffkonzentrationen folgen.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Seit dem Jahr 2010 gelten in der EU die durch die Richtlinie 96/26/EC [1996] festgelegten Grenzwerte für die PM_{10} Tagesmittelkonzentration von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$, welche an maximal 35 Tagen im Jahr überschritten werden dürfen. Bereits wenige Monate nach Beginn der Gültigkeit traten allerdings an vielen Messstationen Überschreitungen dieses Grenzwertes auf, was zu kontroversen Diskussionen in den Medien und vielfältigen Minderungsmaßnahmen führte. Das Ziel der vorliegenden Arbeit war nun eine objektive Bewertung der Herkunft und des Zustandes der an einem Messort ankommenden Luftmasse und der damit verbundenen Schadstoffniveaus. Die Beiträge verschiedener Quellen zu den beobachteten Aerosolbelastungen sollten quantifiziert werden. Aufgrund der diffusen Verteilung der Quellen und der Langlebigkeit bestimmter Schadstoffkomponenten ist eine präzise Zuordnung der beobachteten extrem hohen Schadstoffkonzentrationen zu bestimmten lokalen Ursachen oder großräumigen Prozessen schwierig. Prinzipiell bieten sich für solche Quell-Rezeptor-Studien atmosphärische Transport-Modelle an, was auch der ursprüngliche Ansatzpunkt dieser Arbeit war. Es stellte sich jedoch heraus, dass das hier verwendete regionale Modell nicht in der Lage war, die kleinräumige urbane Skala aufzulösen. Daher wurde eine Vielzahl von Langzeitmessdaten für diese Bilanzierung herangezogen.

Im ersten Teil der Arbeit wurden PM_{10} und $PM_{2,5}$ Messdaten aus fünf Jahren und an drei verschiedenen Beobachtungsstationen unterschiedlichen Typs (verkehrsnahe, urban, ländlich) in und um Leipzig in Bezug auf PM_{10} Grenzwertüberschreitungen untersucht. Um die Betrachtung nur einer Kommune auf die regionale Ebene zu erweitern, wurden im zweiten Teil der Arbeit analog fünf verschiedene Regionen deutschlandweit betrachtet, wobei jeweils mehrere Stationen jedes Typs herangezogen wurden. Für jede der beiden Untersuchungen wurde eine Clusteranalyse von Rückwärtstrajektorien jedes Tages im Beobachtungszeitraum (2005 bis 2009) durchgeführt, in der spezifische Wetterlagen unterschieden wurden und diesen dann die einzelnen Messtage mit den zugehörigen Schadstoffkonzentrationen zugeordnet wurden. Dies lieferte eine Zuordnung der PM_{10} Grenzwertüberschreitungen auf bestimmte Luftmassentypen, die durch

bestimmte Anströmungsrichtungen und atmosphärische Schichtungen charakterisiert wurden. Insbesondere die Stabilität der Schichtung schien durch Akkumulation von sowohl lokal als auch regional emittierten Schadstoffen unter der Inversionschicht ein entscheidender Faktor für die Entstehung von außergewöhnlich hohen PM_{10} Massenkonzentrationen in Verkehrsnähe zu sein. Die Ergebnisse der beiden Teile waren teilweise ähnlich, teilweise jedoch auch durchaus differenziert aufgrund der räumlichen Entfernung der Regionen untereinander. Im Einzelnen zerfielen diese PM_{10} Grenzwertüberschreitungen auf im Wesentlichen vier der insgesamt neun bzw. zwölf Trajektoriencluster. Zur Interpretation können mehrere Einflussfaktoren herangezogen werden:

1. Temperaturinversionen begrenzen das nahe der Oberfläche zur vertikalen Dispersion verfügbare Luftvolumen; dies führt direkt zu einer Anreicherung von Feinstaub in der Bodenschicht sowohl auf lokaler als auch synoptischer Skala.
2. Bei Temperaturinversionen herrschte sehr geringe Windgeschwindigkeit am Boden. Dies verringert in direktem Maße die horizontale Verdünnung der Emissionen und führt somit zur Anreicherung der Feinstaubkonzentrationen in Bodennähe.
3. Temperaturinversionen treten vor allem in der kalten Jahreszeit auf, insbesondere bei tiefer Temperatur und unter dem Einfluss von Hochdruckwetterlagen. Die tiefe Temperatur führt zu vermehrten PM Emissionen aufgrund von Wärmezeugung (Haushalte, Industrie). Dieser Effekt erhöht zusätzlich zu den Effekten 1. und 2. die bodennahe Feinstaubkonzentration.
4. Temperaturinversionen sind klimatisch wahrscheinlicher bei Anströmung aus Festlandsgebieten als aus Meeresgebieten. In Festlandsluft ist die Hintergrundbelastung an PM aber aufgrund von höheren anthropogenen Emissionen und geringerer Auswaschung von PM durch Niederschlag (nasse Deposition) durch tendenziell trockenere Festlandsluft höher.

Der Grobstaubanteil an der verkehrsnahen Messstation war deutlich höher als im regionalen Hintergrund. Dies deutet auf die Bedeutung von Emissionen grober Partikel durch den örtlichen Straßenverkehr hin, vermutlich verursacht durch die Aufwirbelung von Straßenstaub, Brems- und Reifenabrieb. Die nicht-auspuffbedingten Emissionen des Straßenverkehrs sind jedoch auch relevant für Mensch und Umwelt, da sie Spuremetalle wie Blei, Zink, Kupfer, Cadmium, Barium oder Antimon enthalten [Sternbeck et al. 2002], welche ebenfalls mit negativen Gesundheitsauswirkungen in Verbindung gebracht werden. Allerdings ist nach wie vor nicht vollständig geklärt, welche Maßnahmen wirklich effektiv zur Reduktion vorhandener PM_{10} Massenkonzentrationen oder der darin enthaltenen gesundheitsgefährdenden Komponenten beitragen.

Es konnte gezeigt werden, dass die Problematik der Grenzwertüberschreitungen in den westlichen Regionen weniger ausgeprägt ist als in den östlichen Regionen. Gründe hierfür sind in der Nähe der westlichen Regionen zum Meer und damit einer höheren Wahrscheinlichkeit von maritimen, wenig belasteten Luftmassen zu sehen. Hier spielen nur Quellgebiete in West- und Mitteleuropa eine Rolle für den regionalen PM_{10} Anteil. In den östlichen Regionen tritt hingegen auch der Feinstaubeintrag aus Quellgebieten in östlicher Richtung hinzu. Auch bei der regionalen Betrachtung tragen westliche bis südwestliche Anströmungen signifikant zu hohen PM_{10} Massenkonzentrationen bei, die winterlichen, stagnierenden und östlichen Luftmassen dominieren allerdings die Gesamtanzahl der Überschreitungstage. Die Ergebnisse lassen den Schluss zu, dass in allen betrachteten Regionen und unter günstigen meteorologischen Bedingungen lokale und regionale Quellen gleichermaßen für die Überschreitungstage an verkehrsnahen Stationen verantwortlich sind. Die meteorologischen Bedingungen können dann der kritische Faktor für Verdünnung einerseits oder Akkumulation der emittierten Partikel in Quellnähe andererseits sein und damit die Entstehung von Grenzwertüberschreitungen beeinflussen. Daraus ergibt sich der Schluss, dass nur eine Kombination aus kommunalen, nationalen und internationalen Maßnahmen effektiv zur Reduzierung von sowohl lokalen als auch regionalen Schadstoffniveaus und damit zu einer Vermeidung von Grenzwertüberschreitungen führen können. Außerdem ist zu bedenken, dass der Transport von regional emittierten Schadstoffen deutlich zur lokalen Belastung beiträgt, andererseits aber die lokal emittierten Schadstoffe eben genau diesen Transportanteil an anderen Orten ausmachen. Mit anderen Worten: eine Reduktion von lokalen Schadstoffemissionen trägt folglich nicht nur in der betreffenden Kommune sondern in der gesamten Region zu geringeren Schadstoffbelastungen bei.

Die Auswertung der PM_{10} Messnetzdaten durch Clusteranalyse lieferten praktisch verwertbare Erkenntnisse zu den Luftmassen bzw. Wetterlagen, die prägend für das Vorkommen von PM_{10} Grenzwertüberschreitungen sind. Diese Methode ist hingegen nur wenig geeignet, ein tiefgreifendes Prozessverständnis für die größen aufgelöste Emission und Prozessierung des regionalen Aerosols zu entwickeln. Aus diesem Grund wurde das Modellsystem COSMO-MUSCAT verwendet, in dem neben PM_{10} auch verschiedene Aerosoltypen mit ihren physikalischen und chemischen Eigenschaften beschrieben werden können. Es besteht aus dem Meteorologie-Modell COSMO, welches mit dem Chemie-Transport-Modell MUSCAT online gekoppelt ist. Für die detaillierte Beschreibung des troposphärischen Aerosols wurde das Aerosol-Mikrophysik-Modul ext-M7 implementiert. Zukünftig ist auch eine Prognose von kritischen Wetterlagen für erhöhte Schadstoffniveaus für einige (wenige) Tage denkbar, die die Basis für kurzfristige, effektive Minderungsmaßnahmen bilden könnten. Partikelkonzentrationen und meteorologische Situationen bedingen sich aber, wie gezeigt, gegenseitig, so dass für eine Prognose des einen die akkurate Beschreibung des anderen Voraussetzung ist.

Und genau dort setzte der dritte Teil dieser Arbeit an, denn diese Art Abschätzung ist nur dann sinnvoll, wenn das verwendete Modell in der Lage ist, das Verhalten und den Transport des Aerosols realistisch abzubilden. Daher ist eine Validierung des entsprechenden Modells mit Messdaten im Vorfeld solcher Modellstudien unabdingbar denn die Kenntnis darüber, wie genau ein Modell die Realität abbilden kann, bildet die Grundlage der gesamten Prognose.

In einem ersten Schritt wurde die Parametrisierung der Emissionen, die nur als Jahressummen der Gesamtmasse vorliegen, optimiert, in dem die Aufspaltung der Gesamtmassen in einzelne Komponenten und Größenbereiche an die in der Literatur gefundenen Werte angeglichen wurde. Für den Vergleich zwischen Modellsimulation und Messdaten wurde eine Vergleichsepisode von vier Wochen im Frühjahr 2009 ausgewählt (25.3. bis 20.4.2009) und Simulationen von Aerosolmoden und ihren Eigenschaften (Partikelmasse, -anzahl, -größe und chemische Zusammensetzung) für diese Episode erstellt. Anschließend wurden die Ergebnisse an drei verschiedenen Standorten in Deutschland mit experimentellen Daten verglichen. Die Grundlage jeder Simulation des Schadstofftransports bildet die genaue Abbildung der meteorologischen Bedingungen, welche als erstes mit Messdaten verglichen wurden. Hierbei ergab sich eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und Realität. Der Vergleich der räumlichen Verteilung von PM_{10} über die Dauer der Vergleichsepisode ergab generell ebenfalls eine gute Übereinstimmung, jedoch waren teilweise auch erhebliche Unterschiede aufgrund von Unsicherheiten in der Lage von Luftmassengrenzen zu verzeichnen.

Anschließend wurden die physikalischen Aerosolparameter Anzahl (N) und Volumen (V) im gesamten Größenbereich und im Akkumulationsmode verglichen. Hierfür wurden aus den gemessenen Partikelgrößenverteilungen die jeweiligen Integrale aus den entsprechenden Größenintervallen berechnet und mit den Ergebnissen des Modells verglichen. Das Partikelvolumen stimmte relativ gut überein, die Partikelanzahl wurde hingegen deutlich überschätzt. Daraus ergab sich die Frage nach dem Verhältnis des mittleren Partikeldurchmessers D_p , der sich aus der Partikelmasse und -anzahl ergibt. Durch Kurvenanpassung wurden die Partikeldurchmesser der physikalischen Moden aus den gemessenen Partikelgrößenverteilungen bestimmt. Für die log-Normalmoden wurde insbesondere die selbe Standardabweichung σ verwendet, die auch im Modell festgelegt war. Für die letzten beiden Modellläufe wurde außerdem die chemische Zusammensetzung von PM_{10} und PM_1 an der Station Melpitz verglichen.

Insbesondere die Korrelationen der Tagesmittelkonzentrationen von PM_{10} , PM_1 , Sulfat, Nitrat und Ammonium fielen zufriedenstellend aus. Bei PM_{10} wurden die Gesamtmasse sowie die Massen aller Einzelkomponenten außer Seesalz unterschätzt, wobei Sulfat und Nitrat bereits innerhalb von 30 % Abweichung lagen. Die Unterschätzung der PM_{10} Massenkonzentration war jedoch lokal unterschiedlich. In Melpitz wurden im Mittel weniger als 50 % der tatsächlichen Masse simuliert, in Waldhof hingegen fast 80 %. Dies deutet auf den Einfluss der verwendeten Emissionsdaten hin,

da Melpitz durch seine Nähe zu Leipzig deutlich stärker von urbanen Emissionen beeinflusst wird als Waldhof, was sich im Naturpark Lüneburger Heide befindet.

Auch die Gesamtanzahl sowie das Gesamtvolumen der Aerosolpartikel und das Volumen im Akkumulationsmode wurden um einen Faktor von ca. 2 unterschätzt, die Partikelanzahl im Akkumulationsmode jedoch um einen Faktor zwischen 2 und 4 überschätzt. Der Partikeldurchmesser lag für den letzten Lauf an allen drei Stationen innerhalb von 30 % Abweichung. Für alle verglichenen Parameter fielen die Korrelationen zwischen Modellergebnissen und Messdaten für die stündlichen Werte jedoch relativ schlecht aus. Der Vergleich zeigt auch, dass insbesondere die Partikelanzahl und der Partikeldurchmesser beim letzten Modelllauf besser beschrieben wurden als in den ersten Modellläufen. Im Vergleich zum ersten Lauf gilt dies auch für das Partikelvolumen, hier unterschieden sich die letzten Läufe untereinander jedoch kaum beziehungsweise zeigte sich eine Abweichung in unterschiedliche Richtungen.

Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass nach wie vor Probleme bei der Beschreibung der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften bestehen, die in detaillierten Sensitivitätsstudien hinsichtlich des Modellsetups oder Veränderungen einzelner Parametrisierungen untersucht werden sollten. Die Größenordnungen der verglichenen Parameter können vom Modell abgebildet werden, dennoch müssen Modellergebnisse nach wie vor mit Vorsicht interpretiert werden, insbesondere hinsichtlich von Prozessen, bei denen die Partikelanzahl eine Rolle spielen, da hier große Unsicherheiten im Modell gezeigt werden konnten. Die ungenauen Emissionsdaten stellen das Hauptproblem bei der Simulation von Schadstoffausbreitung dar. Aus diesem Grund sollten für zukünftige Modellstudien (soweit verfügbar) detailliertere Emissionsdaten verwendet werden. Zum Verständnis der Entwicklung sowie zur genaueren Simulation von Aerosolkonzentrationen ist auch weiterhin eine bessere Kenntnis von natürlichen und anthropogenen Emissionen wichtig [Pozzoli et al. 2011]. Für Modellstudien ist vorübergehend jedoch auch die Modifikation der vorhandenen Emissionsdaten durch z.B. eine Skalierung der Gesamtemissionen, einzelner Komponenten oder auch räumlich differenziert denkbar.

Außerdem wäre eine Ausweitung des Modellvergleiches bezüglich der aerosoloptischen Dicke AOD mit AERONET Daten oder der vertikalen Verteilung der Aerosolpartikel mit Lidardaten sinnvoll. Für das massenbasierte Schema wurde dies für COSMO-MUSCAT von Meier et al. [2012] vorgestellt, jedoch nicht für die Implementierung von ext-M7. Außerdem könnte dem hier vorgestellten Modellvergleich eine modellbasierte Abschätzung der einzelnen Beiträge aus unterschiedlichen Quellregionen an der lokalen Aerosolkonzentration auf regionaler Skala folgen.

Es wurde gezeigt, dass kritische meteorologischen Bedingungen (hoher Luftdruck, geringe Windgeschwindigkeit und Niederschlagsmengen etc.) der Auslöser für verstärkte Akkumulation von emittierten Partikeln in Quellnähe sein können und damit die Entstehung von Grenzwertüberschreitungen begünstigen. Daraus ergibt sich der

Schluss, dass nur eine Kombination aus kommunalen, nationalen und internationalen Maßnahmen effektiv zur Reduzierung von sowohl lokalen als auch regionalen Schadstoffniveaus und damit zu einer Vermeidung von Grenzwertüberschreitungen führen können. Modellsimulationen könnten ein nützliches Prognosetool ergeben, um kritische meteorologische Situationen und die damit verbundenen extrem hohen und damit bedenklichen Belastungen mit Schadstoffen vorhersagen zu können. Da lokal wenig zur Beeinflussung der regionalen Hintergrundbelastung getan werden kann, ist z.B. ein Warnsystem, wie es für Hitzeepisoden oder Pollenexposition bereits existiert, sinnvoll [Brunekreef and Maynard 2008]. Außerdem wäre eine Vorhersage bedenklicher Situationen nützlich, um effektive Reduktionsmaßnahmen (wie zum Beispiel generelle Geschwindigkeitsbegrenzungen oder Fahrverbote) zu ermöglichen, welche jedoch keine dauerhafte Lösung darstellen können. Hierfür ist jedoch eine umfangreiche Information der Bevölkerung und eine enge Kooperation von Politik und Wissenschaft notwendig.

