

**Deutsches Zentrum
für Luft- und Raumfahrt e.V.**

Forschungsbericht 2003-15

Globale Auswirkung des Straßenverkehrs
auf die chemische Zusammensetzung
der Atmosphäre

Sigrun Matthes

Institut für
Physik der Atmosphäre
Oberpfaffenhofen

Dissertation
der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-
Universität München

174 Seiten
42 Bilder
36 Tabellen
116 Literaturstellen



Gutachter der Dissertation

Erster Gutachter: Prof. Dr. R. Sausen

Zweiter Gutachter: Prof. Dr. P. Fabian

Tag der Abgabe : 30. April 2003

Tag der mündlichen Prüfung: 7. Juli 2003

Globale Auswirkung des Straßenverkehrs auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre

Dissertation
der Fakultät für Physik der
Ludwig–Maximilians–Universität München

Sigrun Matthes

Institut für Physik der Atmosphäre
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) e.V.
D-82234 Weßling

Oberpfaffenhofen, April 2003

Straßenverkehr, Emissionen, NMHC, Troposphärenchemie, Klimawirkung, Ozon, Hydroxyl

Globale Auswirkung des Straßenverkehrs auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre

Kurzzusammenfassung

Der Straßenverkehr gehört zu den Hauptverursachern von Spurengasemissionen in die Atmosphäre. In der vorliegenden Arbeit wurde im Rahmen einer numerischen Studie mit ECHAM4/CBM-IV der Einfluss dieser Emissionen auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre auf globaler Skala bestimmt. Hierbei wurde erstmals in einem hochaufgelösten globalen Modell die Wirkung der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoff(NMHC)-Emissionen berücksichtigt. Die mit einem verbrauchsorientierten Ansatz berechneten Emissionen des Straßenverkehrs betragen im Jahr 1990 weltweit jährlich (8.8 ± 1.8) Tg [N] Stickoxide, (206 ± 86) Tg [CO] Kohlenmonoxide und die (34.4 ± 18.9) Tg NMHC. Straßenverkehrsemissionen erhöhen auf globaler Skala die Konzentration des Spurengases Ozon, welches eine wichtige Rolle für Oxidationskapazität und Strahlungsbilanz der Atmosphäre spielt. In den Quellregionen der Nordhemisphäre wird die Konzentration von Ozon um mehr als 20% und auch in entlegenen Regionen um mehr als 10% erhöht; in den Tropen im Sommer bis in 10 Kilometer Höhe um mehr als 6%. NO_x -Emissionen sind für etwa 70 % der Ozonzunahme verantwortlich. Zusätzlich beeinflusst der Straßenverkehr die Konzentration des Hydroxylradikals (OH) und so wiederum die Oxidationskapazität der Atmosphäre mit relativen, positiven und negativen, Beiträgen von bis zu 10 %. Im Sommer führt er in den nördlichen Extratropen zu einer OH-Zunahme um 3 %, im Winter zu einer Abnahme um 10%. Diese Veränderung der Konzentration der chemischen Spezies (OH, O_3) bewirkt einen indirekten Strahlungsantrieb auf die Atmosphäre. Die Ozonzunahme durch die Straßenverkehrsemissionen (NO_x , CO, NMHCs) bewirkt im globalen Jahresmittel einen indirekten Strahlungsantrieb von 0.058 W/m^2 . Die Veränderung im Hydroxylradikal ändert die Lebensdauer von Methan, wodurch sich ein indirekter Strahlungsantrieb von 0.006 W/m^2 (globales Jahresmittel) ergibt. Hierbei ist zu unterstreichen, dass dieser straßenverkehrsinduzierte Strahlungsantrieb zeitlich und räumlich inhomogen ist und sogar ein positives Vorzeichen besitzen kann (z.B. Frühling). Die Studie zeigte, dass NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs entscheidend zur Gesamtwirkung des Straßenverkehrs beitragen.

Road traffic, emissions, NMHC, tropospheric chemistry, radiative forcing, ozone, hydroxyl

Global impact of road traffic emissions on chemical composition of the atmosphere

Short abstract

Road traffic represents one of the main sources of emissions to the atmosphere. This work determines the impact of road traffic emissions on the chemical composition of the atmosphere by a numerical modelling study with ECHAM4/CBM-IV. For the first time, global impact of non-methane-hydrocarbon-emissions (NMHCs) from road traffic is presented. Annual, global emissions from road traffic following a consumption-based approach amount to (8.8 ± 1.8) Tg [N] nitrogen oxides, (206 ± 86) Tg [CO] carbon-monoxide, and (34.4 ± 18.9) Tg NMHCs. Road traffic emissions cause an increase of ozone, which is an important trace gas for the oxidizing capacity and the radiative budget of the atmosphere. In industrialized regions of the northern hemisphere the increase exceeds more than 20%. In remote regions an increase of more than 10% is calculated. Tropical latitudes show a relative contribution of more than 6% due to road traffic up to 10 km. NO_x -emissions account for about 70% of this ozone increase. Further, road traffic increases and decreases the concentration of hydroxyl radicals (OH) depending on geographical region and season. This again affects the oxidizing capacity and the lifetime of methane. In summer, road traffic causes in northern extratropics a 3% increase of OH, and in winter a decrease of 10%. These changes in chemical composition cause an indirect radiative forcing to the atmosphere. Ozone increases due to road traffic emissions (NO_x , CO, NMHCs) result in an annual and global mean radiative forcing of 0.058 W/m^2 . The indirect forcing due to road traffic-induced changes in the lifetime of methane amounts to 0.006 W/m^2 . This forcing is temporal and spatial inhomogeneous, and can even possess a positive sign (e.g. in spring). Results show that NMHC-emissions considerably contribute to the global impact of road traffic emissions.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Physikalische Prozesse in der Atmosphäre	5
2.2	Emissionen aus der Verbrennung fossiler Treibstoffe im Straßenverkehr	10
2.3	Bedeutung sekundärer Spezies in der Atmosphäre	10
2.4	Chemie in der Troposphäre	13
2.5	Emissionsquellen in der Atmosphäre	18
2.6	Bisherige Studien zur Wirkung anthropogener Emissionen	21
3	Das Modellsystem ECHAM4/CBM-IV	25
3.1	Allgemeines	25
3.2	Wahl der Simulationsmethode	25
3.3	Das Atmosphärenmodell ECHAM4	26
3.4	Das Chemiemodul CBM-IV	27
3.5	Randbedingungen des Modells	28
4	Vergleich des Modellsystems mit Beobachtungsdaten	30
4.1	Allgemeines	30
4.2	Troposphärische NO ₂ -Säulendichten	32
4.2.1	Berechnung der troposphärischen Säulendichten aus Satellitendaten	32
4.2.2	Berechnung der troposphärischen Säulendichten im Modell	32
4.2.3	Geographische Verteilungen	34
4.2.4	Analyse des Jahresganges	34
4.2.5	Diskussion und Bewertung	39
5	Gegenwärtige Emissionen von Spurengasen durch den Straßenverkehr	40
5.1	Kohlendioxidemissionen des Straßenverkehrs	40
5.2	Stickoxidemissionen	41
5.2.1	Existierende Stickoxidemissionskataster	41
5.2.2	Berechnung eines verbrauchsorientierten Katasters	41
5.3	Kohlenmonoxidemissionen	42
5.4	Methan-Emissionen des Straßenverkehrs	43

5.5	Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffemissionen	43
5.5.1	Gesamt-NM-Kohlenwasserstoffemissionen des Straßenverkehrs	43
5.5.2	Emissionen der einzelnen NMHC-Gruppen	44
5.5.3	Isoprenemissionen	45
6	Zukünftige Spurengasemissionen	46
6.1	Einflussgrößen der zukünftigen Entwicklung	46
6.2	Methoden der Abschätzung	47
6.2.1	Ökonomische Betrachtungen	47
6.2.2	Abschätzung an Hand von Protokollvorgaben	50
6.2.3	Abschätzung mittels Szenariotechnik	51
6.3	Zukünftige Emissionsfaktoren	52
6.4	Abschätzung	52
6.5	Vergleich globaler und regionaler Projektionen	55
6.6	Zusammenfassung	56
7	Experimentdesign	57
7.1	Modellsimulationen	57
7.2	Experimente	59
8	Ergebnis der numerischen Experimente	61
8.1	Wirkung der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs	61
8.1.1	Primäre Spezies und Ozon	62
8.1.2	Ferntransport der Wirkung des Straßenverkehrs	72
8.1.3	Photochemische Ozonproduktion durch den Straßenverkehr	75
8.1.4	Wirkung der Emissionen im Jahresverlauf	78
8.1.5	Rolle von PAN	80
8.1.6	Einfluss auf die troposphärische HO _x -Verteilung	83
8.2	Wirkung der einzelnen Spurengasemissionen	86
8.2.1	Vergleich der Wirkung auf Ozon	88
8.2.2	Photochemische Ozonproduktion	90
8.2.3	Wirkung der Stickoxidemissionen	91
8.2.4	Wirkung der NMHC-Emissionen	97
8.2.5	Wirkung der CO-Emissionen	98
8.2.6	Einfluss des Ozonregimes	100
8.2.7	Einfluss auf das Hydroxylradikal (OH)	100
8.2.8	Grundlegende Prozesse für die Wirkung der Straßenverkehrsemissionen	104
8.3	Einfluss der Aromaten	106
8.4	Einfluss auf die troposphärischen Ozonsäulendichten	108
8.4.1	Saisonale Änderung der Säulendichten	108
8.4.2	Wirkung in den Einzelgasstudien	110
8.5	Einfluss inhomogen verteilter Spezies auf die Strahlungsbilanz	113

9 Diskussion und Bewertung	117
10 Zusammenfassung und Ausblick	125
A Verzeichnisse	129
A.1 Abkürzungsverzeichnis	130
A.2 Verzeichnis der chemischen Spezies	131
B Technische Beschreibungen	132
B.1 Emissionen des Straßenverkehrs	132
B.1.1 Zusammensetzung des Abgases	132
B.1.2 Kohlendioxidemissionen des Straßenverkehrs nach IMAGE 2.1	133
B.1.3 Geographische Verteilungen der Emissionen	133
B.1.4 Emissionen der NMHCs: Bindungstypen	133
B.1.5 Emissionen der Sensitivitätsstudie Aromaten	136
B.2 Berechnung eines verbrauchsorientierten Katasters	136
B.2.1 Globale Emissionsmengen des Straßenverkehrs	137
B.2.2 Unsicherheiten des verbrauchsorientierten Ansatzes	139
B.2.3 Vergleich aktivitätsorientierter mit verbrauchsorientiertem Ansatz	147
B.3 Makroökonomische Projektion zukünftiger Emissionen	148
B.4 Mittlerer klimatologischer Zustand	150
B.5 Definition der charakteristischen Regionen	152
C Literaturverzeichnis	153

Kurzfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die Wirkung von Straßenverkehrsemissionen auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre auf globaler Skala bestimmt. Hierbei wurden - erstmals in einer globalen Untersuchung - neben den Stickoxid- und Kohlenmonoxidemissionen, auch die Nicht-Methan-Kohlenwasserstoff(NMHC)-Emissionen des Straßenverkehrs mitberücksichtigt.

Für die Beantwortung dieser Fragestellung wurden numerische Experimente mit dem globalen Modell der Allgemeinen Zirkulation ECHAM4 in Verbindung mit dem Chemiemodul CBM-IV durchgeführt. Die als Eingangsparameter für die Simulationen benötigten Straßenverkehrsemissionen der Stickoxide, des Kohlenmonoxids und der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe wurden auf der Grundlage von Treibstoffverbrauchskatastern abgeschätzt. Demzufolge emittiert der Straßenverkehr weltweit jährlich (8.8 ± 1.8) Tg [N] Stickoxide, (206 ± 86) Tg [CO] Kohlenmonoxide und die (34.4 ± 18.9) Tg NMHC.

Die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs bewirken eine Zunahme des troposphärischen Ozons nicht nur in den Quellregionen der Nordhemisphäre (um mehr als 20 Prozent), sondern auch in den entlegenen Regionen der Nordhemisphäre (um mehr als 12 Prozent). In Einzelgasstudien wurde ermittelt, dass die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs insbesondere in den Quellregionen, die NMHC-Emissionen dagegen in entlegenen Regionen für die Ozonzunahme verantwortlich sind. Die Ozonbildung erfolgt über den NO_x - HO_x -Zyklus, wobei NMHC-Emissionen die vermehrte Bildung der temporären Reservoirspezies des NO_x , PAN (Peroxyacetylnitrat) bewirken und so den Transport der Stickoxide in entlegene Regionen ermöglichen. Den Kohlenmonoxidemissionen des Straßenverkehrs kommt, aufgrund der hohen Hintergrundkonzentrationen, nur eine untergeordnete Rolle für die Ozonbildung zu (weniger als 3 Prozent). Anders ist ihre Bedeutung für die Hydroxylkonzentration in der Atmosphäre einzuschätzen. Die Kohlenmonoxidemissionen des Straßenverkehrs verringern, wie auch die NMHC-Emissionen - im Gegensatz zu den Stickoxidemissionen - die OH-Konzentration in der Atmosphäre. Der Straßenverkehr bewirkt insgesamt im Juli eine Erhöhung der OH-Konzentration um mehr als 3 Prozent, da die Wirkung der Stickoxide (Erhöhung des OH) auf Grund der aktiveren Photochemie in der Nordhemisphäre deutlich stärker als die von CO und NMHCs ist. Im Januar hingegen ist der Einfluss der CO- und NMHC-Emissionen stärker als die Wirkung der Stickoxide, wodurch der Straßenverkehr insgesamt in der Winterhemisphäre eine Abnahme der OH-Konzentration um mehr als 10 Prozent bewirkt. Für die indirekte Klimawirkung des Straßenverkehrs ist es also entscheidend, die Wirkung der CO- und NMHC-Emissionen mit zu berücksichtigen.

Die Emissionen des Straßenverkehrs beeinflussen auf Grund der Bildung von Ozon und Hydroxylradikalen indirekt das Klima. Insgesamt wurde der indirekte Strahlungsantrieb des Straßenverkehrs auf Grund der Ozonstörung mit 0.058 W/m^2 (Jahresmittel) und auf Grund der Hydroxylradikalstörung im Jahresmittel auf 0.006 W/m^2 (Abnahme der Methanlebensdauer um 0.7 %) abgeschätzt. Jedoch ist der Strahlungsantrieb sowohl zeitlich als auch räumlich stark inhomogen, und nur im globalen Jahresmittel nahe Null. Die Reaktion des Klimasystems auf solch inhomogene Störungen ist derzeit noch nicht vollständig bekannt und regionale Unterschiede sind zu erwarten.

In der Zukunft werden die Emissionen des Straßenverkehrs - zumindest regional - weiter zunehmen. Hiermit wird in Quellregionen der Nordhemisphäre nur eine begrenzte weitere Zunahme

von Ozon verbunden sein, da vermehrt Titration von Ozon stattfindet. In Abluftregionen und entlegenen Gebieten wird es dagegen in Zukunft noch verstärkt zu Ozonproduktion kommen, da in diesen Gebieten noch keine Sättigung erreicht ist. Wie die Studien gezeigt haben sind für diese Fernwirkung die NMHC-Emissionen wesentlich, da sie dazu beitragen Stickoxide in entlegene Regionen zu transportieren, in denen sie auf Grund der geringen Hintergrundkonzentrationen eine hohe Ozonproduktivität besitzen. Der Einfluss des Straßenverkehrs auf die Oxidationskapazität der Atmosphäre wird auch in Zukunft räumlich und zeitlich inhomogen sein. Hinsichtlich der Klimawirkung durch OH ist zu erwarten, dass auch zukünftig im weltweiten Jahresmittel ein negativer Strahlungsantrieb entsteht, da CO- und NMHC-Emissionen effektiver reduziert werden als die Stickoxidemissionen.

Kapitel 1

Einleitung

Auf Grund anthropogener Aktivitäten, wie der Verbrennung fossiler Brennstoffe, industrieller Prozesse und der Verbrennung von Biomasse, werden Spurenstoffe gebildet, die in die Atmosphäre emittiert werden. Einige wichtige Komponenten sind z.B. die Spurengase, wie Kohlendioxid (CO_2), Stickoxide (NO_x), Kohlenmonoxid (CO) und Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (engl. *non-methane hydrocarbons*, NMHC) und Partikel. Ein wesentlicher Bereich, in dem fossile Brennstoffe verbrannt und somit Spurengase gebildet werden, ist der Verkehrssektor. Dieser ist je nach betrachtetem Spurengas für 15 bis 35 Prozent der anthropogenen Emissionen verantwortlich [Olivier *et al.*, 1996]. Eine besondere Bedeutung kommt hier dem Straßenverkehr zu, da er alleine je nach betrachtetem Spurengas zwischen 10 und 30 Prozent zu den globalen anthropogenen Emissionen beiträgt. Das Straßenverkehrsaufkommen wird nach Prognosen in der Zukunft weiter zunehmen und damit auch die Emissionsmenge [OECD, 1995]. Für die Länder der OECD wird zwar von einer Verringerung des Emissionsfaktors, also der pro verbrauchtem Liter Treibstoff entstehenden Emissionsmenge, ausgegangen doch führt der stetig steigende Treibstoffverbrauch im Straßenverkehr zu einer weiteren Zunahme der globalen Emissionsmenge im Jahr 2020.

Bei der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre spielen die Spurengase Ozon (O_3) und das Hydroxylradikal (OH) eine entscheidende Rolle. Ozon zählt erstens zu den Spurengasen in der Atmosphäre, die eine Schädigung der Vegetation hervorrufen [Dierkesmann und Sandermann, 2000]. Zweitens bildet Ozon das troposphärische Hydroxylradikal, das die Oxidationskapazität der Atmosphäre bestimmt [Levy *et al.*, 1971]. Die Oxidationskapazität der Atmosphäre entscheidet über die Lebensdauer von Spurengasen in der Atmosphäre [Crutzen und Zimmermann, 1991; Atkinson, 2000], wobei eine Änderung der Lebensdauer strahlungsaktiver Gase, wie Methan, einen Einfluss auf das Klima besitzt. Somit verursacht das Hydroxylradikal indirekt einen Strahlungsantrieb. Drittens beeinflusst Ozon die Strahlungsbilanz in der Atmosphäre direkt, da es strahlungsaktiv ist, und so zu einem direkten Strahlungsantrieb in der Atmosphäre führt [Fishman *et al.*, 1979]. Emissionen, wie Stickoxide, NMHCs und Kohlenmonoxid, spielen eine wichtige Rolle für die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre, da sie zur Bildung von Ozon beitragen [Haagen-Smit, 1952] und somit die Oxidationskapazität der Atmosphäre bestimmen. So tragen die Stickoxide entscheidend zur Ozonbildung bei und werden entsprechend als Vorläufersubstanz bezeichnet. Für die Fernwirkung von emittierten Stickoxiden spielt die sekundäre Spezies Peroxyacetylnitrat (PAN) eine wichtige Rolle. Dieses temporäre Reservoirgas für NO_x ermöglicht einen 'Transport'

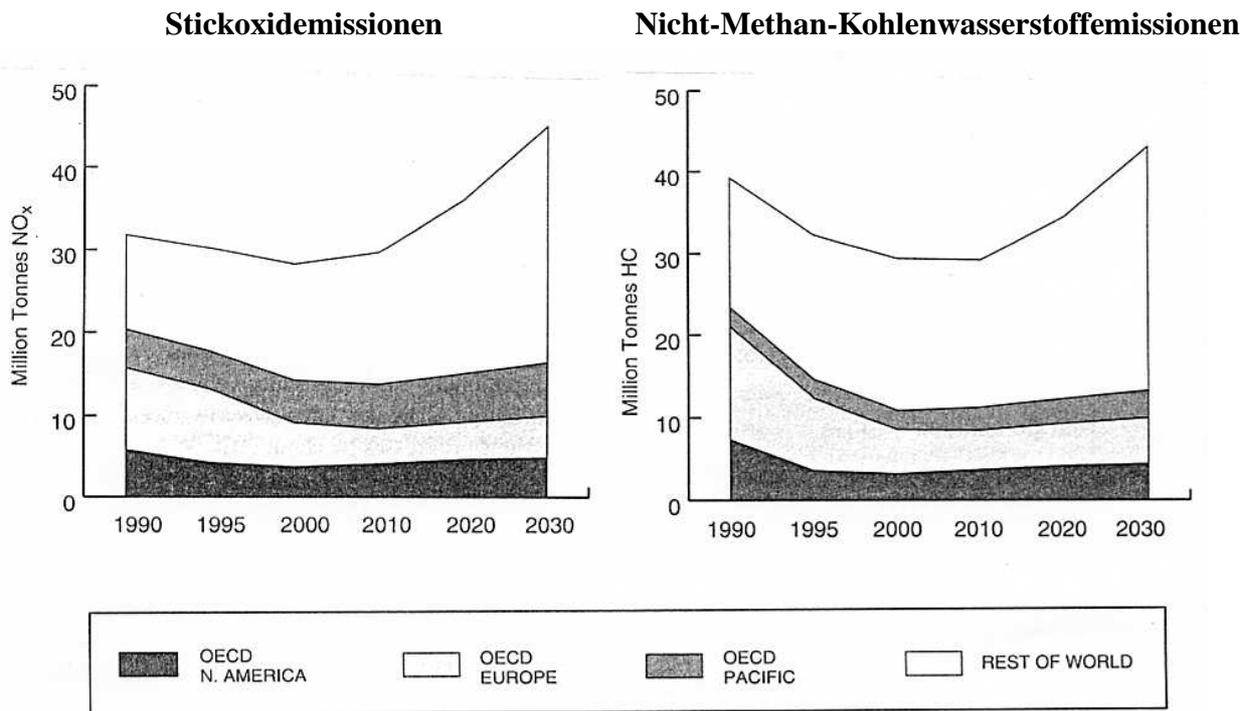


Abbildung 1.1: Entwicklung der zukünftigen weltweiten Straßenverkehrsemissionen der Stickoxide in Mt [NO₂] (1 Mt [NO₂] = 1 Tg [NO₂] = 3.29 · Mt [N]) und der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe in Mt [NMHC] (1 Mt = 1 Tg) nach [OECD, 1995].

von Stickoxiden über weite Entfernungen. Eine ähnliche Rolle bei der Ozonbildung nehmen die Kohlenwasserstoffe ein, die die zweite Vorläufersubstanz für Ozon darstellen. Schließlich besitzt auch das durch den Straßenverkehr emittierte Kohlenmonoxid, das in der Atmosphäre oxidiert wird, das Potenzial Ozon zu bilden. Ozon wiederum spielt mehrere entscheidende Rollen in der Troposphäre. Der Straßenverkehr besitzt also über die Bildung von Ozon und Hydroxylradikal einen indirekten Strahlungsantrieb auf die Atmosphäre und beeinflusst so das Klima. Zusätzlich besitzt der Straßenverkehr einen direkten Strahlungsantrieb auf die Atmosphäre über die Emission der strahlungswirksamen Spurengase Kohlendioxid, Lachgas und Methan.

Um geeignete Strategien für die Ausgestaltung eines umweltschonenden Verkehrs zu entwickeln, d.h. die negativen Auswirkungen des Straßenverkehrs auf die Luftqualität und das Klima zu minimieren, muss ermittelt werden, wie und in welchem Umfang der Straßenverkehr die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre und das Klima beeinflusst. Diese Arbeit soll zur Schaffung einer solchen Beurteilungsgrundlage beitragen, wobei der Schwerpunkt auf der globalen Wirkung chemisch aktiver Spurengase liegt. In dieser Arbeit werden weder Effekte auf lokaler Skala untersucht, noch der entstehende Lärm oder die Umweltveränderungen durch den Bau der Infrastruktur analysiert. Auch bleiben wirtschaftliche und gesellschaftliche Aspekte des Straßenverkehrs (Mobilität) unberücksichtigt. Ziel der Arbeit ist es, die Wirkung der chemisch aktiven Spurengase (NO_x, CO, NMHCs) auf die chemische Zusammensetzung und den indirekten Klimaeinfluss des Straßenverkehrs zu quantifizieren. Hierbei kommt den gasförmigen Bestandteilen

auch zukünftig eine besondere Bedeutung zu, da aktuelle Anstrengungen die Partikelemissionen zu reduzieren, mit der Gefahr verbunden sind, die Stickoxidemissionen wieder zu erhöhen [Jaeger et al., 1999].

Die Auswirkungen anderer Verkehrsträger, beispielsweise von Flugverkehrsemissionen, waren in den letzten Jahren Gegenstand umfangreicher Untersuchungen [Brasseur et al., 1998; Isaksen und Jackman, 1999; Schumann et al., 2001]. Ebenso wurde die Wirkung von Schiffsemissionen untersucht [Capaldo et al., 1999; Lawrence et al., 1999]. Für die Wirkung von Straßenverkehrsemissionen gibt es noch keine umfangreichen Studien. Erste Arbeiten, die das Problem angehen, wurden von Valks und Velders [1999] und Granier und Brasseur [2003] angefertigt. Beide Arbeiten zeigten die wesentliche Bedeutung des Straßenverkehrs im Vergleich zu anderen Emissionsquellen sowohl für das Klima [Valks und Velders, 1999] als auch für das atmosphärische Ozon und die Oxidationskapazität der Atmosphäre [Granier und Brasseur, 2003].

Um die Wirkung der Emissionen des Straßenverkehrs zu berechnen, wird nun ein Modell der Allgemeinen Zirkulation mit umfassender Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe verwendet. Erstmals werden - neben der Wirkung der NO_x - und CO-Emissionen - die Wirkung der NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs bei der Gesamtwirkung des Straßenverkehrs auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre berücksichtigt. In Einzelgasstudien wird die Wirkung der einzelnen Spurengase alleine analysiert um entscheidende Prozesse zu identifizieren.

Die durch den Straßenverkehr emittierten Spurengase beeinflussen zunächst die lokale chemische Zusammensetzung der Atmosphäre. Sie werden jedoch auch chemisch umgesetzt und gleichzeitig transportiert: es liegt also eine Kopplung von atmosphärischem Transport und troposphärischer Chemie vor. Die physikalischen und chemischen Grundlagen sind in Kapitel 2 dargestellt. Um diese komplexen Wechselwirkungen zwischen Chemie und Transport hinsichtlich der Wirkung des Straßenverkehrs weltumspannend zu analysieren, ist es notwendig diese Prozesse in einem globalen Modellsystem zu simulieren. Für die Simulationen wird das globale Modell der Allgemeinen Zirkulation ECHAM4 [Roeckner et al., 1996] in Verbindung mit dem Chemie-Modul CBM-IV [Gery et al., 1989] eingesetzt (Kapitel 3). Das Chemie-Modul umfasst die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe, um die troposphärische Chemie möglichst vollständig abzubilden und diese wichtigen Verbindungen zu berücksichtigen. Um die Realitätsnähe der vom Modell simulierten dynamischen und chemischen Prozesse zu überprüfen, werden die modellierten Konzentrationsverteilungen mit Beobachtungsdaten verglichen (Kapitel 4). Voraussetzung für die Modellierung der Ausbreitung und Wirkung der emittierten Spurengase sind räumlich aufgelöste Emissionsdaten, das heißt es muss bekannt sein, welche Spurengase der Straßenverkehr wo und in welcher Menge emittiert. Im Rahmen dieser Arbeit werden globale Emissionsdatensätze der Spurengasemissionen des Straßenverkehrs berechnet und deren Unsicherheit abgeschätzt (Kapitel 5). Um die Bandbreite möglicher zukünftiger Emissionsmengen aufzuzeigen, werden in Kapitel 6 hierfür Methoden und Abschätzungen für einen Zeithorizont von 20 Jahren gezeigt. In Kapitel 7 werden die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente mit dem Modellsystem beschrieben. Hierzu werden die erstellten Emissionsdatensätze gemeinsam mit Datensätzen der anderen - anthropogenen und natürlichen - Emissionsquellen als Randbedingungen in das Atmosphärenmodell integriert. Durch den Vergleich einer Simulation des Atmosphärenmodells mit Straßenverkehrsemissionen mit einer Simulation, in der die Straßenverkehrsemissionen ausgenommen

wurden, ergeben sich die Auswirkungen des Straßenverkehrs für die atmosphärischen Spurengasverteilungen. Auf diese Weise wird die Wirkung des Straßenverkehrs auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre bestimmt.

Die Ergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit mit dem Modellsystem ECHAM4/CBM-IV durchgeführten numerischen Experimente zum Einfluss des Straßenverkehrs auf die Atmosphäre werden in Kapitel 8 gezeigt. Hierbei wird auch die Wirkung regionaler Emissionen eingehend analysiert, um die Fernwirkung der Emissionen des Straßenverkehrs zu bestimmen. Um die Bedeutung der einzelnen emittierten Spezies - NO_x , CO und NMHC - für die beobachtete Gesamtwirkung der Straßenverkehrsemissionen zu ermitteln, wird ihre Wirkung jeweils in Einzelgasstudien gezeigt. Diese so gewonnene quantitative Abschätzung der Wirkung des Straßenverkehrs auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre bildet die Grundlage für eine Abschätzung der indirekten Klimawirkung des Straßenverkehrs. Da Ozon ein wesentliches strahlungsaktives Spurengas ist, wird zunächst der Einfluss des Straßenverkehrs auf die troposphärischen Ozonsäulendichten quantifiziert. Als Maß der Klimawirkung wird der Strahlungsantrieb - also die Änderung der Strahlungsbilanz auf die Atmosphäre für die berechneten Änderungen der atmosphärischen Verteilungen von Ozon und OH berechnet. Die Unsicherheit der erzielten Ergebnisse auf Grund der Modellwahl, der Emissionsdaten und der Abbildung der Chemie im Modell wird diskutiert (Kapitel 9). Schließlich werden die wesentlichen Ergebnisse in Kapitel 10 zusammengefasst und ein Ausblick gegeben.

Kapitel 2

Grundlagen

Durch die Verbrennung von Treibstoffen im Straßenverkehr werden Spurenstoffe in der Atmosphäre freigesetzt. Spurenstoffe sind in der Atmosphäre sowohl physikalischen (Transport, Deposition) als auch chemischen Prozessen unterworfen. In diesem Kapitel werden zunächst die Grundlagen der in der Troposphäre relevanten Prozesse dargestellt. Der vertikale Aufbau der Atmosphäre und die dynamischen Prozesse sind entscheidend für den Transport der Spurenstoffe. Mittels Deposition können Spurenstoffe aus der Atmosphäre entfernt werden. Für die Klimawirkung des Straßenverkehrs ist der Einfluss der strahlungsaktiven Spurenstoffe auf die Strahlungsbilanz entscheidend. Um die chemischen Grundmechanismen des Einflusses auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre zu verdeutlichen, werden die emittierten Spezies, die Bedeutung gebildeter, sekundärer Spezies (Ozon, Hydroxylradikal, PAN) und wesentliche Reaktionen der troposphärischen Chemie vorgestellt. Als Hintergrund werden die Emissionen aus anderen anthropogenen und natürlichen Quellen zusammengestellt. Schließlich werden die Ergebnisse bisheriger Studien zur Wirkung anthropogener, und hier vor allem verkehrsbedingter, Emissionen in der globalen Atmosphäre dargestellt.

2.1 Physikalische Prozesse in der Atmosphäre

Vertikaler Aufbau der Atmosphäre

Die Atmosphäre wird vertikal in verschiedene Schichten unterteilt (Abbildung 2.1), die deutlich unterschiedliche Eigenschaften aufweisen. Die unterste Schicht wird als planetare Grenzschicht (PBL, engl. *planetary boundary layer*) bezeichnet. Sie reicht - je nach meteorologischer Situation - bis in Höhen von einigen 100 Metern bis 1.5 Kilometern und ist durch turbulente Durchmischung gekennzeichnet. In ihr werden Emissionen aus bodengebundenen anthropogenen (z.B. Industrie, Straßenverkehr, Biomasseverbrennung) und natürlichen (z.B. Mikroorganismen in Böden, Ozeanen) Quellen freigesetzt. Die Lebensdauer von Spurenkomponenten in der PBL ist deutlich geringer als in der darüber liegenden freien Troposphäre. Ursache hierfür sind die Deposition (trocken und nass) und die vergleichsweise höhere chemische Aktivität in der PBL. Die höhere chemische Aktivität ist eine Folge der Abnahme von Druck und Temperatur mit der Höhe (Abbildung 2.1).

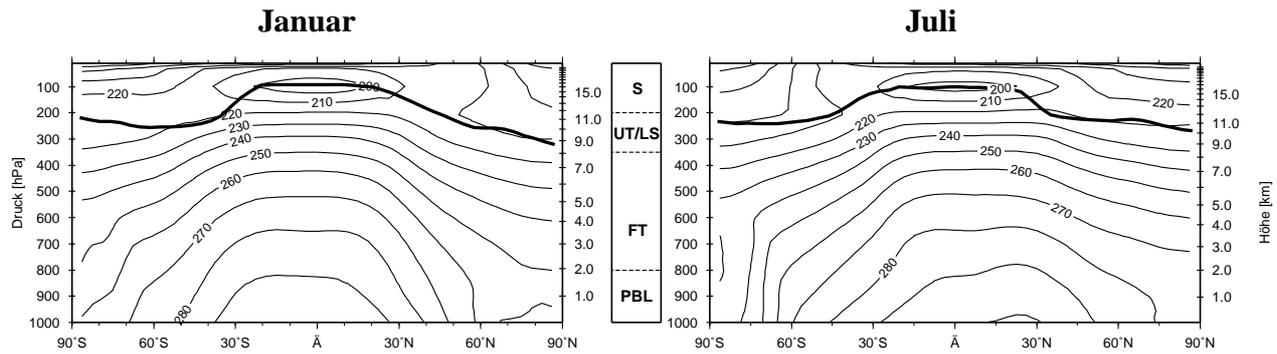


Abbildung 2.1: Breiten-Höhen-Schnitt mit zonal gemittelten Isolinien der Temperatur (in K, Abstand 10 K) für Januar und Juli (Monatsmittel) aus ECHAM4. Die vertikalen Schichten der Atmosphäre - planetare Grenzschicht (PBL), freie Troposphäre (FT), obere Troposphäre (UT), untere Stratosphäre (LS) und Stratosphäre (S) - sind den Höhenbereichen zugeordnet. Der Verlauf der Tropopause (monatsgemittelt) ist eingezeichnet (dicke Linie).

Geringerer Druck und geringere Temperatur führen zu sinkenden Reaktionsraten der chemischen Verlustreaktionen. Der physikalische Verlustprozess, die Nassdeposition, verliert in gleicher Weise an Stärke wie das exponentiell mit der Höhe abfallende Mischungsverhältnis von Wasserdampf. In tropischen Breiten führen die Deposition und die hohe chemische Aktivität dazu, dass in den unteren Schichten der Atmosphäre Ozon abgebaut wird.

Oberhalb der PBL schließt sich die freie Troposphäre an, die durch deutlich höhere typische Lebensdauer der chemischen Spezies gekennzeichnet ist. Die Temperatur und der Luftdruck sind geringer (Abbildung 2.1), wodurch chemische Reaktionen langsamer ablaufen. In der freien Troposphäre kann deswegen ein Transport von Spurenstoffen über große Entfernungen stattfinden. Folglich ist es entscheidend für die Lebensdauer, den Transport und damit für die Wirkung von emittierten Spurenstoffen, ob sie von der PBL in die freie Troposphäre gelangen.

Der Übergangsbereich zwischen Troposphäre und Stratosphäre wird durch die Tropopause in obere Troposphäre (engl. *upper troposphere*, UT) und untere Stratosphäre (engl. *lower stratosphere*, LS) unterteilt. Die UT/LS ist durch geringen Wasserdampfgehalt, geringere Hintergrundkonzentrationen der Spurengase (u.a. Stickoxide, Kohlenmonoxid und Kohlenwasserstoffe) als in PBL und FT und minimale Temperaturen (Abbildung 2.1) gekennzeichnet. Gelangen chemisch aktive emittierte Spurenstoffe in diese Höhenschicht, besitzen sie aufgrund der geringen Hintergrundkonzentrationen ein hohes Potenzial die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre zu beeinflussen. Ozon besitzt in der UT/LS eine relative lange Lebensdauer (Tage bis Monate). Zusammen mit den dort herrschenden niedrigen Temperaturen, besitzt diese Region einen entscheidenden Einfluss auf den Strahlungshaushalt. Die Tropopause als Grenzschicht zwischen Troposphäre und Stratosphäre spielt eine große Rolle für den Stratosphäre-Troposphären-Austausch von Masse und Energie. Sie ist durch verminderten Vertikalaustausch, einen Vorzeichenwechsel beim vertikalen Temperaturgradienten und eine mit der Höhe deutliche Zunahme des Ozonmischungsverhältnisses charakterisiert. Die Tropopause befindet sich in einer Höhe von 15 bis 17 km in tropischen Breiten und in etwa 10 km Höhe in polaren Breiten. In mittleren Breiten zwischen 30° bis 40° Breite befindet sich der Tropopausenbruch, der den Übergang zwischen polarer und tropischer Tropopause darstellt. Diese Region ist für den Transport von Luftmassen und Tracern wesentlich.

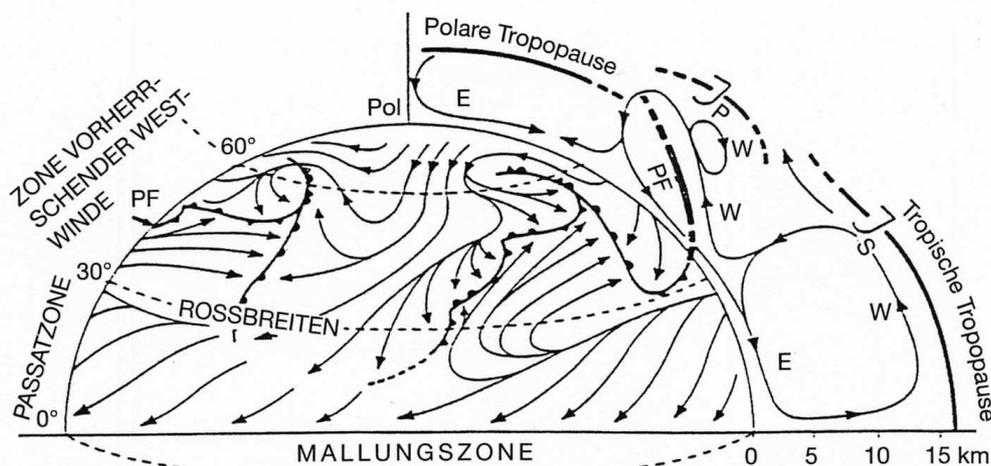


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Allgemeinen Zirkulation der Troposphäre nach Fabian [2002]. PF = Polarfront, W = Westströmung, E = Ostströmung.