Literaturverzeichnis

1999/30/EC. Council directive 1999/30/EC of 22 April 1999 relating to limit values for sulfur dioxide, nitrogen dioxide and oxides of nitrogen, particulate matter and lead in ambient air. Official Journal of the European Communities, 1999.

2000/69/EC. DIRECTIVE 2000/69/EC OF THE EUROPEAN PARLIAMENT AND OF THE COUNCIL of 16 November 2000 relating to limit values for benzene and carbon monoxide in ambient air. Official Journal of the European Communities, 2000.

2002/3/EC. DIRECTIVE 2002/3/EC OF THE EUROPEAN PARLIAMENT AND OF THE COUNCIL of 12 February 2002 relating to ozone in ambient air. Official Journal of the European Communities, 2002.

2004/107/EC. DIRECTIVE 2004/107/EC OF THE EUROPEAN PARLIAMENT AND OF THE COUNCIL of 15 December 2004 relating to arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air. Official Journal of the European Communities, 2004.

2008/50/EC. Directive 2008/50/EC of the European Parliament and of the Council of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe. Official Journal of the European Communities, 2008.

39. BImSchV. 39. Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes Verordnung über Luftqualitätsstandards und Emissionshöchstmengen.

96/26/EC. Council directive 96/62/EC of 27 September 1996 on ambient air quality assessment and management. Official Journal of the European Communities, 1996.

S.S. Abdalmogith and R.M. Harrison. The use of trajectory cluster analysis to examine the long-range transport of secondary inorganic aerosol in the UK. *Atmospheric Environment*, 39:6686–6695, 2005.

I.J. Ackermann, H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F.S. Binkowski, and U. Shankar. Modal aerosol dynamics model for europe: Development and first applications. *Atmospheric Environment*, 32(17):2981–2999, 1998.

B.A. Albrecht. Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness. *Science*, 245 (4923):1227–1230, 1989.

- S.M. Almeida, C.A. Pio, M.C. Freitas, M.A. Reis, and M.A. Trancoso. Source apportionment of atmospheric urban aerosol based on weekdays/weekend variability: evaluation of road re-suspended dust contribution. *Atmospheric Environment*, 40: 2058–2067, 2006.
- F. Amato, M. Pandolfi, A. Escrig, X. Querol, A. Alastuey, J. Pey, N. Perez, and P.K. Hopke. Quantifying road dust resuspension in urban environment by Multilinear Engine: A comparison with PMF2. *Atmospheric Environment*, 43:2770–2780, 2009.
- F. Amato, X. Querol, C. Johansson, C. Nagl, and A. Alastuey. A review on the effectiveness of street sweeping, washing and dust suppressants as urban PM control methods. *Science of the Total Environment*, 408:3070–3084, 2010.
- I. Annesi-Maesano, F. Forastiere, N. Kunzli, and B. Brunekref. Particulate matter, science and EU policy. *European Respiratory Journal*, 29(3):428–431, 2007.
- R.W. Atkinson, S.A. Bremner, H.R. Anderson, D.P. Strachan, J.M. Bland, and A. Ponce de Leon. Short-term associations between emergency hospital admissions for respiratory and cardiovascular disease and outdoor air pollution in London. *Archives of Environmental Health*, 54:398–411, 1999.
- J. Baker. A cluster analysis of long range air transport pathways and associated pollutant concentrations within the UK. *Atmospheric Environment*, 44(4):563–571, 2010.
- I. Barmpadimos, C. Hueglin, J. Keller, S. Henne, and A.S.H. Prévôt. Influence of meteorology on PM₁₀ trends and variability in Switzerland from 1991 to 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11:1813–1835, 2011.
- I. Barmpadimos, J. Keller, D. Oderbolz, C. Hueglin, and A.S.H. Prévôt. One decade of parallel fine (PM_{2.5}) and coarse (PM₁₀-PM_{2.5}) particulate matter measurements in Europe: trends and variability. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12:3189–3203, 2012.
- D.C.S Beddows, M. Dall’Osto, and R.M. Harrison. Cluster Analysis of Rural, Urban, and Curbside Atmospheric Particle Size Data. *Atmospheric Environment*, 43(13): 4694–4700, 2009.
- M. Beekmann, A. Kerschbaumer, E. Reimer, R. Stern, and D. Möller. PM measurement campaign HOVERT in the Greater Berlin area: model evaluation with chemically specified particulate matter observations for a one year period. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7:55–68, 2007.
- E. Berge. Transboundary air pollution in Europe. MSC-W Status Rep. 1997, Part 1 and 2, EMEP/MSC-W Rep. 1/97, Norwegian Meteorological Institute, Oslo, Norway, 1997.

- T. Bergman, V.-M. Kerminen, H. Korhonen, K.J. Lehtinen, R. Makkonen, A. Arola, T. Mielonen, S. Romakkaniemi, M. Kulmala, and H. Kokkola. Evaluation of the sectional aerosol microphysics module SALSA implementation in ECHAM5-HAM aerosol-climate model. *Geoscientific Model Development*, 5:845–868, 2012.
- W. Birmili, F. Stratmann, and A. Wiedensohler. Design of a DMA-based size spectrometer for a large particle size range and stable operation. *Journal of Aerosol Science*, 30: 549–553, 1999.
- W. Birmili, A. Wiedensohler, J. Heintzenberg, and K. Lehmann. Atmospheric particle number size distribution in central Europe: Statistical relations to air masses and meteorology. *Journal of Geophysical Research*, 106(D23):32005–32018, 2001.
- W. Birmili, K. Schepanski, A. Ansmann, G. Spindler, I. Tegen, B. Wehner, A. Nowak, E. Reimer, I. Mattis, K. Müller, E. Brüggemann, T. Gnauk, H. Herrmann, A. Wiedensohler, D. Althausen, A. Schladitz, T. Tuch, and G. Löschau. A case of extreme particulate matter concentrations over Central Europe caused by dust emitted over the southern Ukraine. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8:997–1016, 2008.
- W. Birmili, K. Weinhold, S. Nordmann, A. Wiedensohler, G. Spindler, K. Möller, H. Herrmann, T. Gnauk, M. Pitz, J. Cyrys, H. Flentje, C. Nickel, T.A.J. Kuhlbusch, G. Löschau, D. Haase, F. Meinhardt, A. Schwerin, L. Ries, and K. Wirtz. Atmospheric aerosol measurements in the German Ultrafine Aerosol Network (GUAN) Part 1: Soot and particle number size distributions. *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 69-4:137–145, 2009.
- W. Birmili, K. Heinke, M. Pitz, J. Matschullat, A. Wiedensohler, J. Cyrys, H.E. Wichmann, and A. Peters. Particle number size distributions in urban air before and after volatilisation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10:4643–4660, 2010.
- J.W. Boylan and A.G. Russell. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models. *Atmospheric Environment*, 40: 4946–4959, 2006.
- E. Brankov, S.T. Rao, and P.S. Porter. A trajectory-clustering-correlation methodology for examining the long-range transport of air pollutants. *Atmospheric Environment*, 32(9):15225–1534, 1998.
- P. Bruckmann, W. Birmili, W. Straub, M. Pitz, D. Gladtko, U. Pfeffer, H. Hebbinghaus, S. Wurzler, and A. Olschewski. An Outbreak of Saharan dust causing high PM₁₀ levels north of the Alps. *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 68:490–498, 2008.
- E. Brüggemann, T. Gnauk, S. Mertes, K. Acker, R. Auel, W. Wieprecht, D. Müller, J.L. Collet jr., H. Chang, D. Galgon, R. Chemnitzer, C. Rüd, R. Junek, A. Wiedensohler, and H. Herrmann. Schmücke hill cap cloud and valley stations aerosol

- characterisation during FEBUKO (I): Particle size distribution, mass, and main components. *Atmospheric Environment*, 39:4291–4303, 2005.
- B. Brunekreef and R.L. Maynard. A note on the 2008 EU standards for particulate matter. *Atmospheric Environment*, 42:6425–6430, 2008.
- C.M. Buchanan, I.J. Beverland, and M.R. Heal. The influence of weather-type and long-range transport on airborne particle concentrations in Edinburgh, UK. *Atmospheric Environment*, 36(34):5343–5354, 2002.
- J.N. Cape, J. Methven, and L.E. Hudson. The use of trajectory cluster analysis to interpret trace gas measurements at Mace Head, Ireland. *Atmospheric Environment*, 34(22):3651–3663, 2000.
- A. Charron, R.M. Harrison, S. Moorcroft, and J. Booker. Quantitative interpretation of divergence between PM₁₀ and PM_{2.5} mass measurement by TEOM and gravimetric (Partisol) instruments. *Atmospheric Environment*, 38:415–423, 2004.
- A. Charron, R.M. Harris, and P. Quincey. What are the sources and conditions responsible for exceedances of the 24h PM₁₀ limit value ($50\mu\text{g}\text{m}^{-3}$) at a heavily trafficked London site? *Atmospheric Environment*, 41:1960–1975, 2007.
- A. Colette, C. Granier, Ø. Hodnebrog, H. Jakobs, A. Maurizi, A. Nyiri, B. Bessagnet, A. D’Angiola, M. D’Isidoro, M. Gauss, F. Meleux, M. Memmesheimer, A. Mieville, L. Rouil, F. Russo, S. Solberg, F. Stordal, and F. Tampieri. Air quality trends in Europe over the past decade: a first multi-model assessment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11:11657–11678, 2011.
- C. Cuvelier, P. Thunis, R. Vautard, M. Amann, B. Bessagnet, M. Bedogni, R. Berkowicz, J. Brandt, F. Brocheton, P. Builtjes, C. Carnavale, A. Coppalle, B. Denby, J. Douros, A. Graf, O. Hellmuth, A. Hodzic, C. Honoré, J. Jonson, A. Kerschbaumer, F. de Leeuw, E. Minguzzi, N. Moussiopoulos, C. Pertot, V.H. Peuch, G. Pirovano, L. Rouil, F. Sauter, M. Schaap, R. Stern, L. Tarrason, E. Vignati, M. Volta, L. White, P. Wind, and A. Zuber. CityDelta: A model intercomparison study to explore the impact of emission reductions in European cities in 2010. *Atmospheric Environment*, 41: 189–207, 2007.
- J.M.J.A. De Brugh, M. Schaap, E. Vignati, F. Dentener, M. Kahnert, M. Sofiev, V. Huijnen, and M.C. Krol. The European aerosol budget in 2006. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11:1117–1139, 2011.
- A. de Meij, M. Krol, F. Dentener, E. Vignati, C. Cuvelier, and P. Thunis. The sensitivity of aerosol in Europe to two different emission inventories and temporal distribution of emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6:4287–4309, 2006.

- M. De Ruyter de Wildt, H. Eskes, A. Manders, F. Sauter, M. Schaap, D. Swart, and P. van Velthoven. Six-day PM₁₀ air quality forecasts for the Netherlands with the chemistry transport model Lotos-Euros. *Atmospheric Environment*, 45:5586–5594, 2011.
- M.B.A. Dijkema, S.C. van der Zee, B. Brunekreef, and R.T. van Strien. Air quality effects of an urban highway speed limit reduction. *Atmospheric Environment*, 42:9098–9105, 2008.
- F. Dominici, R.D. Peng, M.L. Bell, L. Pham, A. McDermott, S.L. Zeger, and J.M. Samet. Fine Particulate Air Pollution and Hospital Admission for Cardiovascular and Respiratory Diseases. *Journal of the American Medical Association*, 295:1127–1134, 2006.
- S.R. Dorling, T.D. Davies, and C.E. Pierce. Cluster analysis: a technique for estimating the synoptic meteorological controls on air and precipitation chemistry - method and applications. *Atmospheric Environment*, 26A(14):2575–2581, 1992.
- R.R. Draxler and G.D. Hess. Description of the HYSPLIT4 modeling system. *NOAA Technical Memorandum*, ERL:ARL-224, 2004.
- V.A. Dutkiewicz, S. Qureshi, A.R. Khan, V. Ferraro, J. Schwab, K. Demerjian, and L. Husain. Sources of fine particulate sulfate in New York. *Atmospheric Environment*, 38(20):3179–3189, 2004.
- R.C. Easter, S.J. Ghan, Y. Zhang, R.D. Saylor, E.G. Chapman, N.S. Laulainen, H. Abdul-Razzak, L.R. Leung, X. Bian, and R.A. Zaveri. MIRAGE: Model description and evaluation of aerosols and trace gases. *Journal of Geophysical Research*, 109(D20): D20210, 2004. doi: 10.1029/2004JD004571.
- K.L. Ebi and G. McGregor. Climate change, tropospheric ozone and particulate matter, and health impacts. *Environmental Health Perspectives*, 116:1449–1455, 2008. doi: 10.1289/ehp.11463.
- C. Engler, H. Lihavainen, M. Komppula, V.-M. Kerminen, M. Kulmala, and Y. Viisanen. Continuous measurements of aerosol properties at the Baltic Sea. *Tellus*, 59:728–741, 2007a.
- C. Engler, D. Rose, B. Wehner, A. Wiedensohler, E. Brüggemann, T. Gnauk, G. Spindler, T. Tuch, and W. Birmili. Size distributions of non-volatile particle residuals ($D_p < 800\text{nm}$) at a rural site in Germany and relation to air mass origin. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7:5785–5802, 2007b.
- C. Engler, W. Birmili, G. Spindler, and A. Wiedensohler. Analysis of exceedances in the daily PM₁₀ mass concentration ($50 \mu\text{g m}^{-3}$) at a roadside station in Leipzig, Germany. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12:10107–10123, 2012.

- M. Escudero, X. Querol, A. Ávila, and E. Cuevas. Origin of the exceedances of the European daily PM limit value in regional background areas of Spain. *Atmospheric Environment*, 41:730–744, 2007.
- A.J.F. Espinosa, M.T. Rodriguez, F.J.B. de la Rosa, and J.C.J. Sanchez. A chemical speciation of trace metals for fine urban particles. *Atmospheric Environment*, 36: 773–780, 2002.
- A.M. Fiore, V. Naik, D.V. Spracklen, A. Steiner, N. Unger, M. Prather, D. Bergmann, P.J. Cameron-Smith, I. Cionni, W.J. Collins, S. Dalsoren, V. Eyring, G.A. Folberth, P. Ginoux, L.W. Horowitz, B. Josse, J.-F. Lamarque, I.A. MacKenzie, T. Nagashima, F.M. O'Connor, M. Righi, S.T. Rumbold, D.T. Shindell, R.B. Skeie, K. Sudo, S. Szopa, T. Takemura, and G. Zeng. Global air quality and climate. *Chemical Society Reviews*, 41(19):6663–6683, 2012. doi: 10.1039/c2cs35095e.
- C.R. Flechard and D. Fowler. Atmospheric ammonia at a moorland site. I: The meteorological control of ambient ammonia concentrations and the influence of local sources. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 124:733–757, 1998.
- B. Forsberg, H.C. Hansson, C. Johansson, H. Areskoug, K. Persson, and B. Jarvholm. Comparative health impact assessment of local and regional particulate air pollutants in Scandinavia. *Ambio*, 34(1):11–19, 2005.
- J. Gietl, T. Tritscher, and O. Klemm. Size-segregated analysis of PM₁₀ at two sites, urban and rural, in Münster (Germany) using five-stage Berner type impactors. *Atmospheric Environment*, 42:5721–5727, 2008.
- T. Gnauk, E. Brüggemann, K. Müller, R. Chemnitzer, C. Rüd, D. Galgon, A. Wiedensohler, K. Acker, R. Auel, W. Wieprecht, D. Möller, W. Jaeschke, and H. Herrmann. Aerosol characterisation at the FEBUKO upwind station Goldlauter (i): Particle mass, main ionic components, OCEC, and mass closure. *Atmospheric Environment*, 39(23-24):4209–4218, 2005.
- S.L. Gong. A parametrization of sea-salt aerosol source function for sub- and supermicron particles. *Global Biogeochemical Cycles*, 17(4):1097, 2003. doi: 10.1029/2003GB002079.
- T.J. Grahame and R.B. Schlesinger. Evaluating the health risk from secondary sulfates in eastern North American regional ambient air particulate matter. *Inhalation Toxicology*, 17(1):15–27, 2005.
- T.J. Grahame and R.B. Schlesinger. Health Effects of Airborne Particulate Matter: Do We Know Enough to Consider Regulating Specific Particle Types or Sources? *Inhalation Toxicology*, 19:457–481, 2007. doi: 10.1080/08958370701382220.