Dynamik der Atmosphäre

Neben dem vertikalen Aufbau der Atmosphäre spielen die dynamischen Prozesse in der Atmosphäre eine entscheidende Rolle für die Wirkung von emittierten Spurenstoffen auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre. Die dynamischen Prozesse in der Atmosphäre finden auf unterschiedlichen Skalen statt. Eine ausführliche Darstellung findet sich beispielsweise in Dutton [1976]. Die grundsätzliche treibende Kraft für dynamische Prozesse in der Atmosphäre ist die solare Einstrahlung. Die hohe solare Einstrahlung in den Tropen verursacht einen Temperaturgradienten zu den Polen, der sich ausgleichen will. Aus den in tropischen Breiten aufsteigenden Luftmassen, die in höhere Breiten transportiert werden und in etwa 30° wieder absinken, entsteht eine mittlere Zirkulation, die Hadley-Zirkulation genannt wird. Die genaue Lage der Zellen variiert mit dem Sonnenstand und damit mit den Jahreszeiten. In Bodennähe ergibt sich durch den Rückfluss an Luftmassen aus dem Subtropenhoch starke Konvergenz verbunden mit Westströmung, weshalb diese Zone auch als innertropische Konvergenzzone (engl. *intertropical convergence zone*, ITCZ) oder Mollungszone bezeichnet wird. Diese dynamische Struktur wird in hohen Breiten um Ferrel-Zellen und polare Zellen erweitert. Ein Teil der Luftmassen der Hadley-Zirkulation wird nach dem Absinken in etwa 30° zu den Polen hin abgelenkt. Treffen diese Luftmassen auf polare Luftmassen (Polarfront) werden sie angehoben. Diese aufsteigenden Luftmassen fließen in der Höhe zu niedrigeren Breiten ab. Die indirekten Zellen, die durch das Absinken in der Hadley-Zirkulation und das Aufsteigen der Luftmassen in den höheren Breiten (45° bis 60°) entstehen, werden als Ferrel-Zellen bezeichnet. Schließlich finden sich in der polaren Troposphäre Zirkulationszellen (polare Zellen) die ein Absinken über dem Pol verbunden mit einer östlichen Strömung bewirken. In diesen Zellen - Hadley, Ferrel und polare - wird Energie aus den Tropen zu den Polen transportiert. Der Transport von Temperatur und Luftmassen läuft nicht laminar ab, sondern Hoch- und Tiefdruckgebiete bilden sich aus. Durch die Bewegung in einem rotierenden Bezugssystem wirken Coriolis- und Zentripetalkraft, die die Bewegungsrichtung der Wettersysteme vorgibt. In diesen Systemen besteht angenähert Gleichgewicht zwischen Druckgradientenkraft und Corioliskraft. Dies wird als geostrophische Näherung bezeichnet und dominiert den horizontalen Wind. Auf kleineren Skalen

spielen turbulente, diffusive und konvektive Prozesse für den Transport eine Rolle.

Die Emissionen des Straßenverkehrs werden in der PBL freigesetzt. Der Horizontaltransport geschieht über die vorherrschenden Winde. Vertikale Bewegungen und turbulente Prozesse bewirken, dass die Spurenstoffe in die freie Troposphäre eingemischt werden. Hierdurch wird rasch eine Verdünnung des ursprünglichen Abgases erreicht. Die Spurenstoffe werden mit den Luftmassen transportiert. In der Nähe des Bodens dominiert noch der Einfluss der Reibung an dieser Oberfläche für die Bewegung dieser Luftmassen. Je weiter Luftmassen vom Boden entfernt sind, desto mehr kann der Bodeneinfluss vernachlässigt werden. Die Verteilung der Hoch- und Tiefdrucksysteme spielt auf einer Skala von mehreren Tausend Kilometern eine Rolle. Schließlich beeinflussen die globalen Zirkulationsmuster die Verteilung und damit die Wirkung der Spurenstoffe. In diesem Zusammenhang wird in der vorliegenden Arbeit der Begriff des Abluftgebiets verwendet, der dem englischen Begriff *downwind* angelehnt ist. Diese Gebiete sind Nicht-Quellgebiete, in die Luftmassen transportiert werden, die mit Spurengasen aus Quellregionen angereichert sind. Typischerweise befinden sie sich direkt angrenzend an Quellregionen und weisen mit zunehmender Entfernung von den Quellen starke Gradienten in den Mischungsverhältnissen auf.

Durch die starke Konvektion in den Tropen werden emittierte Spurenstoffe in tropischen Breiten leicht in höhere Schichten und damit tendenziell in Regionen, die durch längere Lebensdauern charakterisiert sind, transportiert. Andererseits kommt den Tropen durch die maximale solare Einstrahlung eine besondere Bedeutung zu. Erstens ist die Temperatur hoch, und zweitens weist die OH-Konzentration ein Maximum in diesen Breiten auf. Somit ist in den Tropen die atmosphärische Oxidationseffizienz maximal. In den Tropen wird ozonarme Luft in große Höhen transportiert. In der oberen Troposphäre hingegen findet wiederum Ozonproduktion statt.

Deposition

Neben dem Transport ist die Deposition von Spurenstoffen ein weiterer wichtiger Prozess für die Wirkung von emittierten Spurenstoffen in der Atmosphäre. Durch Deposition werden Spurengase und Partikel aus der Atmosphäre entfernt. Es gibt zwei mögliche Formen der Deposition: die Trocken- und die Nassdeposition. Bei der trockenen Deposition setzen sich Substanzen mit einer bestimmten Depositionsgeschwindigkeit direkt auf Oberflächen ab und werden so aus der Atmosphäre entfernt. Bei der Nassdeposition werden die Komponenten durch Ausregnen entfernt. Die Depositionsgeschwindigkeit der Trockendeposition wird durch meteorologische Größen (insbesondere Turbulenz) und die Oberflächeneigenschaften bestimmt. *Wesely and Hicks* [2000] geben einen Überblick des aktuellen Wissensstands der Trockendeposition. Mit einem Transferwiderstandsansatz wird häufig die Trockendeposition über flachem Terrain beschrieben. Die Massenstromdichte der Trockendeposition ergibt sich aus dem negativen Produkt der atmosphärischen Konzentration und der individuellen Depositionsgeschwindigkeit. Diese individuelle Depositionsgeschwindigkeit wird in existierenden Trockendepositionsmodellen für Gase aus einem zum ohmschen Gesetz analogen Zusammenhang aus mehreren Widerstandstermen berechnet. Ergebnis dieser Modelle sind die individuellen Depositionsgeschwindigkeiten für die einzelnen Spurengase. Mittels Nassdeposition werden Spurenstoffe aus der Atmosphäre ausgewaschen, wenn sie im Niederschlag (Hydrometeore) gelöst sind. Je nach Löslichkeit der Spurenstoffe stellt sich

das Lösungsgleichgewicht zwischen der Konzentration in der Luft und im Regen- bzw. Wolkenwasser ein. Teilweise findet eine chemische Umwandlung der Spezies im Niederschlag statt, wie beispielsweise bei N_2O_5 , das, nachdem es aus der Gasphase in die Flüssigphase übergegangen ist, zu HNO_3 hydrolysiert wird.

Strahlungstransfer in der Atmosphäre

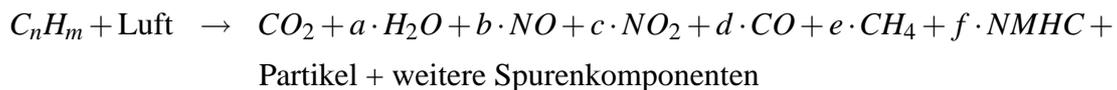
Wie bereits eingangs erwähnt, ist die Absorption von solarer Strahlung die grundlegende Energiequelle für dynamische Prozesse in der Atmosphäre. Weiterhin muss, damit sich das Klimasystem im Gleichgewicht befindet, die von der Erde aufgenommene Sonnenstrahlung durch thermale terrestrische Abstrahlung ausgeglichen werden. Nun haben eine Reihe der anthropogen emittierten Spurenstoffe die Fähigkeit, die Menge der aufgenommenen oder abgegebenen Strahlung zu verändern. Diese Gase werden als Treibhausgase bezeichnet. Das wichtigste natürliche Treibhausgas ist Wasserdampf: etwa 66 Prozent des natürlichen Treibhauseffektes sind auf ihn zurückzuführen [Houghton, 1997]. Für den anthropogen verursachten zusätzlichen Treibhauseffekt spielen Wasserdampf-Emissionen durch den Menschen jedoch praktisch keine Rolle, da hierdurch keine nennenswerte Erhöhung der Wasserdampfkonzentration in der Atmosphäre bewirkt wird. Wasserdampf wird meist innerhalb weniger Tage in Form von Niederschlag aus der Atmosphäre entfernt. Im Gegensatz dazu kann Kohlendioxid mehr als 100 Jahre in der Atmosphäre verbleiben und sich anreichern. Kohlendioxid ist das wichtigste anthropogen emittierte Treibhausgas. Es wird u.a. bei der Verbrennung von fossilen Brennstoffen und von Biomasse freigesetzt. Zu den bedeutenden Treibhausgasen zählen auch Methan (CH_4), Lachgas (N_2O) und die Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe (FCKWs). Sie sind gekennzeichnet durch eine lange atmosphärische Lebensdauer und eine signifikante Aufnahme terrestrischer Infrarotstrahlung. Änderungen in der Konzentration der Treibhausgase haben eine Änderung der Strahlungsbilanz des Systems Erde-Atmosphäre zur Folge, die als Strahlungsantrieb (engl. *radiative forcing*, RF, Einheit W/m^2) bezeichnet wird: Die am Oberrand der Atmosphäre eingestrahelte, kurzwellige, solare Energie wird nicht mehr durch die abgestrahlte, langwellige, terrestrische Energie ausgeglichen. Der sich ergebende 'Antrieb' führt zu einer Erwärmung (positives RF) oder Abkühlung (negatives RF) der Erdoberfläche. Mit Erreichen des neuen Gleichgewichtszustandes verschwindet der Strahlungsantrieb. Simulationen mit Klimamodellen zeigten, dass die zu erwartende bodennahe Gleichgewichtstemperatur in erster Näherung proportional zum Strahlungsantrieb RF [IPCC, 1995] ist,

$$\Delta T_{surf} = \lambda \cdot RF, \quad (2.1)$$

wobei der Klimasensitivitätsparameter λ (in $\frac{\text{K}}{\text{W}/\text{m}^2}$) eine modellabhängige Größe ist. Diesen Zusammenhang beschreibt das Radiative-Forcing-Konzept. Eine umfassende Darstellung des Strahlungshaushalts der Erde, des anthropogenen Treibhauseffektes und der Berechnung des Strahlungsantriebs findet sich im aktuellen Bericht des regierungsübergreifenden Ausschusses für Klimaänderungen (engl. *Intergovernmental Panel for Climate Change*) [IPCC, 2001]. In der vorliegenden Arbeit wird für die Änderung der Spurengasverteilungen auf Grund der Emissionen des Straßenverkehrs der Strahlungsantrieb berechnet (Abschnitt 8.5).

2.2 Emissionen aus der Verbrennung fossiler Treibstoffe im Straßenverkehr

Die Spurengasemissionen des Straßenverkehrs entstehen bei der heutigen Antriebstechnik auf Grund der Verbrennung fossiler Treibstoffe. Bei jeder Verbrennung fossiler Brennstoffe entstehen die primären Verbrennungsprodukte einer vollständigen Oxidation, CO_2 und H_2O . Weiterhin sind im Abgas Produkte einer unvollständigen Verbrennung, wie Kohlenmonoxid, Ruß und Kohlenwasserstoffe enthalten. Zusätzlich entstehen durch die Oxidation des Luftstickstoffs und stickstoffhaltiger Treibstoffkomponenten Stickoxide (NO_x , bestehend aus $\text{NO} + \text{NO}_2$). Ein Großteil der NO_x -Emissionen erfolgt in Form von NO . Da sich in der Atmosphäre innerhalb von einigen Minuten ein photostationäres Gleichgewicht (Abschnitt 2.4) einstellt, werden die Verbindungen gemeinsam betrachtet und unter der Bezeichnung NO_x zusammengefasst. Zusätzlich finden sich im Abgas - neben einer Reihe anderer Komponenten - auch Produkte aus der unvollständigen Oxidation: Kohlenmonoxid (CO) und unverbrannte Kohlenwasserstoffe, wie Methan und NMHCs. Somit läuft die Verbrennung nach folgendem Schema ab:



Für Kohlenwasserstoffe im Abgas des Verbrennungsmotors gibt es insbesondere zwei Ursachen: unverbrannte Kohlenwasserstoffe, d.h. Fragmente des Treibstoffs, und neuentstandene Produkte einer unvollständigen Verbrennung des Treibstoffs.

Die Menge des entstehenden Kohlendioxids ist nahezu unabhängig von den genauen Verbrennungsbedingungen [Olivier *et al.*, 1996] und wird in erster Linie durch den Kohlenstoffgehalt des Treibstoffs bestimmt. Daher ist - trotz unterschiedlicher Verbrennungsbedingungen - der CO_2 -Emissionsindex für alle Fahrzeuge einheitlich. Stickoxide entstehen durch Oxidation des Luftstickstoffs und stickstoffhaltiger Komponenten des Treibstoffs. Die Emissionsmenge hängt daher von der Verbrennungstemperatur und der Verweilzeit in der Brennkammer ab. Daher haben Dieselfahrzeuge höhere Emissionsfaktoren [Olivier *et al.*, 1996]. Kohlenmonoxid und Kohlenwasserstoffe sind das Ergebnis einer unvollständigen Oxidation. Je geringer die Verbrennungstemperatur und je kürzer die Verweilzeit, desto mehr Kohlenmonoxid und Kohlenwasserstoffe werden emittiert. Der Emissionsindex für CO und die NMHC hängt somit stark vom Fahrzeug und insbesondere auch von der Motorenwartung ab. Abbildung 2.3 zeigt die Massenanteile der Spurengaskomponenten, die sich typischerweise im Kfz-Abgas befinden. Pro Kilogramm Treibstoff werden neben CO_2 und Wasser im Mittel 117 g Spurenstoffe durch den Straßenverkehr emittiert. Die Hauptmassenanteile stellen hierbei CO (73 g [C]), NMHC (27.8 g [HC]) und NO_x (9.2 g [N]) dar (siehe Tabelle B.1).

2.3 Bedeutung sekundärer Spezies in der Atmosphäre

Die Zusammensetzung der Atmosphäre beeinflusst ihre physikalischen und chemischen Eigenschaften. Die Konzentration strahlungsaktiver Gase bestimmt die Strahlungsbilanz und somit das

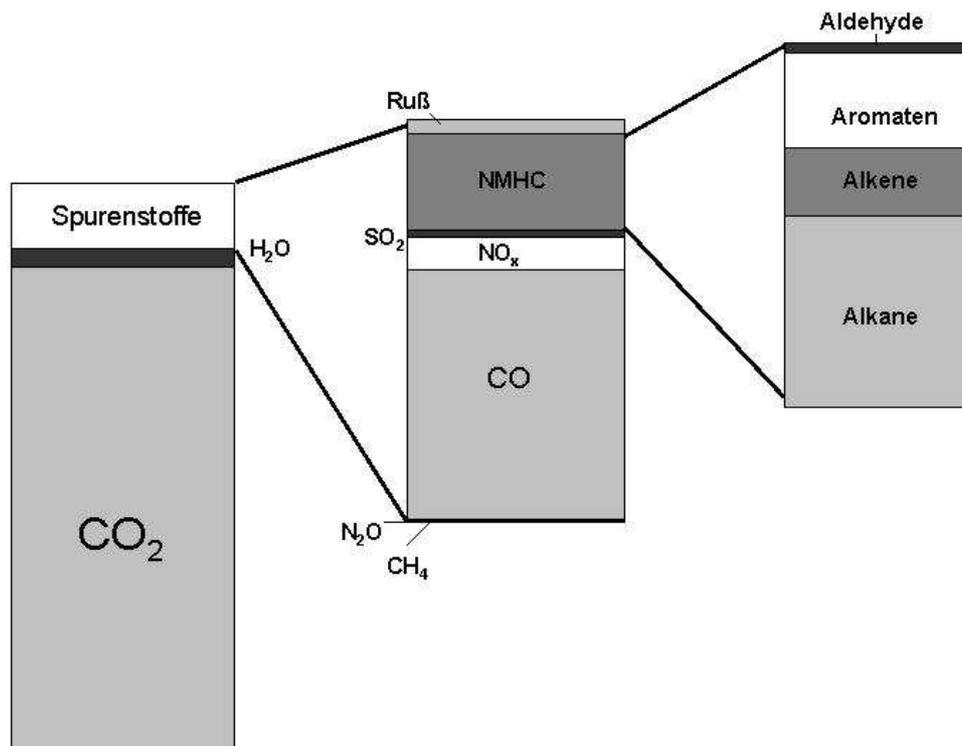


Abbildung 2.3: Aufteilung der Verbrennungsprodukte alle Angaben in Massenanteilen; Zusammensetzung der Hauptanteile des Abgases (*linke Säule*), der Spurengaskomponenten (*mittlere Säule*) und der NMHCs (*rechte Säule*): mittlere Emissionsmengen der einzelnen Spezies nach Tabelle B.1.

Klima. Die Konzentration chemisch aktiver Gase bedingt die Chemie der Atmosphäre. Eine zentrale Rolle spielen hier nicht nur primäre Spurengase, sondern auch sekundäre Spurengase, also solche die nicht direkt emittiert werden, sondern nur durch chemische Umwandlung in der Atmosphäre gebildet werden. Die Bedeutung der drei sekundären Spurengase Ozon, Hydroxylradikal und Peroxyacetylnitrat (PAN) wird vorgestellt. Die Konzentrationen dieser drei wichtigen Gase werden durch die Emissionen des Straßenverkehrs beeinflusst und sind somit zentrales Thema dieser Arbeit.

Ozon

Das wichtigste sekundäre Spurengas stellt Ozon dar, welches in der Troposphäre photochemisch, durch die sogenannte Smogchemie, produziert wird. Zusätzlich wird Ozon von der Stratosphäre in die Troposphäre eingetragen (siehe Abschnitt 2.1). Das heißt, Ozon besitzt in der Troposphäre nur diese zwei Quellen. Den Quellen des troposphärischen Ozons stehen die *in-situ*-photochemische Zerstörung und die trockene Deposition als Senken gegenüber. Zunächst wird die Bedeutung des Ozons in der Stratosphäre vorgestellt, um hieraus die Bedeutung für den Transport von Ozon in die Troposphäre und für das Strahlungsspektrum in der Troposphäre vorzustellen.

In der Stratosphäre absorbieren molekularer Sauerstoff (O_2) und Ozon (O_3) ultraviolette Strahlung mit einer Wellenlänge kleiner als 290 nm. Somit bedingt die Menge des strato-

sphärischen Ozons das kurzwellige Strahlungsspektrum in der Troposphäre. Eine Abnahme des stratosphärischen Ozons erlaubt es verstärkt, kurzwelliger Strahlung durch die Stratosphäre in die Troposphäre einzudringen [Kerr and Elroy, 1993; Madronich et al., 1995]. Dies führt zu erhöhten Photodissoziationsraten in der Troposphäre [Tang und Madronich, 1995]. Ozon besitzt seine maximale Konzentration in den mittleren Breiten in einer Höhe von etwa 20 bis 25 Kilometern [WMO, 1995]. Aufgrund der hohen Mischungsverhältnisse von Ozon in der stratosphärischen Ozonschicht, mit einem maximalen Mischungsverhältnis von etwa 450 ppb, findet durch Eddy-Diffusion ein Netto-Ozon-Transport von der Stratosphäre in die Troposphäre statt. Eddy-Diffusion bezeichnet die turbulente Diffusion von Spurengasen entlang eines Konzentrationsgradienten. Die atmosphärische Konzentration von Ozon ist aus drei Gründen wichtig. Erstens beeinflusst Ozon die Luftqualität, zweitens ist es ein strahlungsaktives Gas und beeinflusst die Strahlungsbilanz und drittens ist Ozon chemisch aktiv. Für die Luftqualität ist das Ozonmischungsverhältnis wichtig, da es Pflanzen und den Menschen direkt schädigen kann. Eine wesentliche Eigenschaft von Ozon ist hierbei, dass es je nach Höhe und geographischer Breite eine Lebensdauer zwischen einigen Tagen (tropische PBL) und bis zu einem Jahr (Stratosphäre) besitzt. Die Lebensdauer von Ozon hängt insbesondere von der stratosphärischen Ozonsäulendichte und von der Wasserdampfkonzentration ab. Längere Lebensdauern erlauben es Ozon über große Entfernungen zu transportieren. Für die troposphärische Ozonverteilung ist nicht nur der Transport von Ozon selber entscheidend, sondern zusätzlich der Transport von Vorläufersubstanzen (wie NO_x , NMHC, CO) und Reservoirspezies (z.B. PAN, HNO_3 , N_2O_5).

Das zweite wesentliche Merkmal ist die Strahlungsaktivität von Ozon. Ozon ist sowohl im lang- als auch im kurzwelligen Spektralbereich strahlungsaktiv. Änderungen der Ozonverteilungen, in diesem Zusammenhang häufig als Störungen bezeichnet, beeinflussen die Strahlungsbilanz und somit das Klima (siehe Abschnitt 2.1) und tragen zum anthropogenen Treibhauseffekt bei. Für die Klimawirksamkeit von Ozonstörungen ist sowohl ihre geographische Verteilung als auch der Höhenbereich der Störung von Bedeutung [IPCC, 2001].