- G.A. Grell, S.E. Peckham, R. Schmitz, S.A. McKeen, G. Frost, W.C. Skamarock, and B. Eder. Fully coupled "online" chemistry within the WRF model. *Atmospheric Environment*, 39:6957–6975, 2005.
- V. Grützun. *Influence of Aerosol Particles on Deep Convective Clouds: Investigations with the New Model LM-SPECS*. PhD thesis, University of Leipzig, 2008.
- W.D. Hafner, N.N. Solorzano, and D.A. Jaffe. Analysis of rainfall and fine aerosol data using clustered trajectory analysis for National Park sites in the Western US. *Atmospheric Environment*, 41:3071–3081, 2007.
- J.M. Harris, R.R. Draxler, and S.J. Oltmans. Trajectory model sensitivity to differences in input data and vertical transport method. *Journal of Geophysical Research*, 110: D14109, 2005. doi: 10.1029/2004JD005750.
- R.M. Harrison, J. Stedman, and D. Derwent. New Directions: Why are PM₁₀ concentrations in Europe not falling? *Atmospheric Environment*, 42:603–606, 2008.
- HEI Panel. Traffic-Related Air Pollution: A Critical Review of the Literature on Emissions, Exposure, and Health Effects. HEI Special Report 17. HEI Panel on the Health Effects of Traffic-Related Air Pollution, Health Effects Institute, Boston, 2010. URL www.healtheffects.org.
- B. Heinold, J. Helmert, O. Hellmuth, R. Wolke, A. Ansmann, B. Marticorena, B. Laurent, and I. Tegen. Regional modeling of Saharan dust events using LM-MUSCAT: Model description and case studies. *Journal of Geophysical Research*, 112:D11204, 2007.
- J. Heintzenberg, W. Birmili, R. Otto, M.O. Andreae, J.-C. Mayer, X. Chi, and A. Panov. Aerosol particle number size distributions and particulate light absorption at the ZOTTO tall tower (Siberia), 2006-2009. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11:8703–8719, 2011.
- H. Herrmann, E. Brüggemann, U. Franck, T. Gnauk, G. Löschau, K. Müller, A. Plewka, and G. Spindler. A source study of PM in Saxony by size-segregated characterisation. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 55:103–130, 2006.
- M. Herzog, D.K. Weisenstein, and J.E. Penner. A dynamic aerosol module for global chemical transport models: Model description. *Journal of Geophysical Research*, 109: D18202, 2004. doi: 10.1029/2003JD004405.
- D. Hinneburg, E. Renner, and R. Wolke. Formation of secondary inorganic aerosols by power plant emissions exhausted through cooling towers in Saxony. *Environmental Science and Pollution Research*, 16 (1):25–35, 2009.

- P.K. Hopke. The Use of Source Apportionment for Air Quality Management and Health Assessments. *Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A*, 71:555–563, 2008.
- A. Ibald-Mulli, H.E. Wichmann, W. Kreyling, and A. Peters. Epidemiological evidence on health effects of ultrafine particles. *Journal of Aerosol Medicine*, 15:189–201, 2002.
- IPCC. *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, 2007.
- H.A. Jakobson, J.E. Jonson, and E. Berge. The multi-layer Eulerian model: Model description and evaluation of transboundary fluxes of sulphur and nitrogen species for one year. EMEP/MSC-W Note 2/97, Norwegian Meteorological Institute, Oslo, Norway, 1997.
- R. Jänicke. Über die Dynamik atmosphärischer Aitkenteilchen. *Berichte der Bunsengesellschaft für Physikalische Chemie*, 82:1198–1202, 1978.
- A.D. Kappos, P. Bruckmann, T. Eikmann, N. Englert, U. Heinrich, P. Höpfe, E. Koch, G.H.M. Krause, W.G. Kreyling, K. Rauchfuss, P. Rombout, V. Schulz-Klemp, W.R. Thiel, and H.-E. Wichmann. Health effects of particles in ambient air. *International Journal of Hygiene and Environmental Health*, 207:399–407, 2004.
- M. Karl, H.-P. Dorn, F. Holland, R. Koppmann, D. Poppe, L. Rupp, A. Schaub, and A. Wahner. Product study of the reaction of OH radicals with isoprene in the atmosphere simulation chamber, SAPHIR. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 55: 167–187, 2006.
- P. Kassomenos, S. Vardoulakis, R. Borge, J. Lumberras, C. Papaloukas, and S. Karakitsios. Comparison of statistical clustering techniques for the classification of modelled atmospheric trajectories. *Theoretical and Applied Climatology*, 102:1–12, 2010.
- K. Katsouyanni, G. Touloumi, E. Samoli, A. Gryparis, A. LeTerte, Y. Monopoli, G. Rossi, D. Zmirou, F. Ballester, A. Boumghar, H. Anderson, B. Wojtyniak, A. Paldy, R. Braunstein, and J.S. Pekkanen. Confounding and effect modification in the short-term effects of ambient particles on mortality: results from 29 European cities within the ALPHEA2 project. *Epidemiology*, 12:521–531, 2001.
- K. Kemp. A multipoint receptor model for long-range transport over southern Scandinavia. *Atmospheric Environment*, 27(6):823–830, 1993.
- M. Keuken, H.D. van der Gon, and K. van der Valk. Non-exhaust emissions of PM and the efficiency of emission reduction by road sweeping and washing in the Netherlands. *Science of the Total Environment*, 408:4591–4599, 2010.

- D.B. Kittelson. Engines and nanoparticles: a review. *Journal of Aerosol Science*, 29 (5-6): 575–588, 1998.
- S. Kloster, F. Dentener, J. Feichter, F. Raes, J. van Aardenne, E. Roeckner, U. Lohmann, P. Stier, and R. Swart. Influence of future air pollution mitigation strategies on total aerosol radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8:6405–6437, 2008.
- H. Kokkola, H. Korhonen, K.E.J. Lehtinen, R. Makkonen, A. Asmi, S. Järvenoja, T. Anttila, A.-I. Partanen, M. Kulmala, H. Järvinen, A. Laaksonen, and V.-M. Kerminen. SALSA - a Sectional Aerosol module for Large Scale Applications. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8:2469–2483, 2008.
- H. Kraus. *Grundlagen der Grenzschicht-Meteorologie: Einführung in die Physik der Atmosphärischen Grenzschicht und in die Mikrometeorologie*. Springer Verlag, 2008.
- M. Krzyzanowski and A. Cohen. Update of WHO air quality guidelines. *Air Quality, Atmosphere & Health*, 1:7–13, 2008. doi: 10.1007/s11869-008-0008-9. URL http://www.euro.who.int/__data/assets/pdf_file/0003/78681/E91399.pdf.
- J. Kukkonen, M. Pohjola, R.S. Sokhi, L. Luhana, N. Kitwiroon, L. Fragkou, M. Rantamäki, E. Berge, V. Ødegaard, L.H. Slørdal, B. Denby, and S. Finardi. Analysis and evaluation of selected local-scale PM₁₀ air pollution episodes in four European cities: Helsinki, London, Milan and Oslo. *Atmospheric Environment*, 39:2759–2773, 2005.
- J. Kukkonen, T. Olsson, D.M. Schultz, A. Baklanov, T. Klein, A.I. Miranda, A. Monteiro, M. Hirtl, V. Tarvainen, M. Boy, V.-H. Peuch, A. Poupkou, I. Kioutsioukis, S. Finardi, M. Sofiev, R. Sokhi, K.E.J. Lehtinen, K. Karatzas, R. San José, M. Astitha, G. Kallos, M. Schaap, E. Reimer, H. Jakobs, and K. Eben. A review of operational, regional-scale, chemical weather forecasting models in Europe. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12:1–87, 2012.
- B. Langmann, S. Varghese, E. Marmer, E. Vignati, J. Wilson, P. Stier, and C. O’Dowd. Aerosol distribution over Europe: a model evaluation study with detailed aerosol microphysics. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8:1591–1607, 2008.
- A. Lauer, J. Hendricks, I. Ackermann, B. Schell, H. Hass, and S. Metzger. Simulating aerosol microphysics with the ECHAM/MADE GCM - Part I: Model description and comparison with observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5:3251–3276, 2005.
- P. Lenschow, H.-J. Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J.D. Preuß, and W. Reichenbacher. Some ideas about the sources of PM₁₀. *Atmospheric Environment*, 35 (1):23–33, 2001.

- LfULG. Luftqualität in Sachsen. Aktuelle Messwerte. Hrsg.: Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG), 2011. URL <http://www.umwelt.sachsen.de/umwelt/luft/3654.htm>.
- X. Liu, R.C. Easter, S.J. Ghan, R. Zaveri, P. Rasch, X. Shi, J.-F. Lamarque, A. Gettelman, H. Morrison, F. Vitt, A. Conley, S. Park, R. Neale, C. Hannay, A.M.L. Ekman, P. Hess, N. Mahowald, W. Collins, M.J. Iacono, C.S. Bretherton, M.G. Flanner, and D. Mitchell. Toward a minimal representation of aerosols in climate models: description and evaluation in the Community Atmosphere Model CAM5. *Geoscientific Model Development*, 5:709–739, 2012.
- J. Löndahl, J. Pagels, E. Swietlicki, J. Zhou, M. Ketzler, A. Massling, and M. Bohgard. A set-up for field studies of respiratory tract deposition of fine and ultrafine particles in humans. *Journal of Aerosol Science*, 37:1152–1163, 2006.
- M.S. Long, W.C. Keene, D.J. Kieber, D.J. Erickson, and H. Maring. A sea-state based source function for size- and composition-resolved marine aerosol production. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(3):1203–1216, 2011. doi: 10.5194/acp-11-1203-2011.
- G. Löschau, W. Birmili, C. Engler, K. Weinhold, T. Gnauk, E. Brüggemann, K. Müller, H. Herrmann, and A. Wiedensohler. Measurement of the number concentration of ultrafine particles in ambient in an air quality monitoring network - part 3: Spatial variation of the particle concentration and main sources in an agglomeration. *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 71(1/2):57–63, 2011.
- G. Löschau, A. Wiedensohler, W. Birmili, F. Rasch, G. Spindler, K. Müller, U. Wolf, A. Hausmann, and H. Herrmann. Umweltzone Leipzig - Teil 1: Ausgangsbeurteilung. Hrsg.: Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG), 2012. URL <http://www.smul.sachsen.de/lfulg/6447.htm>.
- D. Majewski, D. Liermann, P. Prohl, B. Ritter, M. Buchhold, T. Hanisch, G. Paul, W. Wergen, and J. Baumgardner. The operational global icosahedral-hexagonal gridpoint model GME: description and high-resolution tests. *Monthly Weather Review*, 130: 319–338, 2002.
- A.M.M. Manders, M. Schaap, and R. Hoogerbrugge. Testing the capability of the chemistry transport model LOTOS-EUROS to forecast PM₁₀ levels in the Netherlands. *Atmospheric Environment*, 43:4050–4059, 2009.
- A.M.M. Manders, E. van Meijgaard, A.C. Mues, R. Kranenburg, L.H. van Ulft, and M. Schaap. The impact of differences in large-scale circulation output from climate models on the regional modeling of ozone and PM. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12:9441–9458, 2012.

- H.B. Mann and D.R. Whitney. On a test of whether one of two random variables is stochastically larger than the other. *Annales of Mathematical Statistics*, 18(1):50–60, 1947.
- J. Meier, I. Tegen, I. Mattis, R. Wolke, L. Alados Arboledas, A. Apituley, D. Balis, F. Barnaba, A. Chaikovsky, M. Sicard, G. Pappalardo, A. Pietruczuk, D. Stoyanov, F. Ravetta, and V. Rizi. A regional model of European aerosol transport: Evaluation with sun photometer, lidar and air quality data. *Atmospheric Environment*, 47: 519–532, 2012.
- P.S. Monks, C. Granier, S. Fuzzi, A. Stohl, M.L. Williams, H. Akimoto, M. Amann, A. Baklanov, U. Baltensperger, I. Bey, N. Blake, R.S. Blake, K. Carslaw, O.R. Cooper, F. Dentener, D. Fowler, E. Fragkou, G.J. Frost, S. Generoso, P. Ginoux, V. Grewe, A. Guenther, H.C. Hansson, S. Henne, J. Hjorth, A. Hofzumahaus, H. Huntrieser, I.S.A. Isaksen, M.E. Jenkin, J. Kaiser, M. Kanakidou, Z. Klimont, M. Kulmala, P. Laj, M.G. Lawrence, J.D. Lee, C. Lioussse, M. Maione, G. McFiggans, A. Metzger, A. Mieville, N. Moussiopoulos, J.J. Orlando, C.D. O’Dowd, P.I. Palmer, D.D. Parrish, A. Petzold, U. Platt, U. Pöschl, A.S.H. Prévôt, C.E. Reeves, S. Reimann, Y. Rudich, K. Sellegri, R. Steinbrecher, D. Simpson, H. ten Brink, J. Theloke, G.R. van der Werf, R. Vautard, V. Vestreng, Ch. Vlachokostas, and R. von Glasow. Atmospheric composition change - global and regional air quality. *Atmospheric Environment*, 43: 5268–5350, 2009.
- J.L. Moody and J.N. Galloway. Quantifying the relationship between atmospheric transport and the chemical composition of precipitation on Bermuda. *Tellus B*, 40: 463–479, 1988.
- A. Mues, A. Manders, M. Schaap, A. Kerschbaumer, R. Stern, and P. Builtjes. Impact of the extreme meteorological conditions during the summer 2003 in Europe on particulate matter concentrations. *Atmospheric Environment*, 55:377–391, 2012.
- H. Mukai and M. Suzuki. Using air trajectories to analyze the seasonal variation of aerosols transported to the Oki Islands. *Atmospheric Environment*, 30(23):3917–3934, 1996.
- A. Nenes, C. Pilinis, and S.N. Pandis. ISORROPIA: a new thermodynamic model for multiphase multicomponent inorganic aerosols. *Aquatic Geochemistry*, 4:123–152, 1998.
- C. Neusüß, M. Pelzing, A. Plewka, and H. Herrmann. A new analytical approach for size-resolved speciation of organic compounds in atmospheric particles: Methods and first results. *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 105:4513–4527, 2000.

- J.V. Niemi, S. Saarikoski, M. Aurela, H. Tervahattu, R. Hillamo, D.L. Westphal, P. Aarnio, T. Koskentalo, U. Makkonen, H. Vehkamäki, and M. Kulmala. Long-range transport episodes of fine particles in southern Finland during 1999-2007. *Atmospheric Environment*, 43:1255–1264, 2009.
- E.D. Nilsson, J. Paatero, and M. Boy. Effects of air masses and synoptic weather on aerosol formation in the continental boundary layer. *Tellus*, 53B:462–478, 2001.
- S. Nordmann, W. Birmili, K. Weinhold, A. Wiedensohler, G. Mertes, K. Müller, T. Gnauk, H. Herrmann, M. Pitz, J. Cyrus, H. Flentje, L. Ries, and K. Wirtz. Atmospheric aerosol measurements in the German Ultrafine Aerosol Network (GUAN) Part 2: Comparison of measurements techniques for graphitic, light-absorbing, and elemental carbon, and non-volatile particle volume under field conditions. *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 69-11/12:469–474, 2009.
- K.F.G. Olofson, P.U. Andersson, M. Hallquist, E. Ljungström, L. Tang, D. Chen, and J.B.C. Pettersson. Urban aerosol evolution and particle formation during wintertime temperature inversions. *Atmospheric Environment*, 43:340–346, 2009.
- K. Peters, P. Stier, J. Quaas, and H. Graßl. Aerosol indirect effects from shipping emissions: sensitivity studies with the global aerosol-climate model ECHAM-HAM. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12:5985–6007, 2012.
- C.A. Pope III and D.W. Dockery. Epidemiology of particle effects. *Air Pollution and Health*, 31:673–705, 1999.
- C.A. Pope III, R.T. Burnett, M.J. Thun, E.E. Calle, D. Krewski, K. Ito, and G.D. Thurnston. Lung cancer cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. *Journal of the American Medical Association*, 287:1132–1140, 2002.
- L. Poulain, G. Spindler, W. Birmili, C. Plass-Dülmer, A. Wiedensohler, and H. Herrmann. Seasonal and diurnal variations of particulate nitrate and organic matter at the IfT research station Melpitz. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11:12579–12599, 2011. doi: 10.5194/acp-11-12579-2011.
- L. Pozzoli, G. Janssens-Maenhout, T. Diehl, I. Bey, M.G. Schultz, J. Feichter, E. Vignati, and F. Dentener. Re-analysis of tropospheric sulfate aerosol and ozone for the period 1980-2005 using the aerosol-chemistry-climate model ECHAM5-HAMMOZ. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11:9563–9594, 2011.
- K.J. Pringle, H. Tost, S. Message, B. Steil, D. Giannadaki, A. Nenes, C. Fountoukis, P. Stier, E. Vignati, and J. Lelieveld. Description and evaluation of GMXe: a new aerosol submodel for global simulations (v1). *Geoscientific Model Development*, 3: 391–412, 2010.

- J.-P. Putaud, F. Raes, R. van Dingenen, E. Brüggemann, M.-C. Facchini, S. Decesari, S. Fuzzi, R. Gehrig, C. Hüglin, P. Laj, G. Lorbeer, W. Maenhaut, N. Mihalopoulos, K. Müller, X. Querol, S. Rodríguez, J. Schneider, G. Spindler, H. ten Brink, K. Tørseth, and A. Wiedensohler. A European aerosol phenomenology - 2: Chemical characteristics of particulate matter at kerbsite, urban, rural and background sites in Europe. *Atmospheric Environment*, 38:2579–2595, 2004.
- J.-P. Putaud, R. van Dingenen, A. Alastuey, H. Bauer, W. Birmili, J. Cyrus, H. Flentje, S. Fuzzi, R. Gehrig, H.C. Hansson, R.M. Harrison, H. Herrmann, R. Hitzenberger, C. Hüglin, A.M. Jones, A. Kasper-Giebl, G. Kiss, A. Koussa, T.A.J. Kuhlbusch, G. Löschau, W. Maenhaut, A. Molnar, T. Moreno, J. Pekkanen, C. Perrino, M. Pitz, H. Puxbaum, X. Querol, S. Rodriguez, I. Salma, J. Schwarz, J. Smolik, J. Schneider, G. Spindler, H. ten Brink, J. Tursic, M. Viana, A. Wiedensohler, and F. Raes. A European aerosol phenomenology - 3: Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe. *Atmospheric Environment*, 44:1308–1320, 2010.
- X. Querol, A. Alastuey, C.R. Ruiz, B. Artiñano, H.C. Hansson, R.M. Harrison, E. Buringh, H.M. ten Brink, M. Lutz, P. Bruckmann, P. Straehl, and J. Schneider. Speciation and origin of PM₁₀ and PM_{2.5} in selected European cities. *Atmospheric Environment*, 38: 6547–6555, 2004.
- V. Ramanathan, P.J. Crutzen, J.T. Kiehl, and D. Rosenfeld. Aerosols, climate, and the hydrological cycle. *Science*, 294 (5549):2119–2124, 2001.
- C.L. Reddington, K.S. Carslaw, D.V. Spracklen, M.G. Frontoso, L. Collins, J. Merikanto, A. Minikin, T. Hamburger, H. Coe, M. Kulmala, P. Aalto, H. Flentje, C. Plass-Dülmer, W. Birmili, A. Wiedensohler, B. Wehner, T. Tuch, A. Sonntag, C.D. O'Dowd, S.G. Jennings, R. Dupuy, U. Baltensperger, E. Weingartner, H.-C. Hansson, P. Tunved, P. Laj, K. Sellegri, J. Boulon, J.-P. Putaud, C. Gruening, E. Swietlicki, P. Roldin, J.S. Henzing, M. Moerman, N. Mihalopoulos, G. Kouvarakis, V. Ždímal, N. Zíková, A. Marinoni, P. Bonasoni, and R. Duchi. Primary versus secondary contributions to particle number concentrations in the European boundary layer. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11:12007–12036, 2011. doi: 10.5194/acp-11-12007-2011.
- E. Renner and R. Wolke. Simulationen zur Episode hoher Schwebstaubkonzentrationen im Januar und Februar 2006. *Immissionsschutz*, 1:13–17, 2008.
- J. Rimetz-Planchon, E. Perdrix, S. Sobanska, and C. Brémard. PM₁₀ air quality variations in an urbanized and industrialized harbor. *Atmospheric Environment*, 42:7274–7283, 2008.
- E. Roeckner, G. Bäuml, L. Bonaventura, R. Brokopf, M. Esch, M. Giorgetta, S. Hagemann, I. Kirchner, L. Kornblüeh, E. Manzini, A. Rhodin, U. Schlese, U. Schulzweida,

- and A. Tompkins. Report No. 349 - The atmospheric general circulation model ECHAM5, Part I. Max Planck Institute for Meteorology, 2003.
- G.-J. Roelofs, H. ten Brink, A. Kiendler-Scharr, G. de Leeuw, A. Mensah, A. Minikin, and R. Otjes. Evaluation of simulated aerosol properties with the aerosol-climate model ECHAM5-HAM using observations from the IMPACT field campaign. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10:7709–7722, 2010.
- D. Rose, B. Wehner, M. Ketzler, C. Engler, J. Voigtländer, T. Tuch, and A. Wiedensohler. Atmospheric number size distributions of soot particles and estimation of emission factors. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6:1021–1031, 2006.
- J. Samet, F.C. Dominici, I. Coursac, and S. Zeger. Fine particulate air pollution and mortality in 20 U.S. cities, 1987-1994. *New England Journal of Medicine*, 343:1742–1749, 2000.
- P.G. Sanders, N. Xu, T.M. Dalka, and M. Maricq. Airborne Brake Wear Debris: Size Distributions, Composition, and a Comparison of Dynamometer and Vehicle Tests. *Environmental Science and Technology*, 37:4060–4069, 2003.
- K.N. Sartelet, H. Hayami, B. Albriet, and B. Sportisse. Development and Preliminary Validation of a Modal Aerosol Model for Tropospheric Chemistry: MAM. *Aerosol Science and Technology*, 40:118–127, 2006.
- K.N. Sartelet, E. Debry, K. Fahey, Y. Rouston, M. Tombette, and B. Sportisse. Simulation of aerosols and gas-phase species over Europe with the POLYPHEMUS system: Part I - Model-to-data comparison for 2001. *Atmospheric Environment*, 41:6116–6131, 2007.
- K. Schäfer, S. Emeis, H. Hoffmann, and C. Jahn. Influence of mixing layer height upon air pollution in urban and sub-urban areas. *Meteorologische Zeitschrift*, 15(6):647–658, 2006.
- U. Schättler, G. Doms, and C. Schraff. *A description of the nonhydrostatic regional COSMO-Model Part I: User's guide*. Deutscher Wetterdienst, Offenbach, 2008. URL www.cosmo-model.org.
- P.E. Schwarze, J. Øvreivik, M. Låg, M. Refsnes, P. Nafstad, R.B. Hetland, and E. Dybing. Particulate matter properties and health effects: consistency of epidemiological and toxicological studies. *Human & Experimental Toxicology*, 25:559–579, 2006.
- J. Sciare, H. Bardouki, C. Moulin, and N. Mihalopoulos. Aerosol sources and their contribution to the chemical composition of aerosols in the Eastern Mediterranean Sea during summertime. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3:291–302, 2003.

- P. Seibert, H. Kromp-Kolb, A. Kasper, M. Kalina, H. Puxbaum, D.T. Jost, M. Schwikowski, and U. Baltensperger. Transport of polluted boundary layer air from the Po valley to High-Alpine sites. *Atmospheric Environment*, 32(23):3953–3965, 1998.
- M. Shiraiwa, K. Selzle, and U. Pöschl. Hazardous components and health effects of atmospheric aerosol particles: reactive oxygen species, soot, polycyclic aromatic compounds and allergenic proteins. *Free Radical Research*, 46(8):927–939, 2012.
- L. Sogacheva, M. Dal Maso, V.-M. Kerminen, and M. Kulmala. Probability of nucleation events and aerosol particle concentration in different air mass types arriving at Hyytiälä, southern Finland, based on back trajectories analysis. *Boreal Environment Research*, 10:479–491, 2005.
- E. Solazzo, R. Bianconi, G. Pirovano, V. Matthias, R. Vautard, M.D. Moran, K.W. Appel, B. Bessagnet, J. Brandt, J.H. Christensen, C. Chemel, I. Coll, J. Ferreira, R. Forkel, X.V. Francis, G. Grell, P. Grossi, A.B. Hansen, A.I. Miranda, U. Nopmongkol, M. Prank, K.N. Sartelet, M. Schaap, J.D. Silver, R.S. Sokhi, J. Vira, J. Werhahn, R. Wolke, G. Yarwood, J. Zhang, S.T. Rao, and S. Galmarini. Operational model evaluation for particulate matter in Europe and North America in the context of AQMEII. *Atmospheric Environment*, 53:75–92, 2012.
- G. Spindler, K. Müller, E. Brüggemann, T. Gnauk, and H. Herrmann. Long-term size-segregated characterization of PM_{10} , $PM_{2.5}$, and PM_1 at the IfT research station Melpitz downwind of Leipzig (Germany) using high and low-volume filter samplers. *Atmospheric Environment*, 38:5333–5347, 2004.
- G. Spindler, E. Brüggemann, T. Gnauk, A. Grüner, K. Müller, and H. Herrmann. A four-year size-segregated characterization study of particles PM_{10} , $PM_{2.5}$ and PM_1 depending on air mass origin at Melpitz. *Atmospheric Environment*, 44:164–173, 2010.
- Stadt Leipzig. Dezernat Umwelt, Ordnung, Sport / Amt für Umweltschutz / Abteilung Umweltvorsorge. Luftreinhalteplan für die Stadt Leipzig, 2009. URL http://www.forsten.sachsen.de/umwelt/download/luft/LRP2009_20091218.pdf.
- J.R. Stedman, A.J. Kent, S. Grice, T.J. Bush, and R.G. Derwent. A consistent method for modelling PM_{10} and $PM_{2.5}$ concentrations across the United Kingdom in 2004 for air quality assessment. *Atmospheric Environment*, 41:161–172, 2007.
- J. Steppeler, G. Doms, U. Schättler, H.W. Bitzer, A. Gassmann, U. Damrath, and G. Gregoric. Meso-gamma scale forecasts using the nonhydrostatic model LM. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 82:75–96, 2003.

- R. Stern, P. Builtjes, M. Schaap, R. Timmermans, R. Vautard, A. Hodzic, M. Memmesheimer, H. Feldmann, E. Renner, R. Wolke, and A. Kerschbaumer. A model inter-comparison study focussing on episodes with elevated PM₁₀ concentrations. *Atmospheric Environment*, 42:4567–4588, 2008.
- J. Sternbeck, Å. Sjödin, and K. Andréasson. Metal emissions from road traffic and the influence of resuspension - results from two tunnel studies. *Atmospheric Environment*, 36:4735–4744, 2002.
- P. Stier, J. Feichter, S. Kinne, S. Kloster, E. Vignati, J. Wilson, L. Ganzeveld, I. Tegen, M. Werner, Y. Balkanski, M. Schulz, O. Boucher, A. Minikin, and A. Petzold. The aerosol-climate model ECHAM5-HAM. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5:1125–1156, 2005.
- P. Stier, J.H. Seinfeld, S. Kinne, and O. Boucher. Aerosol absorption and radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7:5237–5261, 2007.
- R.W. Stockwell, F. Kirchner, M. Kuhn, and S. Seefeld. A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *Journal of Geophysical Research*, 102:25847–25879, 1997.
- A. Stohl. Trajectory statistics - a new method to establish source-receptor relationships of air pollutants and its application to the transport of particulate sulfate in Europe. *Atmospheric Environment*, 30(4):579–587, 1996.
- A. Stohl. Computation, accuracy and applications of trajectories a review and bibliography. *Atmospheric Environment*, 32 (6):947–966, 1998.
- R.B. Stull. *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1988.
- C. Textor, M. Schulz, S. Guibert, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, T. Berglen, O. Boucher, M. Chin, F. Dentener, T. Diehl, R. Easter, H. Feichter, D. Fillmore, S. Ghan, P. Ginoux, S. Gong, A. Grini, J. Hendricks, L. Horowitz, P. Huang, I. Isaksen, T. Iversen, S. Kloster, D. Koch, A. Kirkevåg, J.E. Kristjansson, M. Krol, A. Lauer, J.F. Lamarque, X. Liu, V. Montanaro, G. Myhre, J. Penner, G. Pitari, S. Reddy, Ø. Seland, P. Stier, T. Takemura, and X. Tie. Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within AeroCom. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6:1777–1813, 2006.
- A.J. Thorpe and T.H. Guymer. The nocturnal jet. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 103:633–653, 1977.
- C. Toledano, V.E. Cachorro, A.M. deFrutos, B. Torres, A. Berjón, M. Sorribas, and R.S. Stone. Airmass Classification and Analysis of Aerosol Types at El Arenosillo (Spain). *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 48:962–981, 2009.

- W. Trivitayanurak, P.J. Adams, D.V. Spracklen, and K.S. Carslaw. Tropospheric aerosol microphysics simulation with assimilated meteorology: model description and intermodel comparison. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8:3149–3168, 2008.
- TSI. *Model 3321 Aerodynamic Particle Sizer Spectrometer - Instruction manual*. TSI Incorporated Particle Instruments, TSI Inc., Shoreview (MN), USA, 2004.
- S. Tsyro and L. Erdman. Parameterisation of aerosol deposition processes in EMEP MSC-E and MSC-W transport models. EMEP/MS-C-W Note 7/00, Norwegian Meteorological Institute, Oslo, Norway, 2000.
- P. Tunved, E.D. Nilsson, H.-C. Hansson, J. Ström, M. Kulmala, P. Aalto, and Y. Viisanen. Aerosol characteristics of air masses in northern Europe: Influences of location, transport, sinks, and sources. *Journal of Geophysical Research*, 110:D07201, doi:10.1029/2004JD005085, 2005.
- S. Twomey. Pollution and the planetary albedo. *Atmospheric Environment*, 8:1251–1256, 1974.
- S. Twomey. The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds. *Journal of Aerosol Science*, 34 (7):1149–1152, 1977.
- UBA. Ermittlung des nordhemisphärischen Hintergrunds an der GAW-Station Zugspitze unter besonderer Berücksichtigung des Ferntransportes von Feinstäuben. Autoren: W. Birmili, K. König, A. Sonntag, Y.F. Cheng, T. Tuch und A. Wiedensohler, Abschlußbericht UFOPLAN Projekt FKZ 204 42 202/01, 2008.
- UBA. Trends in Air Quality in Germany, October 2009.
- UBA. Studie zur Charakterisierung und Quantifizierung der räumlichen Herkunft der PM₁₀-Belastung an hoch belasteten Orten. Texte des Umweltbundesamtes, Autoren: W. Birmili und C. Engler, FKZ 312 01 283, October 2012. URL <http://www.uba.de/uba-info-medien/4359.html>.
- D. van Pinxteren, E. Brüggemann, T. Gnauk, K. Müller, C. Thiel, and H. Herrmann. A GIS based approach to back trajectory analysis for the source apportionment of aerosol constituents and its first application. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 67: 1–28, 2010.
- R. Vautard, B. Bessagnet, M. Chin, and L. Menut. On the contribution of natural Aeolian sources to particulate matter concentrations in Europe: Testing hypotheses with a modelling approach. *Atmospheric Environment*, 39:3291–3303, 2005.
- R. Vautard, P.H.J. Builtjes, P. Thunis, C. Cuvelier, M. Bedogni, B. Bessagnet, C. Honoré, N. Moussiopoulos, G. Pirovano, M. Schaap, R. Stern, L. Tarrason, and P. Wind.