Der dritte wichtige Prozess von Ozon ist die chemische Umwandlung. Ozon stellt die Hauptquelle für das atmosphärische Hydroxylradikal (OH) dar (siehe Abschnitt 2.4), dessen Bedeutung im nächsten Abschnitt vorgestellt wird.

Hydroxylradikal

Das Hydroxylradikal (OH) wird häufig als Wasch- oder Reinigungsmittel der Atmosphäre bezeichnet, da es die Oxidation von Spurengasen einleitet und so die Oxidationskapazität der Atmosphäre bestimmt. Hierbei werden teilweise wasserlösliche Substanzen gebildet (z.B. aus NO_2 reagiert mit OH zu HNO_3), die mit dem Niederschlag aus der Atmosphäre ausgewaschen werden. Zusätzlich ist das Hydroxylradikal verantwortlich für den Großteil des Abbaus von CH_4 und CO, insbesondere in den Tropen [Crutzen und Zimmermann, 1991; Crutzen et al., 1999]. Es leitet die Zerstörung der meisten NMHCs ein [Atkinson, 2000]. Folglich besitzt das Hydroxylradikal durch den Abbau von strahlungsaktiven Gasen einen indirekten Einfluss auf den Strahlungshaushalt und somit einen Einfluss auf das Klima.

Peroxyacetylnitrat (PAN)

Als drittes sekundäres Spurengas spielt das Peroxyacetylnitrat ($\text{CH}_3\text{COO}_2\text{NO}_2$) eine wesentliche Rolle bei der globalen Wirkung von Straßenverkehrsemissionen. Es stellt den wichtigsten Vertreter der Peroxyacetylnitrate dar und wird in der vorliegenden Arbeit als PAN bezeichnet. PAN gehört zur Gruppe der NO_y -Verbindungen, entsteht bei der Reaktion von NO_2 mit Abbauprodukten der NMHC-Oxidation (Abschnitt 2.4) und stellt eine Reservoirspezies für die Stickoxide dar. Die Verbindung ist thermisch instabil: Sie zählt zu den reaktivsten Verbindungen, die bei der Ozonbildung eine Rolle spielen. Bei geringen Temperaturen, wie sie in der FT herrschen, ist PAN jedoch stabil und kann so über weite Strecken transportiert werden. Gelangt es in Regionen mit höheren Temperaturen zerfällt es und stellt dort dann eine Quelle für NO_x dar. Die Lebensdauer von PAN ist also stark temperaturabhängig und schwankt zwischen einem Tag bei etwa 4°C und mehr als drei Monaten bei -30°C . Auf diese Weise kann PAN in großer Entfernung von den Quellregionen die Stickoxidverteilung beeinflussen, wodurch es dort zu vermehrter Ozonproduktion kommen kann, beispielsweise im Frühling und Sommer an der Messstation Resolute [Roelofs and Lelieveld, 2000].

2.4 Chemie in der Troposphäre

Ozon in der Atmosphäre

Die photochemische Bildung von Ozon in der Troposphäre ist Folge der Reaktion von Kohlenmonoxid und den Kohlenwasserstoffen mit OH und anschließender Reaktion mit den Stickoxiden unter Einstrahlung von Sonnenlicht [Liu *et al.*, 1980; Lin *et al.*, 1988]. Dieser Reaktionszyklus ist als sogenannte Smogchemie bekannt. Hierbei spielen Stickoxide und Kohlenwasserstoffe eine entscheidende Rolle, da ihr Verhältnis darüber entscheidet, ob und wieviel Ozon tatsächlich produziert wird. Abbildung 2.4 zeigt ein Reaktionsschema der photochemischen Ozonbildung.

Photostationäres Gleichgewicht

Bei der Photodissoziation von NO_2 entsteht atomarer Sauerstoff, der mit molekularem Sauerstoff zu Ozon rekombiniert.



Hierbei stellt M einen beliebigen Stoßpartner dar. Da O_3 rasch mit NO reagiert



ergibt sich allein aus diesen drei Gleichungen ein photostationäres Gleichgewicht zwischen NO, NO_2 und O_3 , das zu keiner Netto-Ozonproduktion führt.

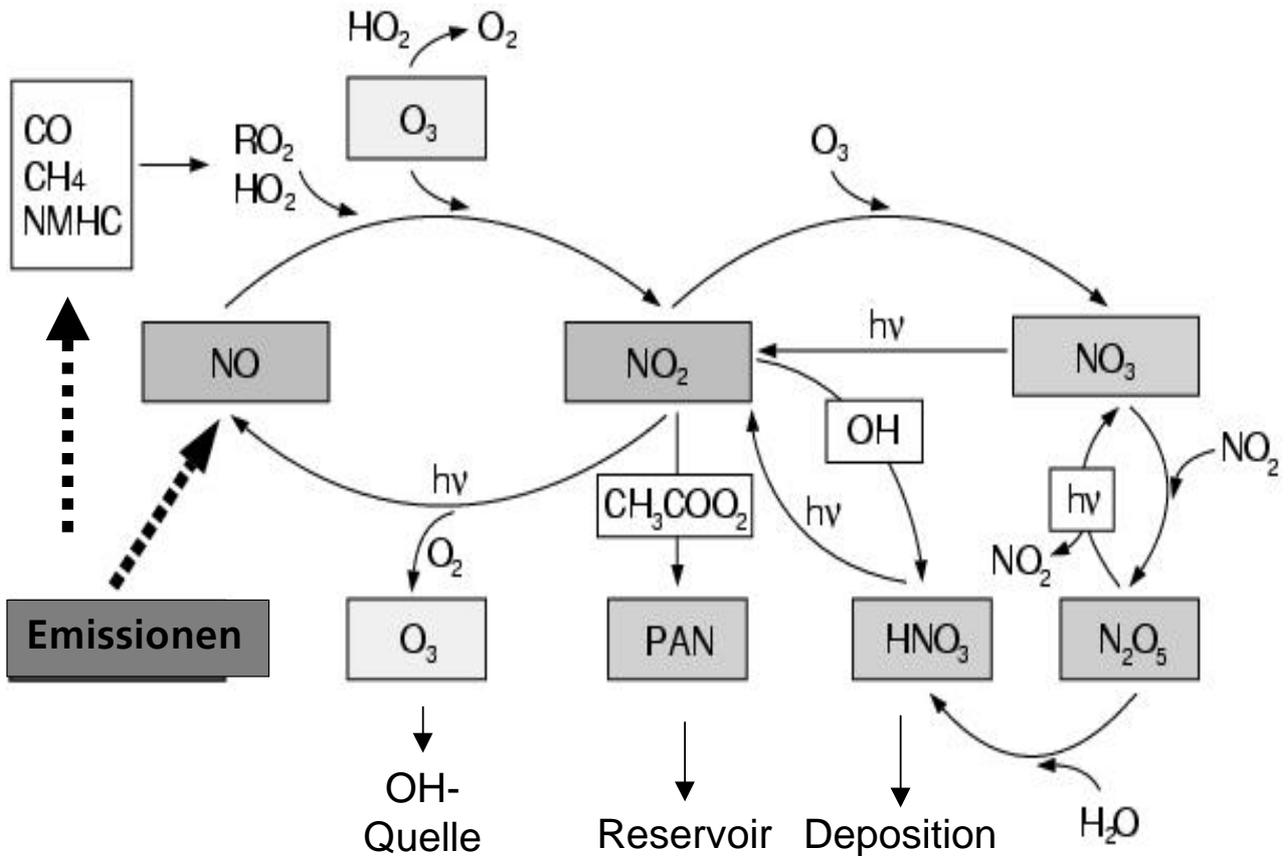


Abbildung 2.4: Reaktionsschema der photochemischen Ozonbildung

Photochemische Ozonbildung

NO_2 entsteht einerseits durch Reaktion von NO mit Ozon (siehe Gleichung (2.4)), wodurch dieser Zyklus (Reaktionen (2.2) bis (2.4)) netto zu keiner Ozonproduktion führt. Andererseits kann NO_2 bei der Reaktion von NO mit anderen Verbindungen (HO_2 , RO_2) entstehen. RO_2 steht hierbei für ein Peroxidradikal, das aus einem Alkylrest und der Peroxidgruppe besteht¹. Ausgangspunkt hier sind das HO_2 und das Peroxidradikal, die bei der Oxidation von Kohlenmonoxid und der Kohlenwasserstoffe in der Atmosphäre entstehen. Kohlenwasserstoffe reagieren mit dem Hydroxylradikal OH , wobei ein Alkyl- oder substituiertes Alkylradikal entsteht (R). Dieses reagiert mit O_2 und bildet ein Peroxyradikal (RO_2). Im Laufe des weiteren Abbaupfads entstehen ebenfalls zusätzliche HO_2 -Radikale. Die so entstandenen Radikale (HO_2 , RO_2) reagieren mit NO und bilden NO_2 :



Durch diese zusätzliche Umwandlung von NO in NO_2 kommt es durch die Photolyse von NO_2 (Reaktion (2.2)) zu einer Netto-Ozonproduktion (Reaktion (2.3)). Die Quellen von HO_2 werden weiter unten vorgestellt.

¹Radikale werden in der gesamten Arbeit ohne das Zeichen für das ungepaarte Elektron dargestellt.

Übergang von Ozonabbau zu Ozonproduktion

Liegen die NO-Konzentrationen in der Atmosphäre sehr niedrig, so reagiert HO₂ eher mit Ozon als mit NO. Zusätzlich kann OH mit Ozon reagieren.



Diese Reaktionen stellen Ozonverlustmechanismen dar. Erst wenn die NO-Konzentration eine Grenze überschreitet, kommt es zu der im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Netto-Ozonproduktion. Bei typischen atmosphärischen Ozonkonzentrationen ergibt sich durch den Vergleich der konkurrierenden Reaktionen eine Ozonproduktion ab einem NO-Massenmischungsverhältnis von 10 bis 30 ppt [Logan, 1985]. Unterhalb von diesem Grenzwert findet Ozonabbau, oberhalb Ozonproduktion statt.

Nichtlineare Ozonproduktivität

Eine Steigerung der Ozonproduktion durch eine Zunahme der NO_x-Konzentration findet nur unterhalb eines bestimmten Grenzwertes statt. Steigt die NO_x-Konzentration auf Grund von vermehrten Emissionen über den Grenzwert, so wird erstens Ozon titriert (Reaktion (2.4)) und zweitens gewinnen Verlustprozesse für das HO_x-Radikal an Bedeutung. Die Stickoxidemissionen erfolgen vorwiegend in der Form NO. Dieses wird in der Atmosphäre mit den Reaktionen, die das photochemische Gleichgewicht bestimmen, erst zu NO₂ gewandelt (Reaktion (2.4)). Ozon wird abgebaut. Das in Reaktion (2.4) entstehende NO₂ kann jedoch, nachdem es aus den Quell-Regionen exportiert wurde, erneut Ozon bilden. Bei den Verlustreaktionen des HO_x baut insbesondere die Reaktion



das HO_x-Radikal (und NO₂, siehe unten) ab. HNO₃ ist wasserlöslich und kann per Deposition aus der Atmosphäre entfernt werden. Lin *et al.* [1988] geben den stark nichtlinearen Verlauf der Ozonproduktivität in Abhängigkeit von der NO_x-Konzentration an. Als Ozonproduktivität wird die Menge der Ozonmoleküle bezeichnet, die pro NO_x-Molekül gebildet wird. Sie finden unter städtischen Bedingungen eine maximale Produktivität bei einem Volumenmischungsverhältnis von etwa 200 ppt.

Aus den Reaktionen der nichtlinearen Photochemie kann für jede atmosphärische Situation die Abhängigkeit der Ozonproduktivität von der Stickoxidkonzentration berechnet werden. Diese hängt zusätzlich von der Konzentration der HO_x-Radikale ab. Diese Kurve beginnt ab einer Grenze (von i.d.R. 10 bis 30 ppt NO_x) mit einer ansteigenden Ozonproduktivität der Stickoxide. Ab einer Grenze, die durch die HO_x-Konzentration bestimmt wird, sinkt die Ozonproduktivität mit weiter ansteigenden NO_x-Konzentrationen. Dies hängt mit der Titration von Ozon und mit dem verstärkten Verlust der Hydroxyradikale (z.B. Reaktion (2.8)). Hierdurch stehen weniger Hydroxylradikale für die Reaktion mit CO und NMHCs zur Verfügung, wodurch weniger HO₂ gebildet wird. HO₂ wiederum ist für die zusätzliche Umwandlung von NO in NO₂ verantwortlich, und

steuert so die Ozonproduktion. Somit bewirkt eine Erhöhung der NO_x -Emission in diesem Fall eine Verringerung der Ozonproduktivität. Wenn nun durch zusätzliche Stickoxide die Ozonproduktivität aller Stickoxide sinkt, ist es möglich, dass insgesamt weniger Ozon produziert wird. In diesem Zusammenhang spricht man häufig von chemischem Regime, in dem sich die Ozonproduktion befindet. Diese in der regionalen Modellierung der Smogchemie übliche Betrachtung erleichtert auch hier das Verständnis der Wirkung der einzelnen Spurengase. Es werden das VOC-limitierte Regime und das NO_x -limitierte Regime unterschieden. Im VOC-limitierten Regime führt eine Verringerung der Stickoxidemissionen zu keiner Reduzierung der Ozonproduktion, da ausreichend Stickoxide für Reaktion (2.2) zur Verfügung stehen. In diesem Regime kann es durch eine Reduzierung der Stickoxide sogar zu einem Anstieg der Ozonkonzentration kommen. Geringere NMHC-Konzentrationen führen zu geringeren HO_2 -Konzentrationen, da durch Oxidation von NMHCs weniger HO_2 entstehen. In der Folge sinkt die Umwandlung (ohne Ozonverbrauch) von NO in NO_2 in den Reaktionen (2.5) und (2.6) und die Ozonproduktion nimmt ab. Eine deutliche Reduzierung der Ozonproduktion ist im VOC-limitierten Regime nur durch eine Reduzierung der NMHC möglich.

Obige Reaktion (2.9) stellt gleichzeitig einen Verlustprozess für NO_x dar. Die Stärke dieses Verlustprozesses hängt von der OH-Konzentration und damit von der solaren Einstrahlung ab. Im Winter sinkt die Stärke dieser Senke und auch anderer, teilweise temporären Senken (beispielsweise die Bildung von PAN), so dass die Lebensdauer der Stickoxide (wie auch die von CO) im Winter deutlich länger als im Sommer ist.

Photochemischer Ozonabbau und Produktion von OH

Neben der Deposition wirkt der photochemische Abbau von O_3 als Senke für Ozon in der Atmosphäre. Über die Photolyse von Ozon wird angeregter, atomarer Sauerstoff gebildet (siehe Reaktion (2.10), der entweder nach Abregung durch Stoß wieder Ozon bilden kann (siehe Reaktion (2.11) und (2.12)), oder nach Reaktion (2.13) mit Wasserdampf zu OH weiterreagiert [Levy, 1971]. Diese Bildung von OH stellt einen Verlustprozess für Ozon dar und ist gleichzeitig der wesentliche Produktionsmechanismus für das Hydroxylradikal OH.



Bei 298 K und Normaldruck mit 50 % relativer Luftfeuchtigkeit entstehen etwa 0.2 OH Radikale pro gebildetem $\text{O}(^1D)$ -Radikal.

Quellen für OH und HO_2

Die Gruppe der Wasserstoffradikale (HO_x) besteht aus dem Hydroxylradikal (OH) und dem Peroxidradikal (HO_2). Diese Radikale bestimmen gemeinsam die Oxidationskapazität oder Reinigungskraft der Atmosphäre und beeinflussen so die Ozonproduktion. Die Konzentration von OH

und HO_2 nimmt in der Regel im Laufe des Tages zu und ist in industrialisierten Gebieten höher als in Reinluftgebieten. Zwei Faktoren sind für den Großteil der Variation der HO_x -Konzentration verantwortlich: die HO_x -Produktionsrate und die Stickoxidkonzentration [Logan *et al.*, 1981; Jaeglé *et al.*, 1999]. Bei den HO_x -Produktionsreaktionen gibt es einerseits OH-Produktionsreaktionen, wie die Photodissoziation von Ozon und andererseits HO_2 -Produktionsreaktionen, wie die Oxidation von Kohlenwasserstoffen. Global gesehen ist die wichtigste HO_x -Quelle in der Troposphäre die Photodissoziation von Ozon und anschließende Reaktion mit Wasserdampf.

Eine weitere Quelle für HO_x ist die Produktion von HO_2 durch die Oxidation von Kohlenwasserstoffen. Der einfachste Abbau eines Kohlenwasserstoffs stellt die Oxidation von Methan dar. Die Reaktion von Methan mit OH leitet einen Oxidationsprozess ein, bei dem schließlich Wasser und Kohlendioxid entstehen. Obwohl OH in der Eingangsreaktion zerstört wird, wird i.d.R. mehr HO_x produziert als zerstört. Dieses Verhalten wird autokatalytisch genannt. Die produzierte Menge HO_x hängt von der vorhandenen Menge NO ab. Über weiten Teilen der Atmosphäre produziert dieser autokatalytische Prozess 0.6 HO_x -Moleküle für jedes Methan- und OH-Molekül das eingangs verbraucht wird. HO_x entsteht ebenfalls bei der Oxidation der höherkettigen Kohlenwasserstoffe. Die Oxidation der Kohlenwasserstoffe wird durch die Reaktionen (2.14) eingeleitet. Reaktionen (2.14) und (2.15) stellen das prinzipielle Schema des Abbaus dar, bei dem wichtige Zwischen-Radikale entstehen: das Alkyl- oder das Peroxyradikal (R), das Alkyl- oder substituierte Alkylperoxyradikal (RO_2) und das Alkoxy- oder substituierte Alkoxyradikal (RO). Dieses Schema ist für die Oxidation der Alkane, Alkene und einer Reihe anderer Kohlenwasserstoffe gültig. Je nach abgebautem Kohlenwasserstoff entstehen noch weitere chemische Spezies. Bei den Alkanen, wie auch bei anderen gesättigten organischen Verbindungen, wird der Abbau durch die Ablösung eines H-Atoms von der C-H Bindung eingeleitet.

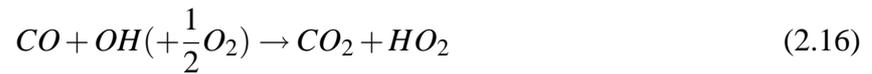


Das Peroxyradikal (R) bildet ein Alkylperoxyradikal (RO_2), das NO in NO_2 umwandeln (Reaktion (2.6)) kann, wobei ein Alkoxyradikal (RO) entsteht. Dieses Radikal kann Aldehyd bilden. Je nach Ausgangsalkan entstehen unterschiedliche Aldehyde: aus Methan entsteht Formaldehyd (CH_2O) und aus Ethan entsteht Acetaldehyd (CH_3CHO). Acetaldehyd wiederum kann nach Reaktion mit OH durch Reaktion mit NO_2 in der Atmosphäre PAN (siehe Abschnitt 2.3) bilden. Die Oxidation der Aromaten führt ebenfalls zu der Produktion von RO_2 - und HO_2 -Radikalen. Bei den Abbaupfaden existieren eine Vielzahl von verschiedenen Möglichkeiten für die Weiterreaktion der bei der Ablösung des H-Atom entstehenden OH-aromatischen Folgeprodukte. Je nach Pfad variiert die Zahl der entstehenden Radikale. Als stabile Abbauprodukte von Xylen entstehen, neben einer Reihe von anderen Verbindungen, Methylglyoxal und Alkane. In Abschnitt 3.4 wird beschrieben, warum diese Komponenten als Substitut für emittierte Aromaten im Modell verwendet werden. Entscheidend für den Beitrag der Kohlenwasserstoffe zur Ozonbildung ist jeweils die Menge der gebildeten Peroxyradikale, HO_2 und RO_2 .

Die Gruppe der Kohlenwasserstoffe umfasst eine Reihe von chemischen Verbindungen, die zwar auf ähnlichen Oxidationspfaden abgebaut werden, jedoch eine sehr unterschiedliche atmosphärische Lebensdauer aufweisen. So beträgt die Lebensdauer reaktiver Alkene bei typischen

OH-Konzentrationen (10^6 Molekülen pro Kubikzentimeter) weniger als eine Stunde. Die weniger reaktiven Alkane und Kohlenmonoxid hingegen besitzen eine Lebensdauer von Monaten bis Jahren - im Fall des langsam reagierenden Methans. Die Lebensdauer von NO_2 für die Oxidation mit OH beträgt im Vergleich dazu etwa einen Tag.

Die Oxidation von Kohlenmonoxid hingegen stellt keine Quelle für HO_x dar, sondern verändert die Verteilung auf OH und HO_2 (und auf NO und NO_2) in der Familie der Radikale.



Für das eingangs verbrauchte OH wird HO_2 gebildet. Dieses HO_2 ist wiederum über Reaktion (2.5) in der Lage, NO_2 zu bilden, wodurch netto Ozon produziert wird. In Gebieten mit geringer NO-Konzentration führt dieser Zyklus jedoch zu einem Ozonabbau, da HO_2 hier mit Ozon reagiert (Reaktion (2.7)). CO ist mit einer mittleren troposphärischen Lebensdauer von 60 Tagen relativ reaktionsträge. Da aufgrund der Lebensdauer und starker CO-Quellen die Hintergrundkonzentration von CO meist relativ hoch ist, erwartet man nur einen geringen Einfluss von lokalen CO-Emissionen auf die Ozonproduktion.

Die Vielzahl von unterschiedlichen Spezies in den unteren Schichten der Atmosphäre bedingt die im Vergleich zur Stratosphäre komplexere Chemie in der Troposphäre. Insbesondere organische Spezies spielen eine wichtige Rolle, da sie etwa 80 Prozent der reaktiven Spezies stellen [Crutzen, 1995]. Für eine weiterführende Darstellung sei an dieser Stelle auf den Übersichtsartikel von Atkinson [2000] verwiesen.

2.5 Emissionsquellen in der Atmosphäre

Kohlendioxidemissionen in die Atmosphäre

Der globale, atmosphärische CO_2 -Haushalt mit den Hauptquellen und -senken für das Jahr 1990 ist in Tabelle 2.1 angegeben. Die Angaben für Biosphäre und Ozeane stellen die Nettowerte der

Tabelle 2.1: Der globale CO_2 -Haushalt in Pg [C] pro Jahr mit den Hauptquellen und -senken; nach IPCC [2001] und EDGAR [Olivier et al., 1996]. Die Werte des IPCC sind mittlere Werte für die 90'er Jahre. Verbrennung fossiler Brennstoffe (inkl. Zementherstellung). Positive Werte sind Flüsse in die Atmosphäre, negative Werte zeigen eine Aufnahme aus der Atmosphäre an. Flüsse sind Nettowerte; Bruttowert Ozean-Atmosphäre etwa 90 Pg [C], Biosphäre-Atmosphäre etwa 120 Pg [C]. Der Fluss Biosphäre-Atmosphäre setzt sich aus der Änderung der Landnutzung und der verbleibenden terrestrischen Senke zusammen (hierfür liegen für die 90'er noch keine Angaben vor). Angegebene Fehlerbalken sind Unsicherheiten ($\pm 1\sigma$).

	IPCC, 2001	EDGAR 2.0
Verbrennung fossiler Brennstoffe	6.3 ± 0.4	6.1
Speicherung in der Atmosphäre	3.2 ± 0.1	
Fluss Ozean-Atmosphäre	-1.7 ± 0.5	
Fluss Biosphäre-Atmosphäre	-1.4 ± 0.7	

Tabelle 2.2: Jährliche globale NO_x -Emissionen der Hauptquellen in Tg [N] /a für das Jahr 1990. Der angegebene Bereich ist *IPCC* [2001] entnommen.

Emittent	Quellstärke Tg [N] a ⁻¹	Bereich	Referenz
Anthropogene Quellen			
Verbrennung fossiler Brennstoffe	22.6	21 - 24	<i>Benkovitz et al.</i> [1996]
Biomasseverbrennung	5.0	3 - 13	<i>Hao et al.</i> [1994]
Natürliche Quellen			
Mikroorganismen in Böden	5.49	4 - 21	<i>Yinger and Levy</i> [1995]
Blitze	5.0	3 - 13	<i>Levy</i> [1996]
Global	38.09		

Emission dar, das heisst, Quellen und Senken sind gegeneinander aufgerechnet. So weisen beispielsweise die Ozeane einen vielfach höheren Bruttofluss in die Atmosphäre auf, der jedoch durch eine höhere Bruttoabsorption wieder ausgeglichen wird, wodurch es insgesamt zu einer Netto-Absorption durch die Ozeane kommt [*IPCC*, 2001]. Anthropogene CO_2 -Emissionen stellen folglich eine bedeutende Nettoquelle für CO_2 in der Atmosphäre dar.

Stickoxidemissionen in die Atmosphäre

Zu den globalen Hauptquellen von NO_x gehören einerseits anthropogene Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe und Biomasse und andererseits natürliche Emissionen durch Mikroorganismen in Böden, durch Waldbrände (natürlich) und durch Blitze. Die globalen Quellstärken der Hauptemittenten in Tabelle 2.2 zeigen, dass die anthropogenen Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe über die anderen Quellen dominieren.

Kohlenmonoxidemissionen in der Atmosphäre

Kohlenmonoxid ist ein weiteres Spurengas in der Atmosphäre, das - wie in Abschnitt 2.4 vorgestellt - in der atmosphärischen Chemie eine wichtige Rolle spielt. Kohlenmonoxid entsteht insbesondere bei der unvollständigen Verbrennung von Kohlenstoffverbindungen und ist Nebenprodukt fast jeder Verbrennung. In Tabelle 2.3 sind die CO -Hauptquellen in der Atmosphäre zusammengefasst. Neben den Hauptquellen sind auch die indirekten Quellen, die Senken und deren Unsicherheiten aufgeführt. Bei den direkten Emissionen dominieren anthropogene Emissionen (Verbrennung fossiler Brennstoffe, Biomasseverbrennung). Eine Menge von 1400 Tg [CO] entsteht pro Jahr indirekt durch die Oxidation von Kohlenwasserstoffen. Hiervon entstehen wiederum etwa 50 Prozent durch anthropogene Kohlenwasserstoffemissionen [*IPCC*, 2001]. Die direkten Emissionen werden in das Atmosphärenmodell integriert. Zur Bestimmung der indirekten Quellen (chemisch und physikalisch) muss die Chemie und die Physik der Atmosphäre berücksichtigt werden, wofür ein Modell benötigt wird. Da diese Quellen und Senken im verwendeten Modell online berechnet werden, wurden die Stärken aus Modellsimulationsergebnissen berechnet.

Tabelle 2.3: Globaler Haushalt von CO in Tg CO pro Jahr; typische Werte und Unsicherheitsbereiche nach [Cicerone, 1988] und EDGAR 2.0 [Olivier et al., 1996].

Emittent	Quellstärke Tg [CO] a ⁻¹	Referenz	Bereich Tg [CO] a ⁻¹
Direkte Quellen			
<i>Anthropogene Quellen</i>			
Verbrennung fossiler Brennstoffe	478.4	EDGAR 2.0	440 ± 150
hiervon Straßenverkehr	206.7	EDGAR 2.0	
Biomasseverbrennung	200	Hao [1994]	700 ± 200
<i>Natürliche Quellen</i>			
Ozeane	50		50 ± 40
Feuer (natürlich)	40		40 ± 30
Vegetation	100		75 ± 25
Global	868.4		
Indirekte Quellen			
Oxidation von CH ₄		aus ECHAM	600 ± 200
Oxidation von NMHC		aus ECHAM	800 ± 400
Indirekte Senken			
Oxidation durch OH		aus ECHAM	2000 ± 600
Aufnahme durch Böden		aus ECHAM	250 ± 100
Zerstörung in der Stratosphäre		aus ECHAM	110 ± 30

Für die globale Atmosphäre sind insbesondere die Verbrennung von fossilen Brennstoffen, von Biobrennstoffen und von Biomasse als CO-Quelle von Bedeutung. Für die Verbrennung von Biomasse wird eine Menge von 200 Tg CO pro Jahr angegeben, wobei der überwiegende Teil aus den großen Waldgebieten der Erde stammt. Weiterhin emittieren die Ozeane jährlich etwa 50 Tg CO. Eine Menge von 40 Tg CO jährlich entsteht durch Wildfeuer (z.B. entstanden durch Blitzschlag). Schließlich gelangt CO durch die Zersetzung von Biomasse in die Atmosphäre. Dieser Eintrag wird auf global etwa 100 Tg CO pro Jahr geschätzt, wovon etwa 80 % in den Tropen freigesetzt werden [Cicerone, 1988]. Die Senken besitzen einen Unsicherheitsbereich (Tabelle 2.3) da sie im Modell berechnet werden und so der simulierten natürlichen Variabilität unterliegen.

Kohlenwasserstoffemissionen in der Atmosphäre

Unter der Bezeichnung Kohlenwasserstoffe werden chemische Verbindungen zusammengefasst, die Kohlenstoff und Wasserstoff (in direkter Bindung) enthalten. Oftmals betrachtet man Methan und die so genannten Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (NMHC) getrennt. Ursache hierfür ist, dass Methan um etwa drei Größenordnungen häufiger in der Natur auftritt und als kurzkettigster Kohlenwasserstoff in seinem chemischen Verhalten Besonderheiten aufweist. Zu den NMHC zählen die Alkane (ab Ethan), Alkene, Alkine, Alkohole, Aldehyde, Ketone, Carbonsäuren und Aromaten. Die globalen Emissionsmengen (Tabelle 2.4) zeigen, dass die anthropogenen Emissio-

Tabelle 2.4: Jährliche Emissionen der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffen nach *Olivier et al.* [1996] (anthropogen) und *Guenther et al.* [1995] (natürlich).

Emittent	Quellstärke Tg	Gesamt Tg
Anthropogene Emissionen in Tg [Molmasse]		177.5
Verbrennung fossiler Brennstoffe	41.6	
Herstellung und Transport fossiler Brennstoffe	27.3	
Biobrennstoffe	30.7	
Industrielle Prozesse	33.5	
Landnutzung	44.4	
Natürliche Emissionen in Tg [C]		1190
Isoprenemissionen	506	
Monoterpen	126.5	
Reaktive HCs	258.8	
Nicht-reaktive HCs	258.8	

nen hinsichtlich der emittierten Mengen deutlich niedriger liegen. Jedoch unterscheiden sich die emittierten Spezies, so dass anthropogene Emissionen auch die Hauptquelle für emittierte Spezies, beispielsweise für Alkanen und Aromaten, darstellen können.

2.6 Bisherige Studien zur Wirkung anthropogener Emissionen

Einfluss von Stickoxiden auf die chemische Zusammensetzung

In diesem Abschnitt und den folgenden werden die Ergebnisse bisheriger Modellstudien zur Wirkung anthropogener Emissionen zusammengefasst. Die Arbeiten von *Liu et al.* [1980], *Liu et al.* [1987] und *Lin et al.* [1988] stellen die Wirkung von Stickoxiden auf die Ozonproduktion dar. Sie untersuchen an Hand eines Chemie-Box-Modelles die Effizienz der Ozonproduktion durch Stickoxide in Abhängigkeit von der Hintergrundkonzentration der Stickoxide, der Jahreszeit und der NMHC-Konzentration. Die Ozonproduktivität hängt stark nichtlinear von der NO_2 -Konzentration ab. Nach deren Ergebnissen aus dem Chemie-Box-Modell ist die Ozonproduktionsrate im Winter eine Größenordnung kleiner als im Sommer. Diese geringere Produktionsrate im Winter ist fast ausschließlich eine Folge der geringeren OH-Konzentration. Bei hohen Stickoxidkonzentrationen ist die OH-Konzentration gering, da ein OH-Verlust durch die Reaktion $\text{OH} + \text{NO}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HNO}_3 + \text{M}$ einsetzt. Dies wird auch als Verdrängung des HO_x in die Senken bezeichnet. Allerdings ist im Winter durch die bis zu 10 mal höhere photochemische Lebensdauer als im Sommer eine stärkere Akkumulation und Transport von Ozon möglich, wodurch die Ozonkonzentration auch durch entfernte Regionen beeinflusst werden kann. Im Sommer hingegen, wird nach [*Liu et al.*, 1987] die Ozonverteilung vorwiegend durch regionale Quellen kontrolliert. Spätere Arbeiten zeigten, dass auf Grund der mit der Höhe zunehmenden Lebensdauer von Ozon, ein Transport von Ozon in höheren Schichten möglich ist. Auf diese Weise kann auch im Sommer die Ozonverteilung durch

entfernte Quellen beeinflusst werden.

Crutzen und Gidel [1983] finden im Winter um 2- bis 20-fach höhere Mischungsverhältnisse als im Sommer und begründen dies mit der vergleichsweise längeren Lebensdauer von Stickoxiden im Winter.

Stickoxide weisen auf Grund ihrer kurzen Lebensdauer eine stark inhomogene atmosphärische Verteilung in der Atmosphäre auf und Quellregionen sind deutlich zu identifizieren. So beträgt die atmosphärische Konzentration in industrialisierten Regionen bis zu mehreren Tausend ppb, fällt mit wachsender Entfernung zu den Quellgebieten rasch um mehrere Größenordnungen [*Graedel und Crutzen*, 1993].

Einfluss von Kohlenmonoxid auf die chemische Zusammensetzung

Kohlenmonoxid kann zur Ozonbildung in der Atmosphäre führen, doch geben *Levy et al.* [1997] an, dass die Zunahme von CO seit der Industrialisierung zu deutlich geringeren Ozonzunahmen geführt hat, als die auf Grund der Zunahme der Stickoxide. Die deutlich höhere Lebensdauer von Kohlenmonoxid von etwa 60 Tagen in der Troposphäre (Abschnitt 2.4) ermöglicht, dass es effektiv transportiert wird.

Zusätzlich besitzt Kohlenmonoxid einen indirekten Einfluss auf das Klima. Kohlenmonoxid reagiert mit OH und verändert so die OH-induzierte Verlustreaktion und folglich die Menge von Methan in der Atmosphäre [*Isaksen und Hov*, 1987]. Auf diese Weise besitzt CO einen indirekten Strahlungsantrieb. *Daniel und Solomon* [1998] schätzen die indirekte Klimawirkung von Kohlenmonoxid in einem Boxmodell ab und geben an, dass der kumulierte Strahlungsantrieb auf einem Zeithorizont von 15 Jahren stärker sein kann, als der Antrieb durch anthropogen emittiertes Lachgas.

Einfluss von Kohlenwasserstoffen auf die chemische Zusammensetzung

Houweling et al. [1998] vergleichen Simulationen mit dem Chemietransportmodell TM3, in denen sie die höheren Kohlenwasserstoffe im Chemie-Modul CBM-IV berücksichtigen mit Simulationen ohne höhere Kohlenwasserstoffe. Die Ozonkonzentrationen werden - insbesondere im Sommer - in industrialisierten Regionen durch die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe in etwa verdoppelt. Sie zeigen mit Hilfe von Messungen an Bodenstationen, dass das photochemisch bedingte Ozonmaximum im Sommer mit der NMHC-Chemie realistischer im Modell abgebildet wird. Eine Überschätzung an einer Station an der Ostküste der USA begründen sie mit der groben Modellauflösung (5° in zonaler und 3.8° in meridionaler Richtung), die bewirkt, dass starke Gradienten nur begrenzt im Modell aufgelöst werden können. An entlegenen (von engl. *remote*) Messstationen trägt die NMHC-Chemie zu einer geringeren - etwa 30-prozentigen - Erhöhung des bodennahen Ozons bei. An diesen Stationen wird diese Ozonzunahme unabhängig von der Jahreszeit das ganze Jahr über berechnet. *Roelofs and Lelieveld* [2000] zeigen, dass die Berücksichtigung von höheren Kohlenwasserstoffen in Simulationen mit einem globalen Klima-Chemie-Modell zu realistischeren Ozonkonzentrationen in Nordamerika, Europa und Südostasien führt. Die weltweite, troposphärische Netto-Ozonproduktion wird deutlich erhöht. Zunahmen von Ozon finden

vorwiegend in der PBL statt. Durch die Berücksichtigung der höheren Kohlenwasserstoffe wird die globale OH-Konzentration um 8 Prozent verringert. Der Strahlungsantrieb steigt auf Grund der vermehrten Bildung von anthropogenem Ozon weltweit (im Jahresmittel) nur um einige Prozent. In *Poisson et al.* [2000] zeigen in einer Modellstudie, dass PAN bei der NMHC-Oxidation gebildet wird und auf Grund von Transport und thermischem Zerfall die NO_x -Verteilung und somit die Netto-Ozonproduktion beeinflusst. Nach *Poisson et al.* [2000] verdoppelt die NMHC-Oxidation insgesamt die Netto-Ozonproduktion in der Troposphäre und führt zu einer Erhöhung der Ozonkonzentration in Gebieten mit NO_x -reicher Grenzschicht um 20 bis 80 %.

Einfluss anthropogener Emissionen auf die chemische Zusammensetzung

Die globale Wirkung von anthropogenen Emissionen wurde bereits in einer Reihe von Simulationen untersucht. So existieren Studien zur Wirkung von anthropogenen Stickoxidemissionen [*Roelofs et al.*, 1997; *Horowitz und Jacob*, 1999; *Valks und Velders*, 1999;], zum Einfluss von NO_x -Emissionen aus Schiffen [*Lawrence und Crutzen* 1999; *Kasibhatla et al.*, 2000] und zur Wirkung von Luftverkehrsemissionen [*Brasseur et al.*, 1998; *Isaksen und Jackman*, 1999; *Schumann et al.*, 2001; *Grewe et al.*, 2002].

Horowitz und Jacob [1999] untersuchen den Einfluss regionaler NO_2 -Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe auf die globale troposphärische Stickoxidverteilung. Ihren Ergebnissen zur Folge ist ein ein nicht zu vernachlässigender Anteil der atmosphärischen NO_x -Konzentration auf diese anthropogenen Emissionen zurückzuführen. *Horowitz und Jacob* [1999] untersuchten insbesondere auch den Anteil der in den USA freigesetzten Stickoxiden am Gesamtstickoxidgehalt in verschiedenen Regionen: An der Ostküste der USA ist fast das gesamte atmosphärische NO_x das Resultat der Verbrennung fossiler Treibstoffe in den USA. Im Zentralatlantik beträgt der Anteil noch etwa 20 Prozent. Das entspricht etwa 50 bis 75 % des auf die weltweite Verbrennung fossiler Brennstoffe zurückzuführenden NO_x -Gehaltes im Zentralatlantik. Als eine erste grobe Abschätzung kann man folglich davon ausgehen, dass der Straßenverkehr in den USA ebenfalls für einen Anteil von 50 bis 75 Prozent an der Stickoxid-Erhöhung durch den weltweiten Straßenverkehr verantwortlich ist. Entsprechend berechneten [*Horowitz und Jacob*, 1999], dass Emissionen in China die Ursache für etwa 70 Prozent des NO_x über dem Westpazifik sind. In großen Höhen der Atmosphäre beträgt der Anteil noch etwa 10 bis 40 Prozent.

Internationale Schifffahrt ist als ein wichtiger NO_x -Emittent zu nennen [*Lawrence und Crutzen*, 1999; *Kasibhatla et al.*, 2000]. Nach *Lawrence und Crutzen* [1999] tragen Schiffsemissionen in bestimmten Regionen zu einer Erhöhung des bodennahen Stickoxids auf offener See um zwei Größenordnungen bei. Weiterhin schätzen sie, dass eine deutliche Erhöhung des bodennahen Stickoxids (um mindestens den Faktor zwei) in weiten Teilen des Nordpazifiks, Nordatlantiks und des Indischen Ozeans stattfindet. *Kasibhatla et al.* [2000] konnten die vom Modell berechneten NO_x -Erhöhungen nicht durch Messungen bestätigen. Als mögliche Ursachen führen sie u.a. eine Überschätzung der Stickoxidemissionen und eine fehlende Abgasfahnenchemie, die eine schnellere Oxidation des NO_x ermöglichen würde, an.