- Evaluation and intercomparison of Ozone and PM₁₀ simulations by several chemistry transport models over four European cities within the CityDelta project. *Atmospheric Environment*, 41:173–188, 2007.
- M. Viana, W. Maenhaut, X. Chi, X. Querol, and A. Alastuey. Comparative chemical mass closure of fine and coarse aerosols at two sites in south and west Europe: Implications for EU air pollution policies. *Atmospheric Environment*, 41:315–326, 2007.
- E. Vignati, J. Wilson, and P. Stier. M7: An efficient size-resolved aerosol microphysics module for large-scale aerosol transport models. *Journal of Geophysical Research*, 109: D22202, doi:10.1029/2003JD004485, 2004.
- B. Vogel, H. Vogel, D. Bäumer, M. Bangert, K. Lundgren, R. Rinke, and T. Stanelle. The comprehensive model system COSMO-ART - Radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9: 8661–8680, 2009.
- G. Weckwerth. Verification of traffic emitted aerosol components in the ambient air of Cologne (Germany). *Atmospheric Environment*, 35:5525–5536, 2001.
- World Health Organization Europe WHO. Air quality guidelines, global update 2005 - particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide, 2005. URL http://www.euro.who.int/__data/assets/pdf_file/0005/78638/E90038.pdf.
- H.E. Wichmann. Schützen Umweltzonen unsere Gesundheit oder sind sie unwirksam? *Umweltmedizin in Forschung und Praxis*, 13(1):7–10, 2008.
- H.E. Wichmann. Umweltzonen aus der Sicht des Gesundheitsschutzes. In *Pressekonferenz Deutsche Umwelthilfe 7.4.2011 Berlin*, 2011.
- A. Wiedensohler, F. Stratmann, and I. Tegen. *Particle-Lung Interactions*, chapter Environmental Particles, pages 67–88. Marcel Dekker Inc., New York, 2000.
- A. Wiedensohler, W. Birmili, A. Nowak, A. Sonntag, K. Weinhold, M. Merkel, B. Wehner, T. Tuch, S. Pfeifer, M. Fiebig, A.M. Fjåraa, E. Asmi, K. Sellegri, R. Depuy, H. Venzac, P. Villani, P. Laj, P. Aalto, J.A. Ogren, E. Swietlicki, P. Williams, P. Roldin, P. Quincey, C. Hüglin, R. Fierz-Schmidhauser, M. Gysel, E. Weingartner, F. Riccobono, S. Santos, C. Grüning, K. Faloon, D. Beddows, R. Harrison, C. Monahan, S.G. Jennings, C.D. O'Dowd, A. Marinoni, H.-G. Horn, L. Keck, J. Jiang, J. Scheckman, P.H. McMurry, Z. Deng, C.S. Zhao, M. Moerman, B. Henzing, G. de Leeuw, G. Löschau, and S. Bastian. Mobility particle size spectrometers: harmonization of technical standards

- and data structure to facilitate high quality long-term observations of atmospheric particle number size distributions. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(3): 657–685, 2012.
- F. Wilcoxon. Individual comparison by ranking methods. *Biometrics Bulletin*, 1:80–83, 1945.
- G.S. Wojcik and J.S. Chang. A re-evaluation of sulfur budgets, lifetimes, and scavenging ratios for eastern North America. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 26:109–145, 1997.
- R. Wolke and O. Knoth. Implicit-explicit Runge-Kutta methods applied to atmospheric chemistry-transport modelling. *Environmental Modelling and Software*, 15:711–719, 2000.
- R. Wolke, O. Hellmuth, O. Knoth, W. Schröder, B. Heinrich, and E. Renner. *The chemistry-transport modeling system LM-MUSCAT: Description and CITYDELTA applications*, pages 427–439. Kluwer Academic / Plenum Publishers, 2004.
- R. Wolke, W. Schröder, R. Schrödner, and E. Renner. Influence of grid resolution and meteorological forcing on simulated European air quality: A sensitivity study with the modeling system COSMO-MUSCAT. *Atmospheric Environment*, 53:110–130, 2012.
- J. Yin and R.M. Harrison. Pragmatic mass closure study for PM_{1.0}, PM_{2.5} and PM₁₀ at roadside, urban background and rural sites. *Atmospheric Environment*, 42:980–988, 2008.
- K. Zhang, H. Wan, B. Wang, M. Zhang, J. Feichter, and X. Liu. Tropospheric aerosol size distributions simulated by three online global aerosol models using the M7 microphysics module. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10:6409–6434, 2010.
- K. Zhang, D. O'Donnell, J. Kazil, P. Stier, S. Kinne, U. Lohmann, S. Ferrachat, B. Croft, J. Quaas, H. Wan, S. Rast, and J. Feichter. The global aerosol-climate model ECHAM-HAM, version 2: sensitivity to improvements in process representations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12:8911–8949, 2012.
- L. Zhang, S. Gong, J. Padro, and L. Barrie. A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmospheric Environment*, 35:549–560, 2001.
- Y. Zhang. Online-coupled meteorology and chemistry models: history, current status, and outlook. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8:2895–2932, 2008.
- W. Zhaoa, P.K. Hopke, and K.A. Prather. Comparison of two cluster analysis methods using single particle mass spectra. *Atmospheric Environment*, 42:881–892, 2008.

E.M. Zubler, D. Folini, U. Lohmann, D. Lüthi, A. Muhlbauer, S. Pousse-Nottelmann, C. Schär, and M. Wild. Implementation and evaluation of aerosol and cloud microphysics in a regional climate model. *Journal of Geophysical Research*, 116: D02211, 2011. doi: 10.1029/2010JD014572.

A Messtechnik

Tabelle A.1. – Übersicht über die einzelnen Stationen in jeder Region und der verwendeten Messtechnik. Erklärung der Abkürzungen findet sich in Tabelle A.2.

Region	Stationscode	Name	Kategorie	PM ₁₀ Messmethode
A Ost- Brandenburg/ Sachsen	DEBB066	Spreewald	1 H	Grav.
	DEBB042	Frankfurt (Oder)	u H	Grav.
	DEBB064	Cottbus	u H	Grav.
	DESN004	Bautzen	u H	TEOM
	DESN045	Zittau	u H	TEOM/Grav.
	DESN050	Hoyerswerda	u H	TEOM
	DEBB044	Cottbus	u V	Grav.
	DEBB045	Frankfurt (Oder)	u V	Grav.
	DESN020	Görlitz	u V	Grav.
B Großraum Berlin	DEUB030	Neuglobsow	1 H	Grav.
	DEBB053	Hasenholz	1 H	Grav.
	DEBB065	Lütte (Belzig)	1 H	Beta-Abs.
	DEBB066	Spreewald	1 H	Grav.
	DEBE032	B Grunewald	1 H	Beta-Abs.
	DEBE056	B Friedrichshagen	1 H	Beta-Abs.
	DEBB021	Potsdam	u H	Neph.
	DEBB048	Neuruppin	u H	Beta-Abs.
	DEBB055	Brandenburg	u H	SLM/Grav.
	DEBB067	Nauen	u H	SLM
	DEBE010	B Wedding	u H	Beta-Abs.
	DEBE018	B Schöneberg	u H	Beta-Abs.
	DEBE034	B Neukölln	u H	Beta-Abs.
	DEBE051	B Buch	u H	Beta-Abs.
	DEBE068	B Brückenstraße	u H	Beta-Abs.
	DEBB049	Brandenburg	u V	TEOM/Grav.
	DEBB054	Potsdam	u V	TEOM/Grav.
	DEBE061	B Steglitz	u V	Beta-Abs.

– wird fortgesetzt

Tabelle A.1 – fortgesetzt

Region	Stationscode	Name	Kategorie	PM ₁₀ Messmethode	
	DEBE063	B Neukölln	u V	SLM	
	DEBE064	B Neukölln	u V	SLM	
	DEBE065	B Friedrichshain	u V	Beta-Abs.	
	DEBE067	B Hardenbergplatz	u V	Neph.	
C Mittel- deutschland	DETH061	Hummelshain	1 H	Neph.	
	DESN049	Carlsfeld	1 H	TEOM	
	DESN051	Radebeul	1 H	TEOM/Grav.	
	DESN074	Schwartenberg	1 H	TEOM/Grav.	
	DESN076	Collmberg	1 H	TEOM/Grav.	
	DEST028	Zeitz	u H	Neph.	
	DEST072	Halle	u H	Neph.	
	DETH005	Saalfeld	u H	Neph.	
	DETH009	Gera	u H	Beta-Abs.	
	DETH036	Greiz	u H	Neph.	
	DETH041	Jena	u H	Neph.	
	DESN011	Chemnitz	u H	TEOM/Grav.	
	DESN012	Delitzsch	u H	TEOM	
	DESN017	Freiberg	u H	TEOM/Grav.	
	DESN019	Glauchau	u H	TEOM	
	DESN024	Klingenthal	u H	TEOM	
	DESN059	Leipzig West	u H	TEOM/Grav.	
	DEST075	Halle	u V	Grav.	
	DEST081	Weißenfels	u V	Neph.	
	DETH011	Altenburg	u V	Neph.	
	DESN006	Borna	u V	TEOM/Grav.	
	DESN025	Leipzig Mitte	u V	TEOM/Grav.	
	DESN060	Chemnitz	u V	TEOM/Grav.	
	DESN061	Dresden	u V	TEOM/Grav.	
	DESN075	Plauen	u V	TEOM/Grav.	
	DESN077	Leipzig	u V	TEOM/Grav.	
	DESN083	Chemnitz	u V	TEOM/Grav.	
	DESN084	Dresden	u V	TEOM/Grav.	
	D NRW	DENW065	Netphen	1 H	Neph.
		DENW068	Soest	1 H	Neph.
DERP015		Westeifel	1 H	Neph.	
DERP016		Westerwald	1 H	Neph.	
DENW002		Datteln	u H	Beta-Abs.	
DENW006		Lünen	u H	TEOM	
DENW008		Dortmund	u H	TEOM/Grav.	
DENW024		Essen	u H	Neph.	
DENW029		Hattingen	u H	Beta-Abs.	
DENW030		Wesel	u H	Neph.	

– wird fortgesetzt

Tabelle A.1 – fortgesetzt

Region	Stationscode	Name	Kategorie	PM ₁₀ Messmethode
E Rhein-Main- Gebiet	DENW038	Mühlheim-Styrum	u H	Neph./Grav.
	DENW042	Krefeld	u H	TEOM
	DENW059	Köln	u H	Beta-Abs.
	DENW062	Bonn	u H	TEOM/Grav.
	DENW071	Düsseldorf	u H	TEOM
	DENW078	Ratingen	u H	Beta-Abs.
	DENW079	Leverkusen	u H	Beta-Abs.
	DENW080	Solingen	u H	Neph.
	DENW094	Aachen	u H	Neph.
	DENW095	Münster	u H	Beta-Abs.
	DENW096	Mönchengladbach	u H	Neph.
	DENW114	Wuppertal	u H	Beta-Abs.
	DERP021	Neuwied	u H	Neph.
	DENW043	Essen	u V	Beta-Abs./Grav.
	DENW066	Nettetal	u V	Neph.
	DENW082	Düsseldorf	u V	Neph./Grav.
	DENW100	Mönchengladbach	u V	Beta-Abs./Grav.
	DENW101	Dortmund	u V	Neph./Grav.
	DENW112	Duisburg	u V	TEOM/Grav.
	DENW133	Hagen	u V	Neph./Grav.
	DEHE028	Fürth Odenwald	1 H	Neph./Grav.
	DEHE043	Riedstadt	1 H	Neph./Grav.
	DEBW004	Eggenstein	1 H	SLM/Grav.
	DEBW103	Odenwald	1 H	SLM/Grav.
	DEHE001	Darmstadt	u H	Neph./Grav.
	DEHE008	Frankfurt	u H	Neph./Grav.
	DEHE018	Raunheim	u H	Neph./Grav.
	DEHE022	Wiesbaden	u H	Neph./Grav.
	DEHE045	Michelstadt	u H	Neph.
	DERP025	Wörth	u H	Neph.
	DEBW006	Mannheim	u H	Beta-Abs./Grav.
	DEBW007	Mannheim	u H	SLM/Grav.
	DEBW010	Wiesloch	u H	SLM/Grav.
DEBW081	Karlsruhe	u H	SLM/Grav.	
DEBY003	Aschaffenburg	u H	Beta-Abs.	
DEBY004	Kleinwallstadt	u H	Beta-Abs.	
DEBY005	Aschaffenburg	u H	Neph.	
DEHE005	Frankfurt	u V	Neph./Grav.	
DEHE011	Hanau	u V	Neph.	
DEHE037	Wiesbaden	u V	Neph./Grav.	
DEHE040	Darmstadt	u V	Neph.	
DEHE041	Frankfurt	u V	Neph.	

– wird fortgesetzt

Tabelle A.1 – fortgesetzt

Region	Stationscode	Name	Kategorie	PM ₁₀ Messmethode
	DERP041	Ludwigshafen	u V	Neph./Grav.
	DEBW001	Karlsruhe	u V	SLM/Grav.
	DEBW009	Heidelberg	u V	SLM/Grav.
	DEBW080	Karlsruhe	u V	Grav.
	DEBW098	Mannheim	u V	Grav.

Tabelle A.2. – Abkürzungen aus Tabelle A.1 sowie zeitliche Auflösung der einzelnen Messmethoden.

Abkürzung	Messmethode	zeitliche Auflösung
Grav.	Gravimetrie	Tagesmittel
TEOM	Oszillierende Mikrowaage	Halbstundenmittel
Beta-Abs.	Beta-Absorption	Halbstundenmittel
Neph.	Nephelometer mit Beta-Messung	Halbstundenmittel
SLM	Streulichtmessung	Halbstundenmittel

B Ergänzende Grafiken und Tabellen zu Kapitel 6

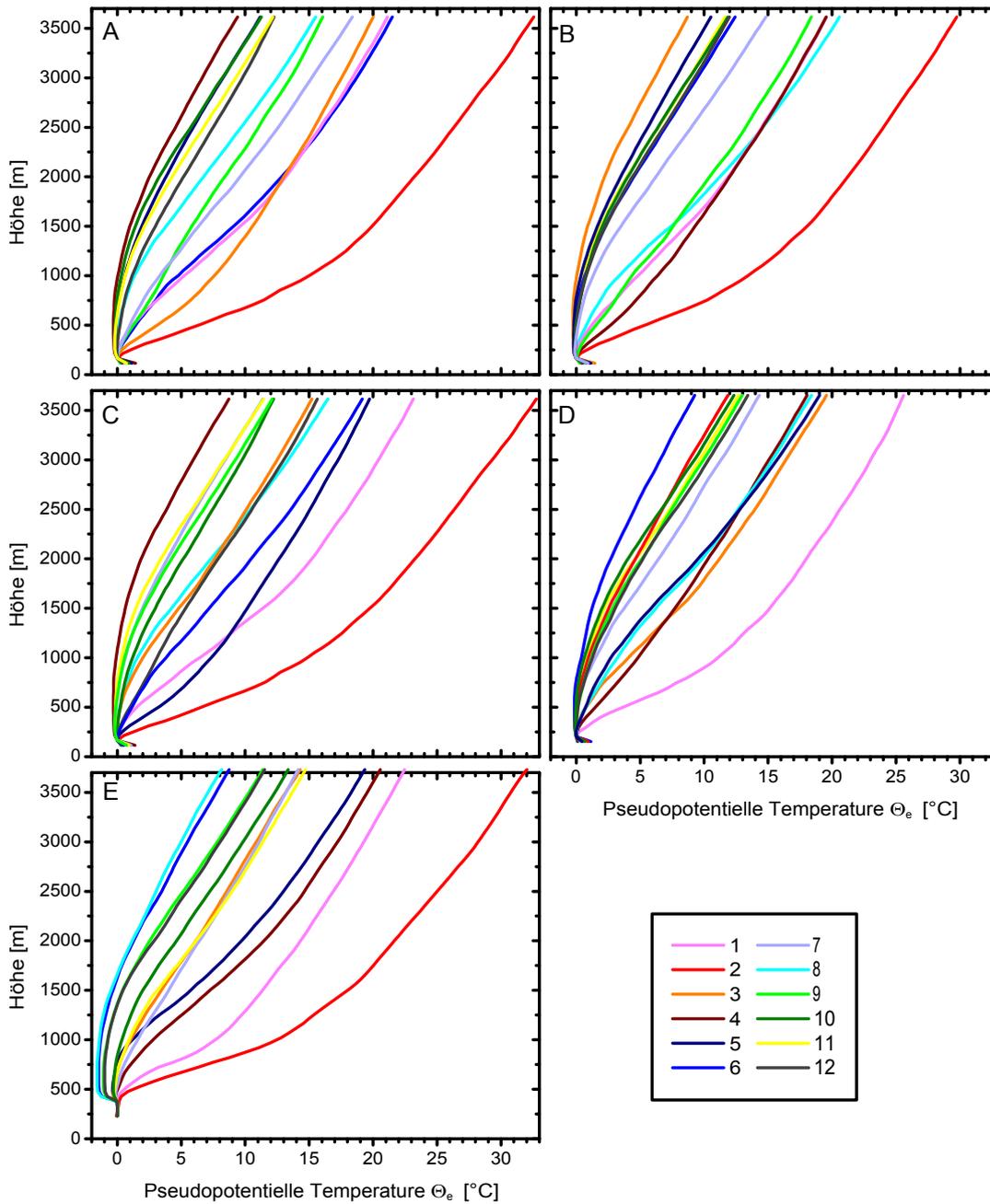


Abbildung B.1. – Mittlere Pseudopotentielle Temperatur-Profile (Θ_e) jedes Clusters für die Regionen A bis E.