Die Wirkung von Straßenverkehrsemissionen wurde zwar bereits intensiv auf lokaler und regionaler Skala untersucht. Hinsichtlich der globalen Wirkung existieren derzeit nur eine geringe

Anzahl von ersten Studien [Valks und Velders, 1999; Granier und Brasseur, 2003]. Die Arbeiten auf lokaler und regionaler Skala machten insbesondere die Bedeutung des Straßenverkehrs für die Luftqualität deutlich. An dieser Stelle sei nur exemplarisch auf die Projekte im Rahmen des Troposphärenforschungsprogrammes TFS, z.B. Schell *et al.* [2002], und Colvile *et al.* [2001] verwiesen. Hass und Schell zeigen in ihrem Bericht, dass im Ruhrgebiet im Sommer sowohl VOC-limitierte Gebiete als auch NO_x limitierte Gebiete vorliegen (vgl. Abschnitt 1). In Gebieten mit hohen NO_x -Konzentrationen ($\text{NO}_x > 10$ ppb) führte nach Modellberechnung eine Reduktion der Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs um 35 Prozent zu einer Ozonzunahme. Bakwin *et al.* [1994] betrachteten die Auswirkung einer konstanten Reduzierung der Kohlenmonoxidemissionen des Straßenverkehrs und der industrieller Quellen. Sie geben eine mögliche Reduzierung der Kohlenmonoxidkonzentrationen zwischen 0.9 und 1.8 ppb a^{-1} seit 1976 (bis Anfang der 90'er Jahre) an. Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit ist die Wirkung auf globaler Skala. Eine Arbeit, die die globale Wirkung des Straßenverkehrs untersucht, liegt von Valks und Velders [1999] vor. Sie verwenden das niedrigaufgelöste Chemie-Transport-Modell (CTM), MOGUNTIA mit einer geographischen Horizontalauflösung von 10° Länge und 10° Breite. Die geringe Vertikalauflösung und die Verwendung von Monatsmitteln der Windfelder wird mit einer geringen Rechenzeit begründet. Sie finden eine maximale Zunahme von Ozon in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre, wo auch die höchsten Emissionen stattfinden. Die Ozonzunahme ist im Juli höher als im Januar aufgrund der höheren photochemischen Aktivität. Die stärkste Zunahme des Ozons erhalten Valks und Velders in der Nähe des Bodens, doch die Zunahme in der mittleren und oberen Troposphäre ist noch deutlicher signifikant. Im Januar wird im zonalen Mittel eine Zunahme des bodennahen Ozons durch den Straßenverkehr auf der Nordhemisphäre zwischen 0.5 ppb und etwas über 1.5 ppb beobachtet, im Juli hingegen 0.5 ppb bis 2.5 ppb. Auf der Südhemisphäre werden im ganzen Jahr maximale Werte von nur knapp über 0.5 ppb berechnet. In der mittleren Troposphäre werden im Januar regionale Zunahmen von 2.0 ppb berechnet, im Juli findet sich eine Erhöhung um 2 ppb in den Breiten 30° bis 55° Nord bis auf ein Druckniveau von 400 hPa. Der Beitrag zur globalen Gesamt ozonbeladung (definiert als gesamte atmosphärische Masse des Ozon) wird für das Jahr 1990 im Januar mit 2.7 Prozent und im Juli mit 2.3 Prozent angegeben. Der Strahlungsantrieb aufgrund der Ozonstörung wird von Valks und Velders [1999] mit 0.022 W/m^2 im Januar und 0.023 W/m^2 im Juli angegeben.

In einer Arbeit mit dem CTM mit dem Namen IMAGES von Granier und Brasseur [2003] wird gezeigt, dass der Straßenverkehr in den mittleren Breiten im Sommer der Nordhemisphäre das bodennahe Ozon um etwa 5 bis 15 Prozent erhöht. Im südhemisphärischen Sommer werden ebenfalls ähnlich starke relative Zunahmen berechnet. In der oberen Troposphäre werden von Granier und Brasseur [2003] 5 bis 8 Prozent Ozonzunahme im Juli berechnet. Die indirekte Klimawirkung des Straßenverkehrs wird mit einer etwa 3 -prozentigen Verringerung des global gemittelten Jahresmittels der Methanlebensdauer angegeben.

Kapitel 3

Das Modellsystem ECHAM4/CBM-IV

3.1 Allgemeines

Für die Simulation der Auswirkungen des Straßenverkehrs im Rahmen dieser Arbeit wurde das Modell der Allgemeinen Zirkulation (engl. *general circulation model*, GCM) ECHAM4 (Roeckner *et al.*, 1996], gekoppelt an das Chemiemodul CBM-IV (engl. *carbon-bond-mechanism*) [Roelofs und Lelieveld, 2000], verwendet. Im Folgenden wird die Wahl der Methode begründet. Anschließend wird das Atmosphärenmodell ECHAM4 und das Chemiemodul CBM-IV vorgestellt. Den Abschluß dieses Kapitels bildet eine Beschreibung der Simulationsexperimente.

3.2 Wahl der Simulationsmethode

Wünschenswert wäre eine Untersuchung, die auf der Basis von reinen Beobachtungsdaten durchgeführt wird. Dies ist bei der vorliegenden Fragestellung jedoch nicht möglich. Zunächst einmal sind die zur Verfügung stehenden Beobachtungsdaten nicht ausreichend räumlich und zeitlich aufgelöst, wodurch sich kein vollständiges Bild der Atmosphäre ergibt. Außerdem ist in der realen Atmosphäre bei der Fragestellung nach der Wirkung der Straßenverkehrsemissionen kein Experiment praktikabel, welches die gesuchte Wirkung bestimmt, da in solch einem Experiment beispielsweise alle Straßenverkehrsemissionen markiert oder abgeschaltet werden müssten. Eine denkbare nächste Methode wäre die Prozessierung von Beobachtungsdaten. Hierfür könnten Reanalysen des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF) verwendet werden. Auf diese Weise wäre die räumlich und zeitlich aufgelöste Information zu jedem Zeitschritt vorhanden, was optimal für eine Analyse wäre. Es entsteht jedoch eine Abweichung zwischen Beobachtungen und Modelldaten. Zusätzlich existiert diese Information nie beliebig aufgelöst (da dies viel zu umfangreich wäre). Als weitere denkbare Methode könnte nun ein Chemie-Transport-Modell (CTM) verwendet werden, welches einen Teil der Information aus den Re-Analysen extrahiert. Hierdurch erhält man jedoch immer noch keine konsistenten globalen Datensätze für jeden Zeitschritt. So wird beispielsweise die Photolyserate nicht korrekt berechnet, da die Spurengaskonzentration in einer gewissen Höhe nur unvollständig bekannt ist.

Hier bietet sich nun schließlich ein Modell der Allgemeinen Zirkulation (GCM) an, bei dem zu

jedem Zeitschritt/-punkt konsistente Datensätze vorliegen. Somit kann die Wirkung der Straßenverkehrsemissionen mit einem konsistenten Modell der Atmosphäre untersucht werden. Zusätzlich ist ein großer Vorteil eines GCMs, dass es erlaubt, Abschätzung für zukünftige Zeitpunkte vorzunehmen.

Aus den vorgenannten Gründen wurde in der vorliegenden Arbeit die Untersuchung mit Hilfe eines Modells der Allgemeinen Zirkulation, ECHAM4 mit Chemieschema, CBM-IV durchgeführt. Das Atmosphärenmodell ECHAM4 wurde bereits bei Untersuchungen zur Wirkung von anthropogenen Emissionen [Roelofs *et al.*, 1997] Luftverkehrsemissionen auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre [Grewe *et al.*, 2002], zur Ausbreitung von Rußemissionen (passiver Tracer) des Straßenverkehrs [Köhler *et al.*, 1999] und einer Vielzahl von anderen Fragestellungen eingesetzt. Das Chemiemodul CBM-IV erlaubt es, in der vorliegenden Modifikation höherkettige Kohlenwasserstoffe in einem globalen Modell zu berücksichtigen, und eignet sich folglich gut für die Modellierung der troposphärischen Chemie.

3.3 Das Atmosphärenmodell ECHAM4

Das in dieser Arbeit verwendete Modell der Allgemeinen Zirkulation, ECHAM4, das auf dem numerischen Wettervorhersagemodell des ECMWF basiert, beruht auf den primitiven Gleichungen der Allgemeinen Zirkulation. Prognostische Größen sind Vorticity, Divergenz, Temperatur, Bodendruck, spezifische Feuchte und Wolkenwasser. Bis zu 35 Tracer können standardmäßig im Modell mit einem semi-Lagrangeschen Transportschema transportiert werden. Prozesse, die unterhalb der gewählten Modellauflösung liegen, müssen parametrisiert werden. Hierzu wird deren Wirkung in Abhängigkeit von großskaligen Eigenschaften des Klimasystems dargestellt. ECHAM4 enthält Parametrisierung für die Strahlung, für stratiforme Wolkenbildung, Konvektion, den Einfluß von Schwerewelle, horizontale Diffusion, Bodenflüsse und vertikale Diffusion und für Oberflächenprozesse, wie z.B. ein Abflussschema für Niederschlag über Land. Als untere Randbedingung werden Bodenparameter in das Modell integriert. Hierzu werden die Land-Meer-Verteilung, die mittlere Orographie, Bodenalbedo, Rauheitslänge, Vegetationsanteile und Bodenparameter, wie z.B. Wärmekapazität und thermische Leitfähigkeit vorgeschrieben. Wie bereits in den Grundlagen dargestellt, ist die realitätsnahe Beschreibung der Oberflächeneigenschaften entscheidend für eine realistische Modellierung. Die im Modell verwendeten Depositionsraten stammen aus der Arbeit von Ganzeveld und Lelieveld [1995]. Die Temperatur der Landoberflächen wird mit einem 5-Schichten-Bodenmodell berechnet. Für die Temperaturen der Meeresoberflächen wird ein Jahresgang vorgeschrieben.

ECHAM4 ist ein spektrales Modell und stellt die Variablen (mit Ausnahme von Wasserdampf, Wolkenwasser und Spurenstoffen) in Reihen von Kugelflächenfunktionen dar, wobei eine Dreiecksabschneidung bei einer zu wählenden maximalen Großkreiswellenzahl durchgeführt wird. Das Modell wurde für die vorliegende Arbeit in einer horizontalen isotropen Auflösung von T30 betrieben. Dies entspricht einer horizontalen Auflösung von etwa 6° (etwa 670 km am Äquator) im Ortsraum.

Wasserdampf, Wolkenwasser und Spurenstoffe werden auf einem assoziierten Gaußschen Gitter

mit einem semi-Lagrangeschen Schema berechnet [Williamson und Rasch, 1994]. Das verwendete Transportschema ist numerisch diffusiv. Das Modell besitzt in der verwendeten Standardversion 19 vertikale Schichten zwischen Boden und einem Druckniveau von 10 hPa (Zentrum der obersten Schicht). Die Modellflächen bilden ein hybrides σ -p-Koordinatensystem. ECHAM4 unterscheidet zwischen großskaliger und konvektiver Bewölkung. Konvektive Bewölkung wird nach dem Massenfluschema von Tiedtke [1989] berechnet. Zusätzlicher vertikaler Transport findet durch die Parametrisierung von vertikaler Diffusion statt. Eine umfassende Beschreibung des Modells findet sich bei Roeckner et al. [1996].

3.4 Das Chemiemodul CBM-IV

Allgemeines

Wie in Abschnitt 2.4 dargestellt, spielen organische Verbindungen in der Troposphäre eine wesentliche Rolle. Aus diesem Grund wurde für die Modellierung ein Chemieschema verwendet, das die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe umfasst. Dieses Chemieschema wurde von Roelofs und Lelieveld [2000] an das Atmosphärenmodell gekoppelt. Das photochemische Schema für die Kohlenwasserstoffe beruht auf dem CBM-IV Mechanismus von Gery et al. [1989]. Das ursprüngliche Schema umfasste 33 Spurengase und 81 Gasphasenreaktionen und war gedacht für die Simulation der Ozonphotochemie über städtischen Gebieten mit hohen NO_x -Konzentrationen. Houweling et al. [1998] veränderten das Chemieschema jedoch dahingehend, dass auch stickoxidarme Bedingungen gut abgebildet werden. Hierdurch wurde die Ozonphotochemie über Reinluftgebieten verbessert. Das Chemieschema CBM-IV arbeitet mit einem Kohlenstoffbindungsmechanismus und enthält die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe. Der Lösungsansatz beruht auf einem iterativen Verfahren, der Euler-Rückwärts-Integration (engl. *Euler-Backward-Integration*, EBI). Der CBM-IV Mechanismus beruht auf dem Familienkonzept, bei dem Spurengase gemeinsamen Ursprungs mit ähnlicher Lebensdauer und reaktiven Eigenschaften in einer Familie zusammengefasst werden. Dieses Konzept und die Konsequenzen für die Photochemie werden genauer in den Arbeiten von Gery et al. [1989], Duncan und Chameides [1998], Houweling et al. [1998] und Pöschl et al. [2000] beschrieben. Das resultierende, in dieser Arbeit verwendete CBM-IV-Schema umfasst 30 Spezies und 68 Reaktionen.

Chemische Spezies im Chemiemodul

In der eingesetzten Modellkonfiguration werden die Spezies Formaldehyd, Ethen und Isopren aufgrund ihrer spezifischen Chemie und ihrer besonderen Bedeutung in der Umwelt explizit betrachtet. Die Kohlenstoffbindungen, Alkane, Alkene und höherwertige Aldehyde, werden durch Platzhalter repräsentiert. Dies sind die Kohlenstoffbindungsplatzhalter: Einfachbindung, Doppelbindung und die Aldehydgruppe. Die Aromaten hingegen werden bei den im Rahmen dieser Studie durchgeführten globalen Simulationen nicht wie im ursprünglichen CBM-IV-Schema vorgesehen explizit betrachtet, sondern nur in Form ihrer Abbauprodukte (Methylglyoxal und Alkane) berücksichtigt. Entsprechend werden die Emission der Aromatenen, Toluol und Xylen, in diese

beiden Gruppen umgerechnet. Zusätzlich erfolgt noch eine Acetonemission im Modell (ACET). Da die Reaktion von Aceton zu Formaldehyd rasch im Vergleich zum Modellzeitschritt abläuft, werden Acetonemissionen im Modell direkt als Formaldehyd emittiert. Insgesamt werden also sieben NMHC-Gruppen als Emissionenskataster, und ein Kohlenwasserstoff als abgeleitete Emission (Aceton) in das Modell integriert. Der Zeitschritt für die Lösung der chemischen Gleichungen beträgt 45 Minuten.

Vollständigkeit der modellierten Chemie

Der Vergleich von Modellberechnungen mit atmosphärischen Beobachtungen zeigte, dass in der oberen Troposphäre Messwerte teilweise höher liegen als die modellierten Werte, was auf eine zusätzliche, im Modell nicht berücksichtigte, HO_x -Quelle hindeutet (z.B. *Jaeglé et al.* [1997]). Das bedeutet, dass die HO_x -Photochemie noch nicht realistisch simuliert wird. Es wird angenommen, dass Aceton und Methylhydroperoxid diese Quellverbindungen sind. Nahe der Erdoberfläche weichen simulierte und gemessene Werte um einen Faktor von bis zu 0.7 voneinander ab [*Jaeglé et al.*, 1997]. Vermutungen zu den Ursachen umfassen mögliche Reaktionen von OH mit nichtgemessenen Kohlenwasserstoffen und Verlust von HO_2 auf Aerosolen. Diese Reaktionen sind in dem Chemie-Modul nicht enthalten. Da vollständige Sätze von Beobachtungsdaten meist nur für eine begrenzte Anzahl an Situationen vorliegen, werden Chemiemechanismen häufig gegeneinander verglichen, um systematische Abweichungen zu finden. *Kuhn et al.* [1998] finden bei einem Modellvergleich, dass CBM-4 im Vergleich zu den anderen getesteten Schemata (ADOM, EMEP, RADM2) niedrigere Ozonproduktionsraten berechnet. Zusätzlich finden sie starke Unterschiede zwischen allen betrachteten Modellen in den berechneten Konzentrationen (bis zu einem rms-Wert von 50 Prozent) der höheren Peroxide und höheren Aldehyde. Eine weitere wichtige Quelle für Fehler bei der Modellierung der Atmosphärenchemie sind die verwendeten Reaktionsraten, die häufig noch nur unzureichend genau bekannt sind und entsprechend immer wieder experimentell im Labor vermessen werden.

3.5 Randbedingungen des Modells

Mit dem Modellsystem werden sogenannte Zeitscheibenexperimente durchgeführt. Das heißt, ein bestimmtes Jahr wird mehrere Male gerechnet, um die natürliche Variabilität im Modellsystem abzubilden. Für jede Zeitebene werden dem Modell entsprechende Randbedingungen vorgegeben. Hierzu zählen die Emissionen in die Atmosphäre, die Meeresoberflächentemperaturen und die atmosphärischen Konzentrationen langlebiger Spurengase. In Tabelle 3.1 sind wesentliche Randbedingungen für die Simulation des Jahres 1990 angegeben. Zusätzlich ist angegeben, ob die vom Modell gesehenen Emissionen einen Jahresgang aufweisen.

Konzentrationsrandbedingungen

Für langlebige Spurengase werden globale Konzentrationsverteilungen vorgegeben. So wird für CO_2 im Zeitscheibenexperiment für das Jahr 1990 ein Wert von 353 ppm angesetzt. Für N_2O

Tabelle 3.1: Randbedingungen des Modellsystems für 1990. Konzentrationsrandbedingungen und direkte Emissionen pro Jahr (Flussrandbedingung) für die Spurengase in ECHAM4. Die Bedingung gilt entweder am Unterrand, in der Troposphäre, in der Stratosphäre, am Oberrand des Modellgebietes oder global.

Spezies	Bedingung	Jahresgang	Modellschicht
Konzentration			
CH ₄	1.72 ppm	nein	Unterrand
N ₂ O	310 ppb	nein	Unterrand
CO ₂	353 ppm	nein	Global
strat. O ₃	parametrisiert	ja	Stratosphäre
Direkte Emission pro Jahr			
NO _x	38.1 Tg [N] a ⁻¹	ja	Unterrand + Troposp.
CO	868.4 Tg [CO] a ⁻¹	nein	Unterrand
NMHC ^a	105.7 Tg [C] a ⁻¹	nein	Unterrand

^aNMHC ohne Isopren

wird entsprechend der Wert 310 ppb verwendet. Für Methan wird eine Konzentrationsrandbedingung vorgegeben. In der untersten Modellschicht wird eine CH₄-Konzentration von 1.72 ppm vorgeschrieben. Stratosphärisches Ozon wird mit Hilfe einer Parametrisierung nach *Rosenlof et al.* [1995] in das Modell integriert.

Flussrandbedingung

Die Randbedingung für Spurengase, die nicht langlebig sind (Lebensdauer maximal etwa 60 Tage), wird in der Form von Emissionen im Modell vorgegeben. Für anthropogene und biogene Emission der Stickoxide werden Bodenemissionsraten in einer flächeneinheitsbezogenen Form in das Modell eingebracht. Die natürlichen Emissionen durch Mikroorganismen, Feuer, Ozeane und Vegetation werden als reine Bodenemissionen integriert. Die Emissionen durch Blitze hingegen werden in verschiedenen Höhen in das Modell eingebracht. Die räumliche und zeitliche Verteilung der Stickoxidemissionen durch Blitze wird online an Hand des Oberrandes der hochreichenden konvektiven Wolken und des hiermit verbundenen Massenflusses bestimmt. Für Blitze über den Ozeanen wird angenommen, dass sie einen Faktor 10 weniger effektiv bei der Stickoxidproduktion sind und für Wolken-Boden-Blitze wird angenommen, dass sie dreimal so effektiv Stickoxide produzieren wie Wolke-Wolke-Blitze über Land. Diese Werte basieren auf Arbeiten von *Levy* [1996] und *Galliaro-Klenner und Cooray* [1996]. Da die NO_x-Emissionen durch Mikroorganismen in Böden und durch Biomasseverbrennung einen Jahresgang aufweisen, werden unterschiedliche Monatsmittelwerte in den Modellsimulationen vorgegeben.

Kapitel 4

Vergleich des Modellsystems mit Beobachtungsdaten

4.1 Allgemeines

In diesem Kapitel wird die Realitätsnähe der simulierten Spurengasverteilungen bewertet. Die Verteilungen sind das Ergebnis von passivem Transport und chemischer Umwandlung. *Reithmeier* [2001], *Reithmeier und Sausen* [2002] und *Jacob et al.* [1997] untersuchten das Transportverhalten von ECHAM4 mit Hilfe von Simulationen der Verteilung von Radon-222 (^{222}Rn), Schwefelhexafluorid (SF_6) und C-14 (^{14}C). Durch einen Vergleich mit Beobachtungsdaten fanden sie, dass das Modell die Mischung in der Grenzschicht signifikant unterschätzt. Unterschiede bis zu einem Faktor 2 wurden gefunden. Das bedeutet, dass die simulierten Spurengaskonzentrationen in den bodennahen Schichten in Quellregionen tendenziell zu hoch und in Abluftregionen, in denen ein Absinken von Luftmassen stattfindet, zu niedrig sind. *Reithmeier* [2001] fand weiterhin, dass das Modell im Bereich der UT/LS zu diffusiv ist. Konzentrationsgradienten werden in diesem Bereich vom Modell unterschätzt.

Die Darstellung der Chemie im Modell wurde durch den Vergleich von berechneten mit beobachteten Spurengasverteilungen für Ozon, PAN und CO untersucht [*Roelofs et al.*, 1997; *Roelofs und Lelieveld*, 2000]. In *Roelofs und Lelieveld* [2000] werden die Spurengasverteilungen von Kohlenmonoxid und PAN verglichen. Das Modellsystem - das auch in der vorliegenden Arbeit verwendet wird - gibt den beobachteten jahreszeitlichen Verlauf von Kohlenmonoxid an den Bodenstationen (Mace Head, Ungarn, Bermuda, Mauna Loa, Ascension, Samoa, Cuiaba und Syowa) realitätsnah wieder. In der Nordhemisphäre zeigen sich minimale Werte im Sommer und maximale Werte im Spätwinter und am Anfang des Frühlings. Dies ist in Übereinstimmung mit dem jahreszeitlichen Verlauf der atmosphärischen Oxidationskapazität. In der Südhemisphäre finden *Roelofs und Lelieveld* [2000] das Maximum im Frühling, wie auch in den Beobachtungsdaten, zeitgleich mit Biomasseverbrennung. Ein ausgeprägtes Frühlingsmaximum in Ascension in den Beobachtungsdaten wird vom Modell nicht wiedergegeben. In *Roelofs et al.* [1997] wird die Unterschätzung von Konzentrationen in der PBL des tropischen Atlantiks mit der zu geringen Durchmischung von PBL und FT begründet. Zusätzlich zeigen *Roelofs und Lelieveld* [2000],

dass eine Anpassung von Emissionsdaten der Biomasseverbrennung zu einer deutlich höheren Übereinstimmung von Modell- und Beobachtungsdaten führt. Aus dem Vergleich von Modell- mit Beobachtungsdaten von einzelnen Messkampagnen folgern *Roelofs und Lelieveld* [2000], dass die PAN-Konzentrationen in der selben Größenordnung liegen und gleiche Vertikalverteilungen aufweisen, obwohl das Modell im Westpazifik die PAN-Konzentration um den Faktor 2 überschätzt. *Roelofs und Lelieveld* [2000] halten es für möglich, dass das Zusammenfassen von verschiedenen höheren Kohlenwasserstoffen in dieser Region eine im Vergleich zur Realität zu hohe PAN-Bildung zur Folge hat. Langzeitmessungen von PAN für einen Vergleich mit den Modelldaten [*Roelofs und Lelieveld*, 2000] werden nur an einer geringen Anzahl von Stationen durchgeführt (Teneriffa, Kollummerwaard, Nova Scotia, Mauna Loa). Das beobachtete Frühlingsmaximum wird in Teneriffa annähernd wiedergegeben, in Kollummerwaard hingegen gibt das Modell ein Sommermaximum an. Die absoluten Werte an beiden Stationen sind niedriger als beobachtet, teilweise um bis zu 50 Prozent. Die Variabilität wird unterschätzt, begründet durch die grobe Modellauflösung. Ferner geben *Roelofs und Lelieveld* [2000] die hohen Temperaturen in der Region von Mauna Loa, die zu hohen Nord-Süd-Gradienten führen, als Begründung für dort gezeigte deutliche Abweichungen zwischen Modell- und Beobachtungsdaten an: simulierte Konzentrationen einige Grad südlich liegen näher an den Beobachtungen.

Da für das Hydroxylradikal keine Messdaten in vergleichbarer Menge und Qualität vorliegen, kann hier eine Bewertung nur durch den Vergleich zweier Chemieschemata versucht werden. Hierbei wurde von *Houweling et al.* [1998] für verschmutzte Gebiete gefunden, dass das Chemie-Modul CBM-IV zu einer Unterschätzung der OH-Konzentrationen neigt, da der beim Abbau von Alkanen beobachtete Verbrauch von OH überschätzt wird. Sie folgern, dass OH-Abweichungen um mehr als 25 Prozent dennoch nur selten auftreten. Unter tropischen Bedingungen neigt CBM-IV nach *Houweling et al.* [1998] zu einer Überschätzung von OH, was durch die Darstellung von Isopren im Schema bedingt wird. Da in diesem Fall die OH-Konzentration sehr gering ist (kleiner als 10^5 Moleküle/cm³), bedeuten hohe relative Unterschiede der OH-Konzentrationen nur geringe absolute Unterschiede.

In der vorliegenden Arbeit werden zwei für die Wirkung des Straßenverkehrs wichtige Spurengase betrachtet: die troposphärischen Säulendichten des primären Spurengases Stickstoffdioxid (NO₂) und Ozonsondenmessungen des sekundären Spurengases Ozon (O₃). Stickstoffdioxid wurde für den Vergleich gewählt, da ein Viertel der Stickoxidemissionen aus dem Straßenverkehr stammen [*Olivier et al.*, 1996]. Die Ozonverteilung wiederum wird durch die vom Straßenverkehr emittierten Spezies beeinflusst.

Als weitere chemische Spezies wird die Ozonverteilung mit Beobachtungsdaten verglichen. Hierbei wird auf bestehende Arbeiten verwiesen. Die Ozonkonzentrationen wurden in *Roelofs und Lelieveld* [2000] und *Houweling et al.* [1998] mit Messungen sowohl von Bodenstationen, als auch von Sondenaufstiegen verglichen. Um die Ozonverteilung in höheren Schichten der Modellatmosphäre zu validieren, wurden Radiosondenaufstiege aus *Roelofs und Lelieveld* [2000] verwendet.

Houweling et al. [1998] vergleichen mit CBM-IV simulierte Ozonverteilungen mit Beobachtungsdaten. Sie fanden, dass die NMHC-Chemie einen deutlichen Einfluss auf die Ozonverteilung an den 'industrialisierten' Stationen besitzt. Die NMHC-Chemie ermöglicht es, das sommerliche photochemische bedingte Ozonmaximum im Modell abzubilden. Die starken Gradienten in der

Ozonverteilung, beispielsweise an der Ostküste der USA, werden jedoch durch die grobe Modelauflösung nicht erfasst.

4.2 Troposphärische NO₂-Säulendichten

Mit dem satellitengetragenen Messinstrument GOME (engl. *global ozone monitoring experiment*), das auf dem Satelliten SCIAMACHY arbeitet, werden troposphärische Säulendichten von NO₂ bestimmt [Richter und Burrows, 2002]. Da die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs am Boden freigesetzt werden und sich in der Troposphäre ausbreiten, sind troposphärische NO₂-Säulendichten gut geeignet, die Unsicherheit der durch den Straßenverkehr beeinflussten Verteilungen abzuschätzen. Hierzu werden Monatsmittel aus den Messungen der Jahre 1996 bis 2000 mit den im Modell berechneten Werten des mittleren meteorologischen Zustands (Vier-Jahres-Mittel) für das Jahr 1990 verglichen.

4.2.1 Berechnung der troposphärischen Säulendichten aus Satellitendaten

Der satellitengetragene GOME-Sensor misst unter anderem die NO₂-Säulendichten nach der DOAS-Methode im spektralen Intervall 425 bis 450 nm. Der Sensor überfliegt jeden Tag zu um 11 Uhr den Äquator, weshalb die Messung für die jeweiligen Gitterzellen zur selben Uhrzeit erfolgt. Mit Hilfe der TE-Methode (engl. *tropospheric excess*) können hieraus 'troposphärische' Säulendichten bestimmt werden: Zunächst wird an Hand eines 'Reinluftsektors' über dem Pazifik (170°E bis 180°E) für jede geographische Breite eine stratosphärische NO₂-Säulendichte bestimmt. Die 'troposphärische' NO₂-Säulendichte ergibt sich dann als Differenz der Gesamtsäulendichte und der im Reinluftsektor bestimmten stratosphärischen Säulendichte. Voraussetzung für die TE-Methode ist die Annahme, dass Stickstoffdioxid in der Stratosphäre longitudinal homogen verteilt ist und der NO₂-Gehalt der Troposphäre im Reinluftsektor vernachlässigbar ist. Heland *et al.* [2002] schätzen für optimale Messbedingungen den Fehler einer Satellitenmessung mit $15 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² ab. Velders *et al.* [2001] zeigten, dass der Fehler der vom Satelliten bestimmten troposphärischen Säulendichten grundsätzlich geringer wird, wenn mehrere Messungen gemittelt werden. Da das GOME-Instrument nur bei wolkenfreien Bedingungen messen kann, sind die Standardabweichungen im Winter (weniger verwertbare Messungen) vergleichsweise höher. Heland *et al.* [2002] fanden, dass der Sensor vergleichsweise wenig sensitiv auf bodennahes NO₂ reagiert. Im Winter mit häufigen Inversionswetterlagen und einer dünnen Grenzschicht führt dies zu einer Unterschätzung der tatsächlichen troposphärischen Säulendichte. Für den in dieser Arbeit durchgeführten Vergleich wurden die Messungen der Jahre 1996 bis 2000 zu Monatsmitteln zusammengefasst.

4.2.2 Berechnung der troposphärischen Säulendichten im Modell

Für die Berechnung der troposphärischen Säulendichten aus den in der vorliegenden Arbeit angefertigten Kontrollsimulation mit ECHAM4/CBM-IV wurde ebenfalls die TE-Methode angewendet. Lauer *et al.* [2002] zeigten, dass diese Methode auch für Modelldaten angewendet werden

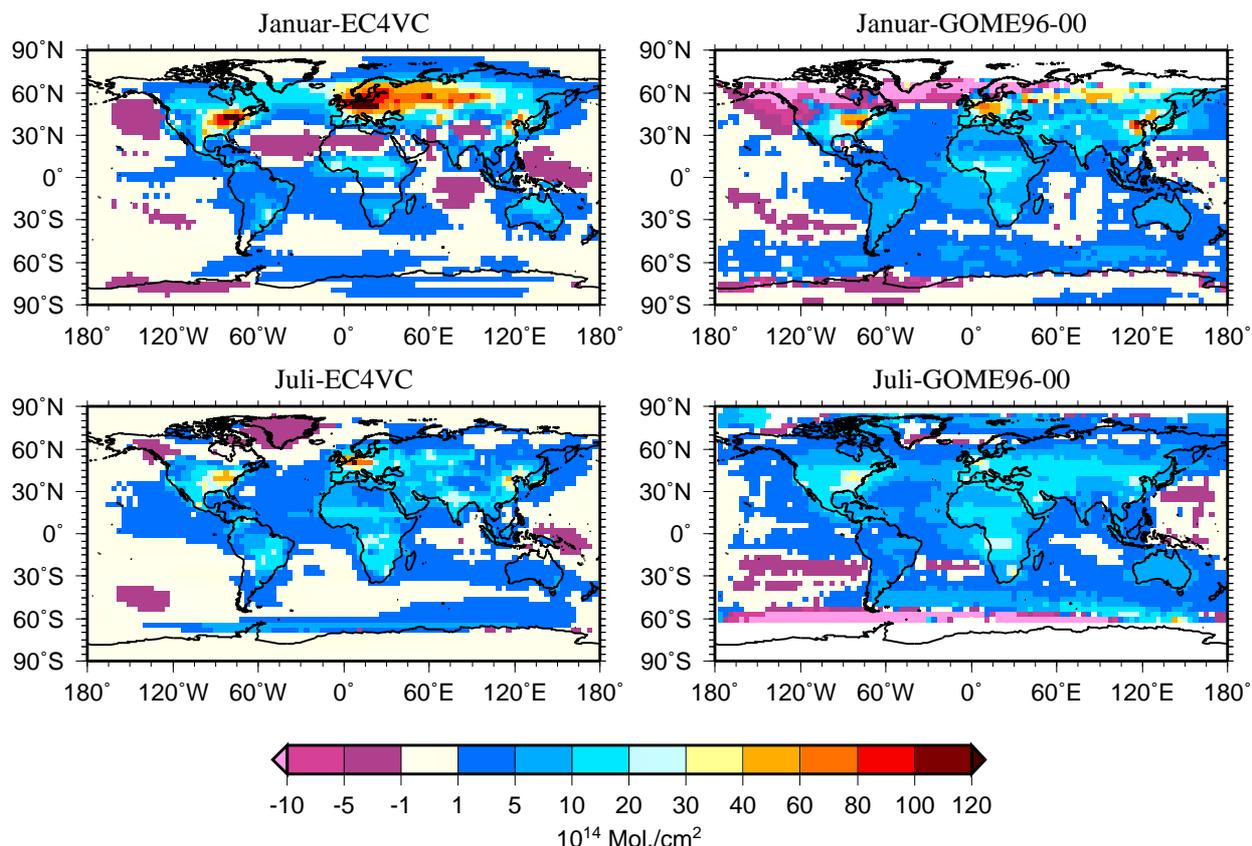


Abbildung 4.1: Horizontale Verteilung der troposphärischen NO₂-Säulendichten nach Modellberechnungen mit ECHAM4/CBM-IV (*links*) und Satellitenmessungen GOME (*rechts*, nach [Richter und Burrows, 2002]) in 10¹⁴Moleküle pro cm² für Januar (*oben*) und Juli (*unten*). Datenlücken in den Satellitendaten sind weiß dargestellt.

kann. Zu diesem Zweck wurden aus den simulierten Verteilungen langjährige Monatsmittel über vier Jahre gebildet. Monatsmittel für NO₂ - bei denen über den ganzen Tag gemittelt wird - liegen im Vergleich zu den GOME-Daten (Messung erfolgt tagsüber) systematisch höher, da auf Grund der Titration mit Ozon (Reaktion (2.4)) während der Nacht die gesamten Stickoxide in der Form von NO₂ vorliegen. Bei der Berechnung des Monatsmittels im Modell wird während der Nacht folglich systematisch mehr NO₂ berechnet als tagsüber wenn der Sensor misst und ein Teil der NO_x in der Form NO vorliegt. Folglich ergibt sich ein systematischer Unterschied zwischen den berechneten und den vom GOME-Sensor bestimmten Modellsäulendichten. Velders *et al.* [2001] geben an, dass die zu den festen Überflugzeiten (beispielsweise 10:30 Uhr Lokalzeit für nördliche mittlere Breiten) in Europa und den USA gemessenen NO₂-Säulendichten etwa 80 Prozent der vom Modell berechneten 24-h-Mittel betragen und etwa 50 bis 70 Prozent in den Regionen Südamerika und Afrikas. Im Folgenden werden geographische Verteilungen für Januar und Juli sowie regional gemittelte Jahrgänge der NO₂-Säulendichten jeweils mit Messungen verglichen.

4.2.3 Geographische Verteilungen

Für die Monate Januar und Juli sind in Abbildung 4.1 die mit ECHAM4/CBM-IV berechneten troposphärischen NO₂-Säulendichten den GOME-Satelliten-Messungen gegenübergestellt. Die regionalen Muster der troposphärischen Stickstoffdioxidsäulendichten in Modell- und Satellitendaten stimmen überein: Das wesentliche Merkmal der Stickoxidverteilung mit hohen Werten über den Quellregionen und deutlich niedrigeren Werte über Ozeanen und entfernten Regionen wird in beiden Verteilungen wiedergegeben. Die Position der Maxima ist in Modell- und Satellitendaten meist identisch; die Absolutwerte sind teilweise jedoch unterschiedlich hoch. So sind beispielsweise im Januar die troposphärischen Säulendichten im Osten der USA und in Europa mit Werten über $120 \cdot 10^{14}$ Moleküle pro cm² im Modell deutlich höher als in den Satellitendaten. Dort finden sich nur Werte unter 80 (Osten der USA) bzw. unter $60 \cdot 10^{14}$ Moleküle pro cm² (Europa). Meist liegen die im Modell berechneten Säulendichten höher, als die vom Sensor bestimmten Werte. Nur im Januar über dem Osten Chinas liegen die Säulendichten im Modell niedriger. Die maximalen Säulendichten über den Quellgebieten auf der Nordhemisphäre betragen im Modell bis zu $80 \cdot 10^{14}$ Moleküle pro cm². In den Satellitendaten werden nur maximale Werte bis $40 \cdot 10^{14}$ Moleküle pro cm² ermittelt.

Augenfällig ist, dass sowohl in den Modell-, als auch in den Satellitendaten einzelne Regionen mit negativen Säulendichten auftreten. Dies ist eine Folge der Berechnungsmethode: Zum einen ist es möglich, dass die troposphärischen Säulendichten entgegen der Annahme der TE-Methode im Reinluftsektor nicht vernachlässigbar sind. Zum anderen kann eine longitudinale Inhomogenität der stratosphärischen Säulendichten ebenfalls zu negativen Säulendichten führen. Die TE-Methode liefert in diesen Gebieten, in denen nur sehr geringe troposphärische NO₂-Säulendichte vorliegen (meist kleiner als 10^{14} Moleküle pro cm²) im Modell also keine sinnvollen Ergebnisse.

Der Vergleich der Modelldaten aus ECHAM4/CBM-IV mit den gemessenen troposphärischen Säulendichten nach GOME zeigt, dass das Modellsystem die prinzipiellen Muster der globalen Verteilung der troposphärischen NO₂-säulendichten wiedergibt. Das bedeutet, dass die grundlegenden troposphärischen Prozesse der Stickoxidchemie und des Transports vom Modellsystem realistisch abgebildet werden. Die Abweichungen der im Modell berechneten Absolutwerte der NO₂-Säulendichten betragen jedoch im Einzelfall bis zu 50 Prozent. Die Unsicherheiten werden im nächsten Abschnitt genauer bewertet und systematische Unterschiede werden aufgezeigt, in dem die jahreszeitlichen Variation der regionalen Mittelwert gezeigt wird.

4.2.4 Analyse des Jahresganges

Vergleich industrialisierter Regionen

In Europa (Abbildung 4.2 a) zeigen die Werte der ECHAM4/CBM-IV-Simulation wie die GOME-Messungen - bis auf den GOME-Wert im Januar - einen ähnlich ausgeprägten Jahresgang. Der GOME-Wert im Dezember liegt mit $25 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² niedriger als im November und auch deutlich niedriger als im Januar ($34 \cdot 10^{14}$ Mol./cm²). Deutlich unterschiedlich ist die Amplitude des Jahresganges - bei den Modelldaten ist sie etwa doppelt so hoch wie bei den Satellitendaten.