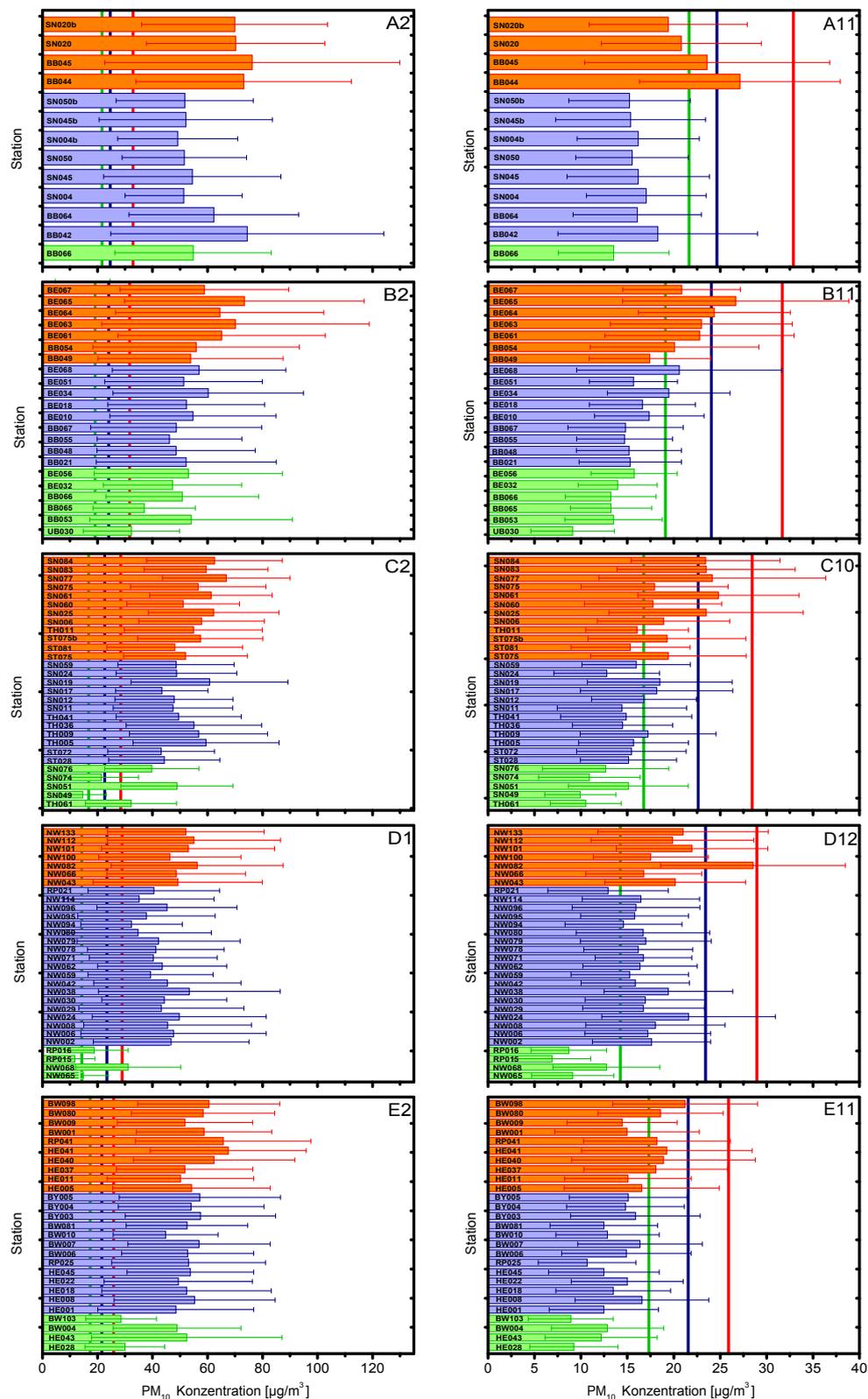


Abbildung B.2. – Mittelwerte der PM₁₀ Massenkonzentration und Standardabweichungen aller Stationen für jeweils zwei Cluster (winterliche Hochdruckwetterlage (A2,B2,C2,D1,E2) und (Nord-/Süd-)Westanströmung (A11,B11,C10,D12,E11)) für die Regionen A bis E.

Tabelle B.1. – Beitrag verschiedener Wetterlagen zur Zahl der PM₁₀ Grenzwertüberschreitungen an verkehrsnahen Messstationen 2005-2009 in den Regionen A bis E. Die Wetterlagen sind in absteigender Reihenfolge der Überschreitungseignisse geordnet. Die Überschreitungswahrscheinlichkeit (0-100 %) gibt den Anteil der Grenzwertüberschreitungen an der tatsächlichen Häufigkeit einer Wetterlagen an. Die kumulative Spalte summiert die Überschreitungseignisse zeilenweise und normiert auf ein Jahr auf.

Cluster	Jahreszeit	Herkunft	Häuf. (d)	rel. Häuf.	ÜS-Er.	ÜS-Ws.	Anteil ÜS	ÜS/Jahr	Σ
A1	Wi/He	Polen (Süd)	99	6%	47	47%	23%	9.6	9.6
A2	Wi	D/PL/CZ	44	2%	32	73%	15%	6.5	16.1
A3	Wi/He	Frankreich (Süd)	106	6%	30	28%	14%	6.1	22.2
A4	Frü/So	Polen (Mitte)	184	10%	29	16%	14%	5.9	28.1
A5	So	BeNeLux	274	15%	19	7%	9%	3.9	32.0
A6	Wi/He	Dänemark	96	5%	14	15%	7%	2.8	34.8
A7	Wi/He	Atlantik (UK)	146	8%	12	8%	6%	2.4	37.3
A8	Wi/He	Ostsee	168	9%	9	5%	4%	1.8	39.1
A9	Wi/He	Atlantik (Süd)	100	6%	5	5%	2%	1.0	40.1
A10	So	Atlantik (Mitte)	209	12%	4	2%	2%	0.8	40.9
A11	-	Atlantik (Nord)	240	13%	4	2%	2%	0.8	41.7
A12	Wi/He	Atlantik (Mitte)	127	7%	3	2%	1%	0.6	42.3
GESAMT			1793	100%	208	12%	100%	42.3	
B1	Wi/He	Polen (Süd)	117	7%	54	46%	30%	11.0	11.0
B2	Wi	D/PL/CZ	73	4%	42	58%	24%	8.5	19.5
B3	Frü/So	Polen (Mitte)	108	6%	30	28%	17%	6.1	25.6
B4	Wi/He	Frankreich (Süd)	122	7%	17	14%	10%	3.5	29.1
B5	Frü/So	BeNeLux	226	13%	13	6%	7%	2.6	31.8
B6	Frü/So	Baltikum	168	9%	8	5%	4%	1.6	33.4
B7	-	Nordsee (UK)	218	12%	5	2%	3%	1	34.4
B8	Wi/He	Skandinavien	128	7%	3	2%	2%	0.6	35.0
B9	Wi/He	Atlantik (Süd)	97	5%	2	2%	1%	0.4	35.4
B10	Frü/So	Atlantik (Süd)	209	12%	2	1%	1%	0.4	35.8
B11	-	Atlantik (Nord)	169	9%	1	1%	1%	0.2	36.0
B12	Wi/He	Atlantik (Mitte)	159	9%	1	1%	1%	0.2	36.2
GESAMT			1794	100%	178	10%	100%	36.2	
C1	Wi	Polen (Süd)	102	6%	31	30%	23%	6.3	6.3
C2	Wi	D (Nord)	44	2%	30	68%	22%	6.1	12.4
C3	Wi/He	Polen (Mitte)	110	6%	22	20%	16%	4.5	16.9
C4	Frü/So	Polen (Nord)	177	10%	16	9%	12%	3.3	20.2
C5	Wi/He	Frankreich (Süd)	104	6%	11	11%	8%	2.2	22.4
C6	Wi/He	Atlantik (UK)	164	9%	9	5%	7%	1.8	24.2
C7	So	BeNeLux	260	15%	9	3%	7%	1.8	26.1
C8	Wi/He	Ostsee	151	8%	4	3%	3%	0.8	26.9
C9	-	Atlantik (Nord)	226	13%	2	1%	1%	0.4	27.3
C10	Wi/He	Atlantik (Mitte)	118	7%	1	1%	1%	0.2	27.5
C11	So	Atlantik (Mitte)	210	12%	1	0%	1%	0.2	27.7
C12	Wi/He	Atlantik (Süd)	127	7%	1	1%	1%	0.2	27.9
GESAMT			1793	100%	137	8%	100%	27.9	
D1	Wi	D (stagn)	58	3%	22	38%	20%	4.5	4.5
D2	So	BeNeLux	227	14%	19	8%	17%	3.9	8.3
D3	Wi/He	D/Polen	94	6%	18	19%	16%	3.7	12.0
D4	Wi/He	Frankreich (Süd)	129	8%	16	12%	14%	3.3	15.3
D5	-	Atlantik (antiz.)	153	9%	15	10%	14%	3.1	18.3
D6	So	D/Polen	110	7%	11	10%	10%	2.2	20.6
D7	-	Ostsee	120	7%	7	6%	6%	1.4	22.0
D8	-	Atlantik (Mitte)	160	10%	2	1%	2%	0.4	22.4
D9	So	Atlantik (Süd)	162	10%	1	1%	1%	0.2	22.6
D10	Fr/Wi	Atlantik (UK)	219	13%	0	0%	0%	0	22.6
D11	-	Atlantik (Nord)	132	8%	0	0%	0%	0	22.6
D12	-	Atlantik (fern)	103	6%	0	0%	0%	0	22.6
GESAMT			1667	100%	111	7%	100%	22.6	
E1	Wi/He	D (Süd)	83	5%	25	30%	29%	5.1	5.1
E2	Wi	Dänemark	34	2%	20	59%	23%	4.1	9.2
E3	-	D (Nord)	167	10%	16	10%	18%	3.3	12.4
E4	Wi/He	Atlantik (UK)	145	8%	11	8%	13%	2.2	14.7
E5	Wi/He	Baltikum	115	7%	4	3%	5%	0.8	15.5
E6	Frü/So	Polen (Nord)	159	9%	4	3%	5%	0.8	16.3
E7	Wi/He	Frankreich (Süd)	147	8%	4	3%	5%	0.8	17.1
E8	So	BeNeLux	200	11%	1	1%	1%	0.2	17.3
E9	So	Atlantik (Mitte)	243	14%	1	0%	1%	0.2	17.5
E10	Wi/He	Atlantik (Mitte)	128	7%	1	1%	1%	0.2	17.7
E11	Wi/He	Atlantik (Süd)	146	8%	0	0%	0%	0	17.7
E12	-	Atlantik (Nord)	185	11%	0	0%	0%	0	17.7
GESAMT			1752	100%	87	5%	100%	17.7	

Tabelle B.2. – Aufschlüsselung der Grenzwertüberschreitungen an verkehrsnahen Messstationen in den Regionen A bis E nach Einzeljahren. Die Wetterlagen sind in absteigender Reihenfolge der Überschreitungsergebnisse insgesamt geordnet.

Cluster	Jahreszeit	Herkunft	ÜS-Er.	2005	2006	2007	2008	2009
A1	Wi/He	Polen (Süd)	47	15	10	2	9	11
A2	Wi	D/PL/CZ	32	1	13	8	5	5
A3	Wi/He	Frankreich (Süd)	30	10	9	7	1	3
A4	Frü/So	Polen (Mitte)	29	12	5	9	0	3
A5	So	BeNeLux	19	11	2	1	0	5
A6	Wi/He	Dänemark	14	2	3	2	3	4
A7	Wi/He	Atlantik (UK)	12	3	4	2	1	2
A8	Wi/He	Ostsee	9	3	3	2	0	1
A9	Wi/He	Atlantik (Süd)	5	3	1	0	0	1
A10	So	Atlantik (Mitte)	4	0	3	0	0	1
A11	-	Atlantik (Nord)	4	0	2	1	1	0
A12	Wi/He	Atlantik (Mitte)	3	0	2	0	0	1
GESAMT			208	60	57	34	20	37
B1	Wi/He	Polen (Süd)	54	17	14	4	8	11
B2	Wi	D/PL/CZ	42	6	15	8	5	8
B3	Frü/So	Polen (Mitte)	30	10	10	6	0	4
B4	Wi/He	Frankreich (Süd)	17	6	8	1	1	1
B5	Frü/So	BeNeLux	13	8	4	0	0	1
B6	Frü/So	Baltikum	8	4	1	2	1	0
B7	-	Nordsee (UK)	5	3	1	0	0	1
B8	Wi/He	Skandinavien	3	1	2	0	0	0
B9	Wi/He	Atlantik (Süd)	2	1	1	0	0	0
B10	Frü/So	Atlantik (Süd)	2	2	0	0	0	0
B11	-	Atlantik (Nord)	1	0	1	0	0	0
B12	Wi/He	Atlantik (Mitte)	1	0	0	1	0	0
GESAMT			178	58	57	22	15	26
C1	Wi	Polen (Süd)	31	7	10	1	6	7
C2	Wi	D (Nord)	30	0	14	5	3	8
C3	Wi/He	Polen (Mitte)	22	15	4	1	0	2
C4	Frü/So	Polen (Nord)	16	6	5	1	0	4
C5	Wi/He	Frankreich (Süd)	11	4	3	3	1	0
C6	Wi/He	Atlantik (UK)	9	2	3	2	1	1
C7	So	BeNeLux	9	5	0	1	0	3
C8	Wi/He	Ostsee	4	1	1	1	0	1
C9	-	Atlantik (Nord)	2	0	1	0	1	0
C10	Wi/He	Atlantik (Mitte)	1	0	1	0	0	0
C11	So	Atlantik (Mitte)	1	0	1	0	0	0
C12	Wi/He	Atlantik (Süd)	1	1	0	0	0	0
GESAMT			137	41	43	15	12	26
D1	Wi	D (stagn)	22	0	7	5	6	4
D2	So	BeNeLux	19	5	3	7	1	3
D3	Wi/He	D/Polen	18	3	4	6	1	4
D4	Wi/He	Frankreich (Süd)	16	3	3	2	6	2
D5	-	Atlantik (antiz.)	15	4	4	4	1	2
D6	So	D/Polen	11	1	1	4	0	5
D7	-	Ostsee	7	3	1	3	0	0
D8	-	Atlantik (Mitte)	2	2	0	0	0	0
D9	So	Atlantik (Süd)	1	0	0	1	0	0
D10	Fr/Wi	Atlantik (UK)	0	0	0	0	0	0
D11	-	Atlantik (Nord)	0	0	0	0	0	0
D12	-	Atlantik (fern)	0	0	0	0	0	0
GESAMT			111	21	23	32	15	20
E1	Wi/He	D (Süd)	25	2	10	2	3	8
E2	Wi	Dänemark	20	1	7	6	1	5
E3	-	D (Nord)	16	10	2	3	1	0
E4	Wi/He	Atlantik (UK)	11	1	1	4	3	2
E5	Wi/He	Baltikum	4	3	1	0	0	0
E6	Frü/So	Polen (Nord)	4	2	0	0	1	1
E7	Wi/He	Frankreich (Süd)	4	2	1	0	0	1
E8	So	BeNeLux	1	0	0	0	0	1
E9	So	Atlantik (Mitte)	1	0	0	1	0	0
E10	Wi/He	Atlantik (Mitte)	1	0	1	0	0	0
E11	Wi/He	Atlantik (Süd)	0	0	0	0	0	0
E12	-	Atlantik (Nord)	0	0	0	0	0	0
GESAMT			87	21	23	16	9	18

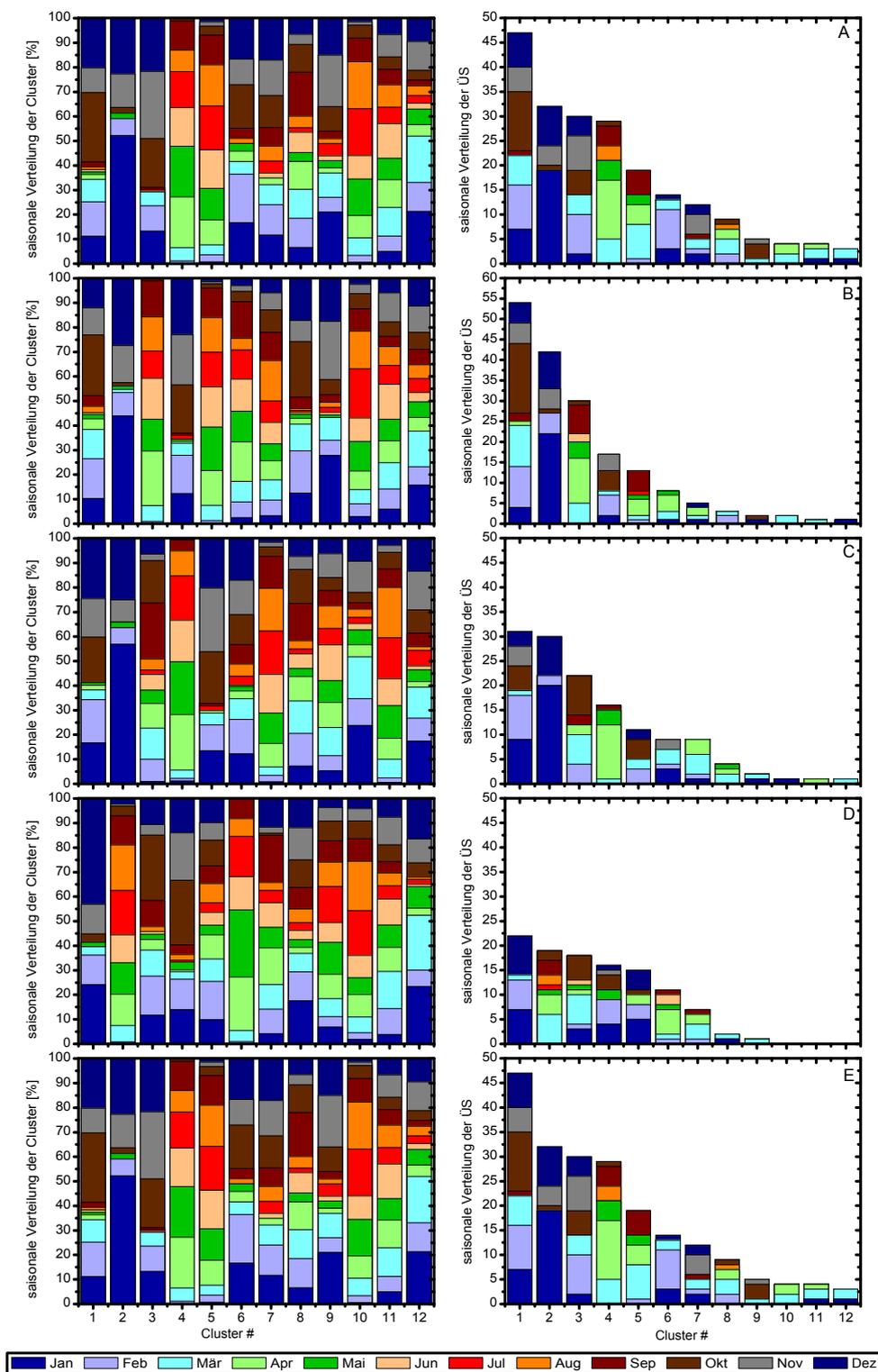


Abbildung B.3. – Detaillierte saisonale Zusammensetzung der 12 Cluster für die Regionen A bis E. a) relative Häufigkeit einzelner Monate in den Clustern, b) absolute Zahl von PM_{10} Grenzwertüberschreitungen 2005 bis 2009 in den einzelnen Monaten an den Verkehrsstationen.

C Ergänzende Grafiken und Tabellen zu Kapitel 7

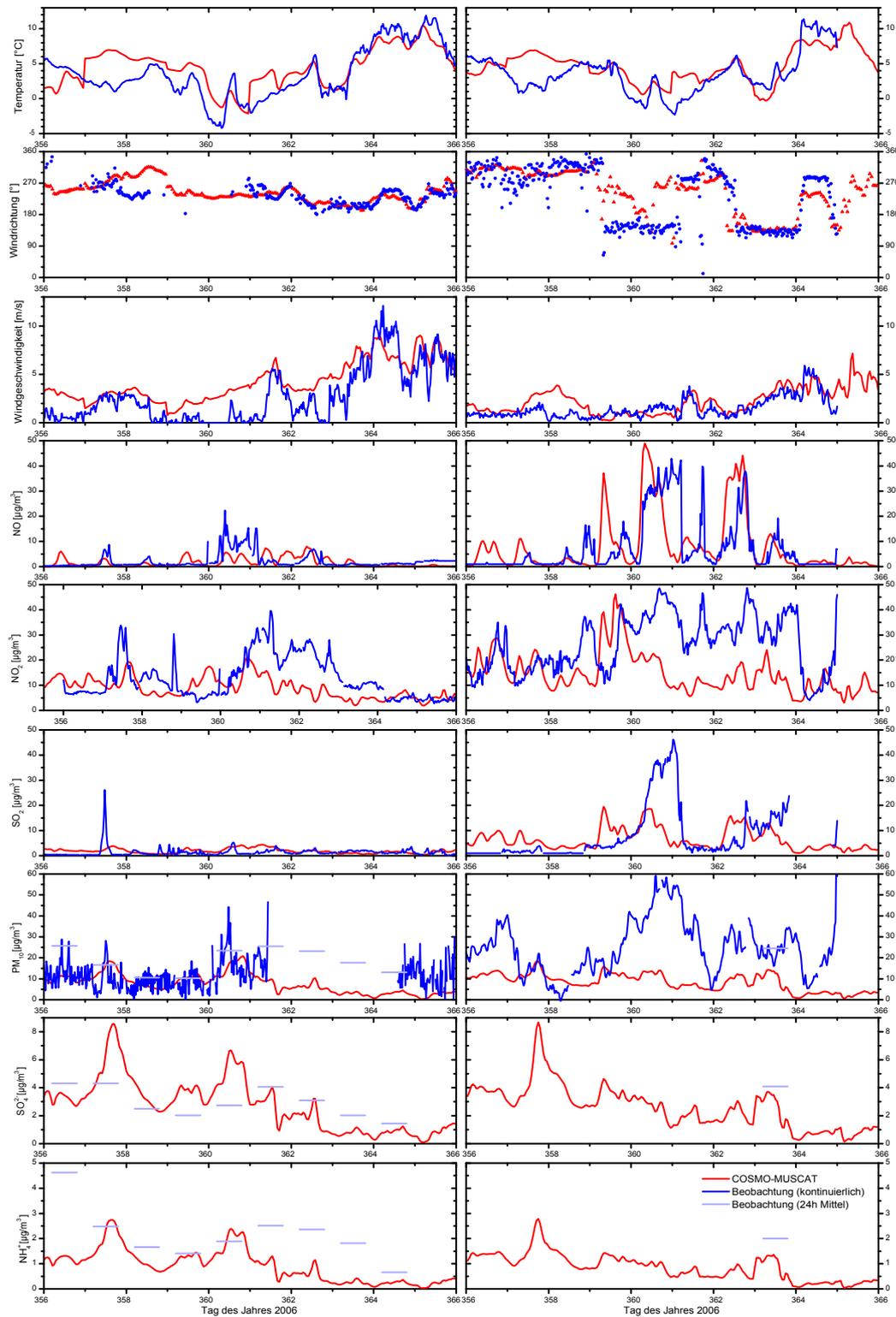


Abbildung C.1. – Vergleich ausgewählter Parameter für den Modelllauf mit massenbasiertem Aerosolschema für die Episode 23.12.2006 bis 1.1.2007 für das Gebiet N3 (Sachsen) mit Beobachtungsdaten aus Melpitz (links) und Dresden (rechts). Die Zeitachse entspricht dem Tag des Jahres seit 1.1.2006, Tag 356 entspricht dem 23.12.2006.

Tabelle C.1. – Mittlere Konzentrationen bzw. Größen über die gesamte Vergleichsepisode (25.3. bis 21.4.2009) für Modell und Messung (Modellläufe R1 bis R4).

Station/ Parameter	Einheit	Beob.	R1	R2	R3	R4
Melpitz						
PM ₁₀ ¹⁾	µg/m ³	31,6	18,8		14,4	12,5
<i>N_{tot}</i>	10 ³ m ⁻³	7,7	14,4	39,2	0,2	0,3
<i>V_{tot}</i>	µm ³ /m ³	15,2	18,7	8,0	7,9	7,7
<i>N_{akk}</i>	10 ³ m ⁻³	1,3	8,0	17,3	0,2	0,3
<i>V_{akk}</i>	µm ³ /m ³	14,9	0,55	6,9	4,7	5,1
<i>D_{p,akk}</i>	nm	199			277	250
PM ₁₀ ²⁾	µg/m ³	31,2			14,1	13,8
Sulfat ³⁾	µg/m ³	3,6			2,9	2,8
Nitrat ³⁾	µg/m ³	8,0			4,1	3,9
Ammonium ³⁾	µg/m ³	3,7			1,9	1,8
Seesalz ³⁾	µg/m ³	0,3			1,6	1,6
Staub ³⁾	µg/m ³	10,2			2,2	2,2
PM ₁ ²⁾	µg/m ³	13,3			7,7	8,4
Sulfat ⁴⁾	µg/m ³	1,8			2,0	2,2
Nitrat ⁴⁾	µg/m ³	2,2			2,8	3,1
Ammonium ⁴⁾	µg/m ³	1,4			1,3	1,4
Seesalz ⁴⁾	µg/m ³	0,1			0,2	0,2
Staub ⁴⁾	µg/m ³	4,3			5,1	0,2
Bösel						
PM ₁₀ ¹⁾	µg/m ³	29,8	23,5		15,2	14,9
<i>N_{tot}</i>	10 ³ m ⁻³	6,7	22,1	50,6	0,2	0,2
<i>V_{tot}</i>	µm ³ /m ³	11,7	24,7	10,3	10,4	10,2
<i>N_{akk}</i>	10 ³ m ⁻³	1,1	10,8	20,5	0,2	0,2
<i>V_{akk}</i>	µm ³ /m ³	11,5	0,75	8,8	5,4	6,1
<i>D_{p,akk}</i>	nm	190			288	261
Waldhof						
PM ₁₀ ¹⁾	µg/m ³	21,2	19,2		12,0	11,7
<i>N_{tot}</i>	10 ³ m ⁻³	6,0	13,5	37,7	0,2	0,2
<i>V_{tot}</i>	µm ³ /m ³	12,7	22,0	8,2	8,4	8,2
<i>N_{akk}</i>	10 ³ m ⁻³	1,2	7,5	17,0	0,2	0,2
<i>V_{akk}</i>	µm ³ /m ³	12,0	0,51	6,9	4,6	5,0
<i>D_{p,akk}</i>	nm	189			260	239

1) Stundenmittel (TEOM)

2) Tagesmittel (Gravimetrie)

3) Massenanteil in PM₁₀

4) Massenanteil in PM₁

Tabelle C.2. – Korrelationskoeffizienten R^2 und mittlere relative Abweichung MNB zwischen Modell und Messung für alle Modellläufe (R1 bis R4) und die gesamte Vergleichsepisode (25.3. bis 21.4.2009). In Fettdruck sind Werte von $R^2 > 0,4$ bzw. $-0,3 < \text{MNB} < 0,3$ (entspricht einer maximalen Abweichung des Modells von $\pm 30\%$ zur Messung).

Station/ Parameter	R^2				MNB			
	R1	R2	R3	R4	R1	R2	R3	R4
Melpitz								
PM ₁₀ ¹⁾	0,08		0,43	0,46	-0,22		-0,51	-0,57
<i>N_{tot}</i>	0,07	0,02	0,09	0	1,9	6,9	-0,96	-0,62
<i>V_{tot}</i>	0,01	0,16	0,43	0,44	0,94	-0,33	-0,42	-0,42
<i>N_{akk}</i>	0,01	0,02	0,05	0,02	7	17	-0,79	1,74
<i>V_{akk}</i>	0,01	0,23	0,19	0,26	-0,93	-0,41	-0,6	-0,57
<i>D_{p,akk}</i>			0	0			0,43	0,29
PM ₁₀ ²⁾			0,55	0,57			-0,55	-0,56
Sulfat ³⁾			0,33	0,37			-0,18	-0,23
Nitrat ³⁾			0,66	0,67			-0,17	-0,26
Ammonium ³⁾			0,46	0,47			-0,38	-0,42
Seesalz ³⁾			0,14	0,05			7,0	6,6
Staub ³⁾			0,14	0,09			-0,78	-0,76
PM ₁ ²⁾			0,54	0,44			-0,55	-0,53
Sulfat ⁴⁾			0,93	0,91			-0,27	-0,31
Nitrat ⁴⁾			0,17	0,02			0,94	0,55
Ammonium ⁴⁾			0,88	0,09			-0,25	-0,34
Seesalz ⁴⁾			0,6	0,14			2,71	2,57
Staub ⁴⁾			0,45	0,27			0,09	-0,72
Bösel								
PM ₁₀ ¹⁾	0,09		0,15	0,16	1,0		-0,26	-0,24
<i>N_{tot}</i>	0,02	0,03	0	0,01	3,3	8,8	-0,95	-0,64
<i>V_{tot}</i>	0	0,37	0,24	0,26	3,2	0,41	0,35	0,43
<i>N_{akk}</i>	0,23	0,08	0	0	13,6	29,5	-0,69	3,64
<i>V_{akk}</i>	0,03	0,13	0,02	0,06	-0,86	-0,19	-0,22	-0,17
<i>D_{p,akk}</i>			0,03	0,03			0,37	0,16
Waldhof								
PM ₁₀ ¹⁾	0,22		0,35	0,34	0,61		-0,21	-0,21
<i>N_{tot}</i>	0	0	0,08	0	1,9	7,2	-0,95	-0,62
<i>V_{tot}</i>	0,04	0,37	0,29	0,29	2,2	-0,19	-0,15	-0,17
<i>N_{akk}</i>	0,19	0,03	0	0	7,3	18,7	-0,78	1,03
<i>V_{akk}</i>	0	0,47	0,22	0,3	-0,92	0,28	-0,49	-0,45
<i>D_{p,akk}</i>			0,02	0,05			0,4	0,22

1) Stundenmittel (TEOM)

2) Tagesmittel (Gravimetrie)

3) Massenanteil in PM₁₀

4) Massenanteil in PM₁

Abbildungsverzeichnis

2.1.	Typische Partikelgrößenverteilung mit vier Partikelmoden.	10
2.2.	Entwicklung der atmosphärischen Grenzschicht.	18
3.1.	Regionale Karte von Leipzig, einschließlich der detaillierten Umgebung der LfULG Luftmessstation Leipzig-Mitte.	28
3.2.	Karte von Deutschland mit den für die betrachteten Regionen verwendeten Stationen.	30
3.3.	Karte von Deutschland mit den für den Modellvergleich verwendeten Stationen aus dem GUAN Netzwerk.	32
4.1.	Schematische Darstellung der Rechenzyklen bei COSMO-MUSCAT. . .	40
4.2.	Nestingtechnik und MUSCAT-Gitter.	41
5.1.	Tagesmittelwerte der PM_{10} Massenkonzentration an den drei Messstationen (verkehrsnahe, urbaner Hintergrund, ländlicher Hintergrund) zwischen 2005-2009.	49
5.2.	Vergleich zwischen ländlichem und verkehrsnahem PM_{10} und das Verkehrsinkrement ΔPM_{10} zwischen 2005-2009.	50
5.3.	Relative Häufigkeit der PM_{10} Massenkonzentrationen, des Verkehrsinkrements und des regionalen PM_{10} Hintergrund-Anteils	52
5.4.	Überschreitungen des PM_{10} Tagesmittel-Grenzwertes an der verkehrsnahen Station Leipzig-Mitte eingeteilt nach Monaten des Jahres.	53
5.5.	Saisonale Abhängigkeit von PM_{10} und $PM_{[2,5;10]}$ in Verkehrsnähe und im ländlichen Hintergrund.	54
5.6.	Chemische Massenfraktionen des ländlichen PM_{10} Hintergrunds für jede Jahreszeit.	55
5.7.	Ergebnisse der Rückwärtstrajektorien-Clusteranalyse, 2005-2009.	59
5.8.	PM_{10} und $PM_{[2,5;10]}$ Massenkonzentration in Verkehrsnähe und im ländlichen Hintergrund.	60
5.9.	Chemische Massenfraktionen des ländlichen PM_{10} Hintergrunds für jedes Cluster.	64
6.1.	Verkehrsinkremente ΔPM_{10} für die einzelnen Regionen.	71
6.2.	Herkunft und saisonales Auftreten der einzelnen Cluster jeder Region. .	73

6.3. Absolute Häufigkeit der Cluster und PM_{10} Massenkonzentrationsmittelwerte für die einzelnen Regionen.	75
7.1. 500 hPa Relative Topographie für ausgewählte Tage der Vergleichsepisode.	86
7.2. PM_{10} Beobachtungsdaten für ausgewählte Tage der Vergleichsepisode.	87
7.3. R1: Simulierte PM_{10} Massenkonzentrationen für das Gebiet Deutschland.	90
7.4. R1: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten.	92
7.5. R2: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten.	94
7.6. R3: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten.	96
7.7. R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Melpitz.	98
7.8. R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Bösel.	99
7.9. R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten für die Station Waldhof.	100
7.10. R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten: chemische Zusammensetzung von PM_{10}	102
7.11. R4: Vergleich zwischen COSMO-MUSCAT/ext-M7 und Beobachtungsdaten: chemische Zusammensetzung von PM_1	103
B.1. Mittlere Pseudopotentielle Temperatur-Profile jedes Clusters für die Regionen A bis E.	138
B.2. Mittelwerte der PM_{10} Massenkonzentration aller Stationen für die Regionen A bis E.	139
B.3. Detaillierte saisonale Zusammensetzung der Cluster für die Regionen A bis E.	142
C.1. Vergleich ausgewählter Parameter für den Modelllauf 2006 für das Gebiet N3.	144

Tabellenverzeichnis

3.1. Endpunkte der Rückwärtstrajektorien und Standorte der verwendeten Radiosondenaufstiege.	31
4.1. Übersicht über die prognostischen Modellvariablen der einzelnen Moden von ext-M7.	44
5.1. Mittlere PM ₁₀ und PM _{2,5} Massenkonzentration (μ), in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zwischen 2005-2009.	48
5.2. Anzahl der Überschreitungen des Tagesmittel-Grenzwertes von PM ₁₀ pro Jahr.	51
5.3. Charakterisierung der Überschreitungstage verglichen mit nicht-Überschreitungstagen.	58
5.4. Häufigkeit, mittlere meteorologische Parameter und Spurengaskonzentrationen für jedes Cluster.	62
6.1. Zuordnung der einzelnen Cluster jeder Region zu Herkunftsgebieten und saisonalem Auftreten.	72
6.2. Beitrag verschiedener Wetterlagen zur Zahl der PM ₁₀ Grenzwertüberschreitungen in den Regionen A bis E.	77
7.1. Emissionsparametrisierung für die pPM _{2,5} Gesamtmasse.	84
7.2. Überblick über die einzelnen Modellläufe R1 bis R4.	89
7.3. Korrelationskoeffizienten und mittlere relative Abweichung zwischen Modell und Messung für Lauf R4.	105
A.1. Übersicht über die einzelnen Stationen in jeder Region.	133
A.2. Abkürzungen aus Tabelle A.1.	136
B.1. Beitrag verschiedener Wetterlagen zur Zahl der PM ₁₀ Grenzwertüberschreitungen in den Regionen A bis E.	140
B.2. Aufschlüsselung der Grenzwertüberschreitungen nach Einzeljahren in den Regionen A bis E.	141
C.1. Mittlere Konzentrationen bzw. Größen für Modell und Messung (Modellläufe R1 bis R4).	145

C.2. Korrelationskoeffizienten und mittlere relative Abweichung zwischen Modell und Messung.	146
---	-----

Abkürzungen

ACTRIS	<i>Aerosols, Clouds, and Trace gases Research Infra-Structure network</i>
AERONET	<i>AERosol RObotic NETwork</i>
AGS	Atmosphärische Grenzschicht
AMS	Aerosol-Massen-Spektrometer
AOD	aerosloptische Dicke
APS	<i>Aerodynamic Particle Sizer Spectrometer</i> , Aerodynamisches Partikelspektrometer
AQMEII	<i>Air Quality Model Evaluation International Initiative</i> , Internationale Initiative zur Evaluierung von Luftqualitätsmodellen
AtofMS	Aerosol time-of-flight mass spectrometry
BC	<i>Black Carbon</i> , Schwarzer Kohlenstoff
BPC	<i>bulk to particle conversion</i> , Zerstückelung von Festkörpern
CCN	<i>cloud condensation nucleus</i> , Wolkenkondensationskeim
COSMO	<i>Consortium of Small-Scale MOdelling</i> , Lokalmodell des Deutschen Wetterdienstes, früher LM
COSMO-MUSCAT	Gekoppeltes Modellsystem bestehend aus COSMO und MUSCAT
CTM	<i>Chemistry Transport Model</i> , Chemie-Transport-Modell
Cu	Cumulus
DMS	Dimethylsulfid
DWD	Deutscher Wetterdienst
EC	<i>Elemental Carbon</i> , Elementarer Kohlenstoff
ECHAM5	<i>Atmospheric general circulation model</i> , Hamburg

ECMWF	<i>European Center for Medium-Range Weather Forecasts</i> , Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersage
EMEP	<i>European Monitoring and Evaluation Programme</i>
EU	Europäische Union
ext-M7	Erweitertes (<i>extended</i>) größen aufgelöstes Aerosol-Mikrophysikmodul
GAW	<i>Global Atmosphere Watch</i> , Globale Überwachung der Erdatmosphäre
GCM	<i>General Circulation Model</i>
GME	Globalmodell des Deutschen Wetterdienstes
GPC	<i>gas to particle conversion</i> , Phasenübergang von der Gas- in die Partikelphase
GSD	geometrische Standardabweichung
GUAN	<i>German Ultrafine Aerosol Network</i>
HYSPLIT	<i>HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory</i>
IMEX	implizit-explizit Schema zur Zeitintegration bei MUSCAT
ISORROPIA	<i>thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols</i>
KFZ	Kraftfahrzeug
LfULG	Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie
LWC	<i>liquid water content</i> , Flüssigwassergehalt
M7	Größen aufgelöstes Aerosol-Mikrophysik-Modul
MEZ	Mitteleuropäische Zeit
MNB	<i>mean normalized bias</i> , Mittlere relative Abweichung
MUSCAT	MUltiScale Chemistry Atmospheric Transport
N1	Modellgebiet 1 (Europa) mit räumlicher Auflösung 28 km × 28 km
N2	Modellgebiet 2 (Deutschland) mit räumlicher Auflösung 7 km × 7 km

NOAA	<i>National Oceanic and Atmospheric Administration</i>
OC	<i>Organic Carbon, Organischer Kohlenstoff</i>
OPC	<i>optical particle counter, Optischer Partikelzähler</i>
PGV _a	Partikelanzahlgrößenverteilung
PGV _v	Partikelvolumengrößenverteilung
PM	<i>Particulate Matter</i>
PM ₁	<i>Particulate Matter</i> < 1 μm
PM ₁₀	<i>Particulate Matter</i> < 10 μm
PM _{10,1}	<i>Particulate Matter</i> < 10 μm im ländlichen Hintergrund
PM _{10,u}	<i>Particulate Matter</i> < 10 μm im urbanen Hintergrund
PM _{10,V}	<i>Particulate Matter</i> < 10 μm in Verkehrsnähe
PM _{2,5}	<i>Particulate Matter</i> < 2,5 μm
PM _[2,5;10]	<i>Particulate Matter</i> zwischen 2,5 und 10 μm
	PM _{2,5;10} = PM ₁₀ - PM _{2,5}
Δ PM ₁₀	Verkehrsinkrement von PM ₁₀ ΔPM ₁₀ = PM _{10,V} - PM _{10,1}
pOC	primär emittierter organischer Kohlenstoff
pPM ₁₀	primär emittierter PM ₁₀
pPM _{2,5}	primär emittierter PM _{2,5}
pPM _{grob}	primär emittierter Grobstaub PM _[2,5;10]
RACM-MIM2	<i>Regional Atmospheric Chemistry Mechanism - Mainz Isoprene Mechanism 2</i>
RaSo	Radiosondenaufstieg
RWT	Rückwärtstrajektorie
Sc	Stratocumulus
SIA	<i>secondary inorganic aerosol</i> , sekundär gebildetes anorganisches Aerosol
SOA	<i>secondary organic aerosol</i> , sekundär gebildetes organisches Aerosol
TEOM	<i>Tapered Element Oscillating Microbalance</i> , Oszillierende Mikrowaage
TROPOS	Leibniz-Institut für Troposphärenforschung, Leipzig
TROPOS-SMPS	<i>Scanning Mobility Particle Sizing System</i> , Scannendes Partikelspektrometer

TROPOS-TDMPS	<i>Twin Differential Mobility Particle Sizing System</i> , Differenzielles Partikelgrößenspektrometer
UBA	Umweltbundesamt
UTC	<i>Universal Time Coordinated</i> , koordinierte Weltzeit
WHO	<i>World Health Organization</i> , Weltgesundheitsorganisation

Symbole

a_l	Wichtungparameter für die Clusteranalyse
α	Signifikanzniveau
D_p	Partikeldurchmesser
D_a	Aerodynamischer Partikeldurchmesser
k	Anzahl der Trajektorienpunkte
L	Euklidische Distanz
M	Massenkonzentration
M_i	Massenkonzentration im jeweiligen Mode
μ	Mittelwert (z.B. der Partikelmassenkonzentration)
N	Anzahlkonzentration
N_i	Anzahlkonzentration im jeweiligen Mode
n	Anzahl der Trajektoriencluster
R^2	Korrelationskoeffizient
$R_{tr.}$	trockener Partikelradius
σ	Breite der Log-Normalverteilung
σ_i	Breite des jeweiligen Mode
σ_μ	Standardabweichung des Mittelwertes
T	Temperatur
Θ_e	Pseudopotentielle Temperatur
V	Volumenkonzentration
v_d	Depositionsgeschwindigkeit
x	geographische Länge

y geographische Breite

z Höhe über Grund

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all jenen recht herzlich bedanken, die mich während meiner Promotion begleitet und unterstützt haben. Mein Dank gilt der Deutschen Bundesstiftung Umwelt (DBU), deren Stipendienprogramm mir die Promotion überhaupt erst ermöglicht hat. Herrn Prof. Dr. Alfred Wiedensohler danke ich für die Bereitstellung des Themas, die Möglichkeit der Promotion in der Abteilung Aerosol und Wolken am Leibniz-Institut für Troposphärenforschung sowie die Begutachtung meiner Dissertation und dafür, dass er stets an das Gelingen meiner Arbeit geglaubt hat.

Besonderer Dank gilt meinem Betreuer Wolfram Birmili für die fachliche Unterstützung und die gute Zusammenarbeit.

Außerdem danke ich Ralf Wolke für die Einführung in die Atmosphärenmodellierung, die Rechnungen und vielfache Hilfestellung bei Fragen zur Modellierung; Gerald Spindler für die Bereitstellung der Messdaten aus Melpitz sowie fachliche Unterstützung die Chemie der Atmosphäre betreffend und Ina Tegen für die motivierenden Worte, anregenden Diskussionen und nicht zuletzt für die Eröffnung einer Perspektive, die erheblich zur zügigen Fertigstellung meiner Arbeit beigetragen hat.

Danke an André Sonntag und Kay Weinhold für die Bereitstellung der Daten aus dem GUAN-Netzwerk sowie dem Sächsischen Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG) und dem Umweltbundesamt (UBA) für die Bereitstellung der Luftgüte- und Meteorologie-Messdaten.

Dank der Pasta-Community für viele aufmunternde und motivierende Mittagspausen.

Meinen Kollegen im Zimmer 215 und der gesamten Abteilung danke ich für die angenehme Arbeitsatmosphäre und gute Zusammenarbeit.

Nicht zuletzt möchte ich meiner Familie danken, meinem großen und den beiden kleinen Sonnenscheinchen für ihre Unterstützung, viel Verständnis und Geduld und ihr immer wieder ansteckendes Lachen!

Publikationen

wissenschaftliche Artikel

C. Engler, W. Birmili, G. Spindler, and A. Wiedensohler. Analysis of exceedances in the daily PM₁₀ mass concentration (50 µg/m³) at a roadside station in Leipzig, Germany. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12:10107-10123, 2012.

C. Engler, D. Rose, B. Wehner, T. Tuch, A. Wiedensohler, and W. Birmili. Size distributions of non-volatile particle residuals (D_p < 800 nm) at a rural site in Germany and relation to air mass origin. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7:5785-5802, 2007.

C. Engler, H. Lihavainen, M. Komppula, V.-M. Kerminen, M. Kulmala, and Y. Viisanen. Continuous measurements of aerosol properties at the Baltic Sea. *Tellus B*, 59:728-741, 2007.

W. Birmili und C. Engler. Studie zur Charakterisierung und Quantifizierung der räumlichen Herkunft der PM₁₀-Belastung an hoch belasteten Orten. *Texte des Umweltbundesamtes*, Forschungskennzahl 312 01 283, Oktober 2012.
<http://www.uba.de/uba-info-medien/4359.html>

G. Löschau, W. Birmili, C. Engler, K. Weinhold, T. Gnauk, E.; Brüggemann, K. Müller, H. Herrmann, and A. Wiedensohler. Measurement of the number concentration of ultrafine particles in ambient in an air quality monitoring network - Part 3: Spatial variation of the particle concentration and main sources in an agglomeration. *Gefahrstoffe Reinhaltung der Luft*, 71:57-63, 2011.

A.-P. Hyvarinen, M. Komppula, C. Engler, N. Kivekas, V.-M. Kerminen, M. Dal Maso, Y. Viisanen, and H. Lihavainen. Atmospheric new particle formation at Utö, Baltic Sea 2003-2005. *Tellus B*, 60:345-352, 2008.

N. Kivekäs, V.-M. Kerminen, C. Engler, H. Lihavainen, M. Komppula, Y. Viisanen, and M. Kulmala. Particle number to volume concentration ratios at two measurement sites in Finland. *Journal of Geophysical Research*, 112(D4):D04209, 2007.

D. Rose, B. Wehner, M. Ketzler, C. Engler, J. Voigtländer, T. Tuch, and A. Wiedensohler. Atmospheric number size distributions of soot particles and estimation of emission factors. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6:1021-1031, 2006.

B. Wehner, T. Petäjä, M. Boy, C. Engler, W. Birmili, T. Tuch, A. Wiedensohler, and M. Kulmala. The contribution of sulfuric acid and non-volatile compounds on the growth of freshly formed atmospheric aerosols. *Geophysical Research Letters*, 32:L17810, 2005.
doi:10.1029/2005GL023827

Konferenzbeiträge

C. Engler, W. Birmili, G. Spindler, and A. Wiedensohler. Analysis of the factors leading to exceedances in the daily PM₁₀ limit value (50 µg/m³) at a roadside monitoring site in Leipzig, Germany. *International Aerosol Conference (IAC) 2010*, Helsinki, Finland, 30 August-3 September 2010.

C. Engler, W. Birmili, R. Wolke, and A. Wiedensohler. Description of the atmospheric aerosol on the mesoscale: Field observation and model simulations. *European Aerosol Conference (EAC) 2009*, Karlsruhe, Germany, 6-11 September 2009.

C. Engler, H. Lihavainen, M. Komppula, V.-M. Kerminen, M. Kulmala, and Y. Viisanen. Two and a half years of continuous measurements of aerosol properties at Baltic Sea. *Report Series in Aerosol Science: Proceedings of BACCI, NECC and FcoE activities 2005*, Eds.: M. Kulmala, A. Lindroth, T. Ruuskanen, 123-126, 2006.

C. Engler, W. Birmili, D. Rose, B. Wehner, and A. Wiedensohler. Non-volatile aerosol particle fractions related to air mass origin. *Abstracts of the European Aerosol Conference 2005*, Ghent, Belgium, [699], Ed.: W. Maenhaut, 2005.

Lebenslauf

Christa Engler

Augustenstraße 24

04317 Leipzig

e-mail engler@tropos.de

Telefon 0176 28019822

Persönliche Angaben

Geburtstag, Geburtsort	21.12.1980, Bernburg
Familienstand	ledig, 2 Kinder
Staatsangehörigkeit	deutsch

Berufliche Tätigkeiten

seit 04/2013	Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS), Leipzig Abteilung Modellierung wissenschaftliche Mitarbeiterin
01/2007 - 03/2013	Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS), Leipzig Arbeitsgruppe Troposphärisches Aerosol Doktorandin
03/2007 - 05/2008 und 05/2011 - 06/2012	Unterbrechung (Elternzeit)
01/2007 - 02/2011	Promotionsstipendium der Deutschen Bundesstiftung Umwelt (DBU)
08 - 12/2006	Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS), Leipzig Arbeitsgruppe Troposphärisches Aerosol Wissenschaftliche Mitarbeiterin

05/2005 - 06/2006 **Finnisches Meteorologisches Institut (FMI), Helsinki**
Abteilung Research and Development
Wissenschaftliche Mitarbeiterin

03 - 04/2005 **Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS), Leipzig**
Arbeitsgruppe Troposphärisches Aerosol
Wissenschaftliche Hilfskraft

01/2003 - 02/2005 **Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS), Leipzig**
Arbeitsgruppe Troposphärisches Aerosol
Studentische Hilfskraft

Studium und Schulbildung

08/2005 - 05/2006 **Universität Helsinki**
Post-graduate student in der
wissenschaftlichen Fakultät,
Department of Physical Sciences

10/1999 - 02/2005 **Universität Leipzig**
Studium der Meteorologie
Abschluss: Diplom Meteorologin

09/1990 -07/1999 **Gymnasium Carolinum, Bernburg**
Abschluss: Abitur

09/1987 - 08/1990 **Polytechnische Oberschule „Wilhelm von Humboldt“, Bernburg**

Bibliographische Beschreibung

Engler, Christa

Meteorologische Einflüsse auf die Konzentrationen feiner und grober atmosphärischer Aerosolpartikel in Deutschland

Universität Leipzig, Dissertation

156 S., 191 Lit., 34 Abb., 17 Tab.

Referat:

Atmosphärische Aerosolpartikel können durch ein breites Spektrum an natürlichen oder anthropogenen Emissionen mit unterschiedlich hohen Konzentrationen in die Atmosphäre freigesetzt werden. Sie beeinflussen den Strahlungshaushalt und damit auch das Klima der Erde und können außerdem durch ihre Präsenz in der Atmosphäre Wechselwirkungen mit Mensch und Natur, also dem gesamten Ökosystem haben. Seit dem Jahr 2010 gelten in der EU Grenzwerte für die PM_{10} Tagesmittelkonzentration, die jedoch bereits wenige Monate nach Beginn der Gültigkeit an vielen Messstationen überschritten wurden. Das Ziel der vorliegenden Arbeit war eine objektive Bewertung der Herkunft und des Zustandes der an einem Messort ankommenden Luftmasse und der damit verbundenen Schadstoffniveaus.

Im ersten Teil der Arbeit wurden PM_{10} Messdaten aus fünf Jahren in und um Leipzig sowie analog in fünf verschiedenen Regionen deutschlandweit in Bezug auf PM_{10} Grenzwertüberschreitungen untersucht. Es wurden Rückwärtstrajektorien für eine Clusteranalyse verwendet, mit der spezifische Wetterlagen unterschieden wurden und diesen dann die einzelnen Messtage mit den zugehörigen Schadstoffkonzentrationen zugeordnet wurden. Hierbei wurde deutlich, dass durch entsprechende meteorologische Bedingungen sowohl lokal als auch regional emittierte Schadstoffe in Bodennähe akkumulieren oder aber auch räumlich verteilt werden können.

Außerdem wurde in dieser Arbeit eine Modellvalidierung vorgestellt. Es wurde das Modellsystem COSMO-MUSCAT/ext-M7 verwendet, dessen Ergebnisse mit Beobachtungsdaten verglichen wurden. Als erstes wurde die Beschreibung der meteorologischen Bedingungen, dann die räumliche Verteilung von PM_{10} , die chemische Partikelzusammensetzung sowie physikalische Aerosolparameter wie Partikelanzahl, -volumen und -durchmesser verglichen. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass nach wie vor Probleme bei der Beschreibung der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften bestehen. Die Größenordnungen der verglichenen Parameter können vom Modell abgebildet werden, dennoch müssen Modellergebnisse nach wie vor mit Vorsicht interpretiert werden, insbesondere hinsichtlich von Prozessen, bei denen die Partikelanzahl eine Rolle spielen.