Im Osten der USA (Abbildung 4.2 b) zeigen Modellsimulation und Messungen erneut die glei-

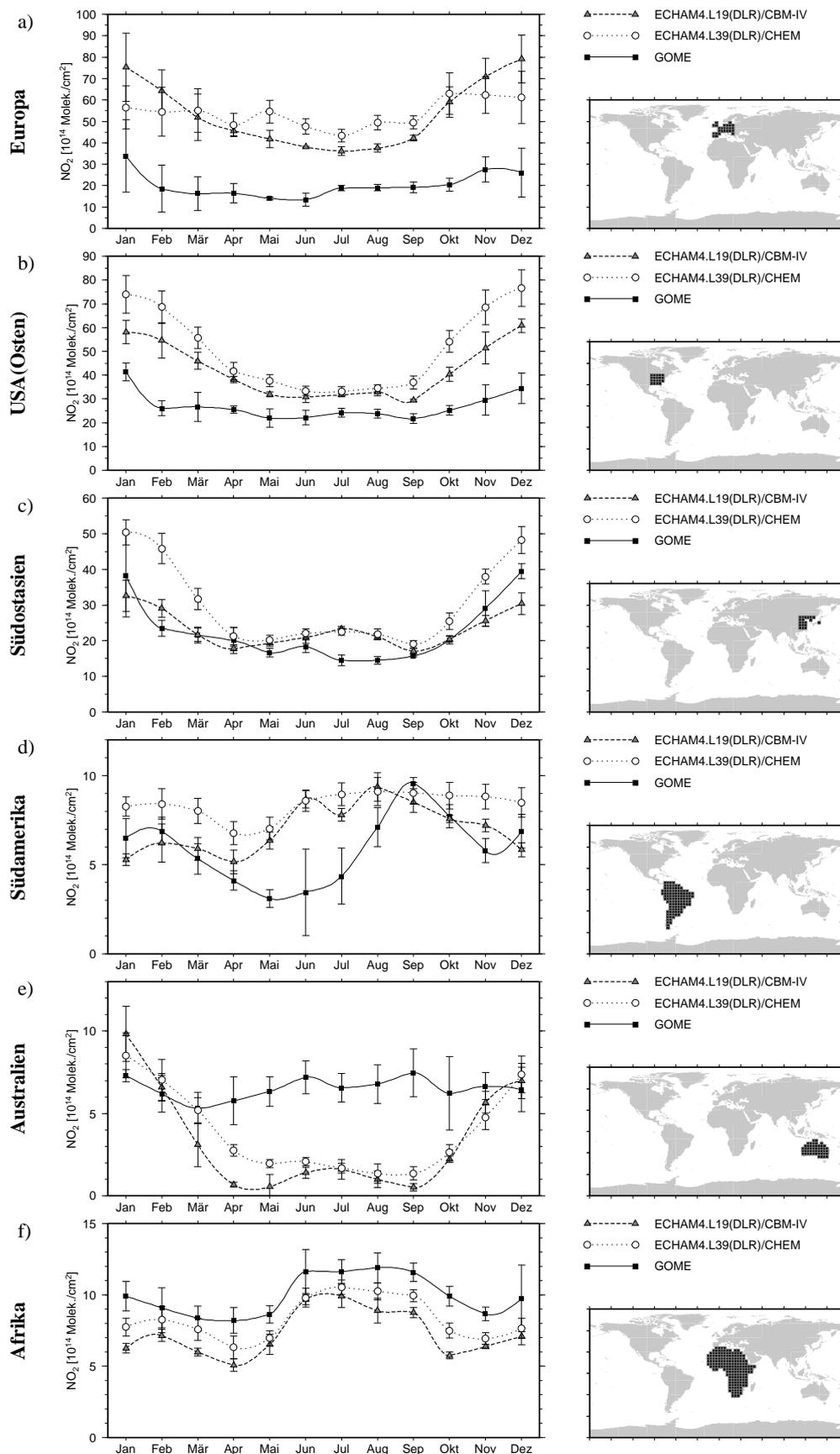


Abbildung 4.2: (a-f): Saisonale Variation der regionalen Mittelwerte der troposphärischen NO₂-Säulendichten [Moleküle pro cm²] aus Modell- und Satellitendaten. Die 2- σ -Werte der einzelnen Monatsmittel sind als Balken angezeigt. In den Karten sind die Regionen dargestellt, über die gemittelt wurde.

che Saisonalität, die Amplitude des Jahresgangs ist jedoch wiederum für die Simulation ($30 \cdot 10^{14}$ Mol./cm²) gut 50 Prozent höher als für die Messungen ($20 \cdot 10^{14}$ Mol./cm²). Auch in dieser Region fallen im Winter deutlich höhere Unterschiede zwischen Modell- und Satellitendaten auf. Im Sommer (Mai bis September) hingegen weisen die beiden Jahresverläufe einen ähnlichen Verlauf auf - die Beobachtungsdaten liegen nur systematisch etwa $8 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² höher. Ab Oktober laufen die beiden Kurven auseinander bis zu einer maximalen Abweichung von $25 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² im Dezember. Anschließend nähern sich die Kurven der Jahresverläufe wieder an, bis schließlich im Mai nur noch gut $8 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² Abweichung bestehen. Für diese jahreszeitlich variierende Abweichung werden im folgenden Abschnitt mögliche Erklärungen gegeben. In Südostasien (Abbildung 4.2 c) weist das Modell im Winter geringere und im Sommer höhere NO₂-Säulendichten als die Satellitendaten auf. Die Amplitude des Jahresverlaufs in nun für die Simulation 50 Prozent niedriger als die der GOME-Messungen.

Bewertung der Unterschiede

Insgesamt gilt für industrialisierte Regionen, dass zwischen Mess- und Modelldaten ein jahreszeitlich variierender Unterschied auftritt. Das ganze Jahr über liegen die Satellitenwerte systematisch niedriger als die Modellwerte - im Winter ist die Abweichung am größten. Diese Abweichung kann sowohl durch eine Unterschätzung in den Satellitendaten als auch durch eine Überschätzung in den Modelldaten verursacht werden.

Mögliche Erklärungen für eine Überschätzung im Modell sind, neben dem in Abschnitt 4.2.3 dargestellten systematischen Unterschied durch die Mittelungszeitpunkte, zu hohe NO_x-Emissionen und ein zu schwacher Senkenprozess. Eine Senke für NO₂ stellt die Reaktion mit OH zu HNO₃ (Reaktion (2.9)) und die Bildung von PAN (temporär) dar. Die Bildung von HNO₃ wird wesentlich durch die OH-Konzentration beeinflusst. Diese ist nach *Houweling et al.* [1998] im Chemieschema CBM-IV tendenziell in belasteten Gebieten zu gering (Abschnitt 4.1), wodurch eine Unterschätzung dieser Senke auftritt. Bei PAN hingegen zeigten sich deutlich niedrigere Konzentrationen im Modell als in den Beobachtungen. Somit liegt hier tendenziell eine Unterschätzung der (temporären) Senke PAN vor, wodurch höhere NO₂-Werte im Modell die Folge wären. Zu den Emissionsdaten ist zu sagen, dass diese mit einer hohen Unsicherheit belastet sind (Abschnitt 2.5). Jedoch wurden im Modell Emissionen für das Jahr 1990 integriert, die nach Abschätzungen, beispielsweise von *IPCC* [2001], niedriger sind als die Ende der 90'er Jahre, dem Zeitraum der Satellitenmessungen. Somit wäre durch die Emissionsmengen tendenziell eine Unterschätzung zu erwarten, doch sind hier auf Grund der hohen Unsicherheit der Emissionsmengen keine gesicherten Aussagen möglich. Die Berechnungen von *Lauer et al.* [2002] (auch Abbildung 4.2) mit ECHAM4.L39(DLR)/CHEM zeigen ebenfalls deutlich höhere NO₂-Säulendichten im Modell als in den Satellitendaten. Sie verwendeten für ihre Simulationen ECHAM4 mit dem Chemieschema CHEM [*Steil et al.*, 1999] welches nur die Hintergrundchemie, ohne höhere Kohlenwasserstoffe, umfasst. Sie folgerten, dass die Verwendung eines Chemieschemas, in dem die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe berücksichtigt wird, zu einer Verringerung der Unterschiede zwischen Modell- und Satellitendaten beitragen würde. Wie obiger Vergleich zeigt, berechnet das Chemies-

chema CBM-IV (in der vorliegenden Arbeit verwendet) die troposphärischen NO₂-Säulendichten beispielsweise im Winter im Osten der USA um maximal 25 %. Doch weisen die mit CBM-IV berechneten Säulendichten um noch einmal etwa den gleichen Betrag (etwa $20 \cdot 10^{14}$ Mol./cm²) von den Satellitendaten ab.

Diese Unterschiede können auch mit einer Unterschätzung in den Satelliten-Messungen begründet werden. Die Satellitenmessung weist eine deutlich geringere Sensitivität auf NO₂ in den unteren Schichten der Atmosphäre auf (Abschnitt 4.2.1). Der Beitrag des - möglicherweise unterschätzten - bodennahen Stickstoffdioxids läßt sich wie folgt abschätzen. Für eine Schicht mit 200 Meter Dicke, bei Normaldruck und 273 K mit einem Mischungsverhältnis von 1 ppb ergibt sich ein Beitrag zur troposphärischen NO₂-Säulendichte von gut $5 \cdot 10^{14}$ Mol./cm². In den Modellsimulationen werden am Boden in den USA und in Europa stellenweise Mischungsverhältnisse von mehr als 3 ppb berechnet. Somit ist insgesamt eine Unterschätzung von bis zu $15 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² möglich.

Ein Teil der systematischen Abweichung in industrialisierten Gebieten kann somit mit der fehlenden Sensitivität des Sensors auf die unteren Schichten der Atmosphäre begründet werden. Unter der Annahme, dass die Unterschiede alleine durch die fehlende Sensitivität auf bodennahes Stickstoffdioxid zustande kommt und diese Unterschiede einen konstanten Wert das ganze Jahr über besitzen ergibt die Betrachtung der Amplitude des Jahresverläufe (in den USA bei GOME $20 \cdot 10^{14}$ Moleküle /cm² und bei ECHAM4/CBM-IV $30 \cdot 10^{14}$ Moleküle /cm²) eine Unsicherheit der Amplitude von 50 Prozent. Wie bereits in Abschnitt 4.2.1 diskutiert sind die Messungen im Winterhalbjahr mit größerer Unsicherheit behaftet und es kann bei entsprechenden meteorologischen Bedingungen zu einer verstärkten Unterschätzung der troposphärischen Säulendichte kommen. Somit kann mit der neuen Annahme, dass der Sensor nur im Winter die Säulendichten (um bis zu $15 \cdot 10^{14}$ Mol./cm²) unterschätzt, eine erhöhte Amplitude des Jahresverlaufs für die GOME-Daten berechnet werden. Diese hat für den Osten der USA die gleiche Größenordnung ($20 + 15 \cdot 10^{14}$ Mol./cm²) wie die der Modelldaten ($30 \cdot 10^{14}$ Moleküle /cm²). Bei Europa weicht die erhöhte Amplitude des Jahresverlaufs (etwa $20 + 15 \cdot 10^{14}$ Mol./cm²) immer noch um gut 20 Prozent von der Amplitude der Modelldaten ($43 \cdot 10^{14}$ Mol./cm²) ab. Die Abweichungen in Europa liegen also deutlich höher: im Juli bei $15 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² und im Januar bei mehr als $40 \cdot 10^{14}$ Mol./cm². Hier müssen weitere Effekte eine Rolle spielen, wie die oben angesprochene mögliche Überschätzung der Emissionen im Modell oder die zu schwache Senke von NO₂ im HNO₃.

In der Region Südostasien zeigen sich deutlich andere Unterschiede als in Europa und in den USA: in den Satellitendaten zeigt sich eine um 50 Prozent höhere Amplitude des Jahresgangs. In Südostasien (v.a. China) sind Emissionsmengen mit einer hohen Unsicherheit behaftet. Zusätzlich werden im Jahr 1990 und dem Zeitraum 1996 bis 2000 deutlich unterschiedliche Emissionsmengen erwartet, da diese Region ein starkes wirtschaftliches Wachstum aufweist. Beispielsweise wäre unter der Annahme von höheren Stickoxidemissionen für das Modell im Winter (Oktober bis April) der Jahresverlauf der NO₂-Säulendichten deutlich ähnlicher und die Amplitude des Jahresverlaufs würde zunehmen und sich der von GOME beobachteten Säulendichte nähern.

Vergleich entlegener Regionen

In diesen entlegenen Regionen (von engl. *remote*) liegen die absoluten NO₂-Säulendichten deutlich, um den Faktor 5 bis 10, niedriger als in industrialisierten Regionen. Die absoluten Säulendichten liegen dort teilweise niedriger als der von GOME angegebene Fehler [Heland *et al.*, 2002]. Für Südamerika (Abbildung 4.2 d) zeigen simulierte und gemessene Säulendichten eine stark unterschiedliche Saisonalität. Die Ursache für dieses Phänomen liegt (wie unten diskutiert) in dem im Modell angenommenen Jahresgang der Biomasseverbrennung, da in Südamerika die atmosphärische Stickoxidverteilung durch die Emissionen aus der Biomasseverbrennung bestimmt wird.

Der Vergleich der troposphärischen Säulendichten in Australien zeigt an, dass die eingesetzte Methode für Australien im Zeitraum März bis Oktober bei den Modelldaten versagt. Beide Simulationen geben in den Monaten März bis Oktober Werte unter $3 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² an. Diese Werte liegen im Vergleich zu den Messungen um mehr als den Faktor zwei zu niedrig. Die berechneten, sehr niedrigen, troposphärischen Säulendichten deuten an, dass in dem als Reinluftsektor definierten Gebiet im Modell troposphärische NO₂-Säulen vorliegen und nicht wie angenommen nur stratosphärische Anteile. In den Monaten November bis Februar werden hingegen vergleichbare Werte berechnet.

Für Afrika (Abbildung 4.2 f) stimmt der aus der Modellsimulation berechnete Jahresgang der troposphärischen Säulendichte qualitativ mit dem aus GOME-Messungen folgenden überein. Maximale Werte werden jeweils im Nord-Sommer zwischen Juni und September erreicht. Die simulierten Säulendichten sind jedoch systematisch um etwa $2 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² geringer als die gemessenen Werte.

Bewertung der Unterschiede in entlegenen Regionen

In Südamerika zeigte der Vergleich von Modell- mit Beobachtungsdaten, dass die Saisonalität der Emissionen im Modell nicht realitätsnah (Zeitraum 1997-2000) ist. Durch eine Verschiebung der Emissionszeitpunkte um nur zwei Wochen konnten die Abweichungen deutlich verringert werden [persönliche Mitteilung Lauer, 2002].

Das Ergebnis für die Region Australien zeigt, dass im Modell in den Monaten März bis Oktober im Reinluftsektor troposphärisches NO₂ vorliegt, das in den Satellitendaten nicht gemessen wird. Ursache hierfür können einerseits zu hohe Emissionen in Australien und Neuseeland oder zu effektiver zonaler Transport in den Reinluftsektor sein. Zu hohe Emissionen führen nur zu dem beobachteten Unterschied, wenn diese nicht in der analysierten Region stattfinden. Denn ansonsten würden die Stickoxidkonzentrationen in Australien um ein Vielfaches erhöht sein, da die Stickoxide die Verteilung in der Quellregion stärker erhöhen müssten, als in dem mehrere Tausend Kilometer entfernten Reinluftsektor. Somit führen nur zu hohe Emissionen in Neuseeland zu diesen extrem niedrigen Säulendichten in Australien. Ein zu effektiver Transport von NO₂ ist insbesondere möglich, wenn Senken zu schwach oder die PAN-Bildung zu stark ist. Für PAN kann wegen fehlender Messungen in dieser Region keine Aussage gemacht werden. Die Senke von NO₂ durch die Reaktion von OH ist in diesen Breiten eher zu stark, da OH in tropischen Breiten tendenziell überschätzt wird (Abschnitt 4.1).

In Afrika liegen die Satellitendaten systematisch höher als die Modelldaten. Die gefundenen Unterschiede sind jedoch sehr geringe absolute Werte von weniger als $2 \cdot 10^{14}$ Mol./cm². Der ähnliche Jahresverlauf der NO₂-Säulendichten zeigt insgesamt, dass die grundlegenden Prozesse in dieser Region im Modell realitätsnah abgebildet sind. In diesen Regionen ist in den Satellitendaten die mögliche Unterschätzung durch nicht erfasste Konzentrationen in der Grenzschicht vernachlässigbar klein.

4.2.5 Diskussion und Bewertung

Insgesamt ergab der Vergleich, dass das Modell in industrialisierten Gebieten die troposphärische Verteilung des Stickstoffdioxids im Rahmen der Fehlerquellen (Bewölkung, Bodenschicht) mit einem Unterschied der Amplitude des Jahresverlaufs von etwa 20 Prozent abbildet. Höhere Abweichungen im Winter als im Sommer können mit den höheren Variabilität und der stark begrenzten Grenzschicht im Winter begründet werden. Ein Unterschied von mehr als 50 Prozent erhält man - unter Berücksichtigung der Unterschätzung von bodennahem NO₂ - nur für Gebiete in denen die troposphärischen NO₂-Säulendichten unter $10 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² betragen.

Kapitel 5

Gegenwärtige Emissionen von Spurengasen durch den Straßenverkehr

Notwendige Voraussetzung für eine Abschätzung der Auswirkungen des Straßenverkehrs auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre und das Klima ist die Kenntnis der räumlichen Verteilung seiner Emissionen. Dieses Kapitel stellt die globalen Emissionen des Straßenverkehrs dar, die mit einem verbrauchsorientierten Ansatz berechnet wurden. Um die Belastbarkeit der Angaben anzugeben, wird die Unsicherheit der berechneten Emissionsmenge abgeschätzt. Schließlich werden die berechneten Datensätze mit existierenden Datensätzen verglichen.

5.1 Kohlendioxidemissionen des Straßenverkehrs

Der Straßenverkehr gehört zu den Hauptverursachern anthropogener Kohlendioxidemissionen. Die Arbeiten von *Alcamo et al.* [1996] und EDGAR 2.0 [*Olivier et al.*, 1996] geben anthropogene Kohlendioxidemissionen an. Die weltweiten CO₂-Emissionen des Straßenverkehrs betragen nach *Olivier et al.* [1996] insgesamt 889 Tg [C] pro Jahr. Bei *Alcamo et al.* [1996] wird der Sektor Straßenverkehr nicht separat ausgewiesen, sondern nur der gesamte Transportsektor angegeben. Deswegen wird mit Hilfe der EDGAR 2.0 Daten der Anteil des Straßenverkehrs an den Transportemissionen bestimmt (Anhang B.1.2). Der Straßenverkehr emittierte nach dieser Abschätzung im Jahr 1990 weltweit 0.9 Pg [C] pro Jahr. Dies ist in Übereinstimmung mit EDGAR 2.0.

Somit beträgt im Jahr 1990 der Anteil des Straßenverkehrs an den globalen CO₂-Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe (Abschnitt 2.5) etwa 15 %. Je nach Region schwankt der relative Anteil des Straßenverkehrs an den gesamten anthropogenen Emissionen aus der Verbrennung von fossilen Treibstoffen im Jahr 1990 zwischen 3.8 % in China, 6.5 % in Osteuropa, 15.7 % in Japan und 18.5 % in Westeuropa bis hin zu 22.6 % in den USA und 26.8 % in Lateinamerika [*Olivier et al.*, 1996]. Die Unsicherheit der emittierten CO₂-Menge wird insbesondere durch die Unsicherheit des Treibstoffverbrauchs bedingt.

5.2 Stickoxidemissionen

5.2.1 Existierende Stickoxidemissionskataster

Sowohl *Benkovitz et al.* [1996] als auch *Olivier et al.* [1996] stellen globale Datensätze für die Stickoxidemissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe zur Verfügung. Der Datensatz von *Benkovitz et al.* [1996] wurde bereits in einer Vielzahl von Modellsimulationen mit dem Modellsystem ECHAM4/CHEM eingesetzt, weist jedoch im Gegensatz zu dem EDGAR 2.0 Datensatz von *Olivier et al.* [1996] nicht den Anteil des Straßenverkehrs an den Gesamtemissionen aus. Die Stickoxidemissionen von *Benkovitz et al.* [1996] wurden daher für die vorliegende Arbeit auf der Grundlage der Werte von *Olivier et al.* [1996] skaliert. Die auf diese Weise berechnete weltweite Stickoxidemission des Straßenverkehrs beträgt 8.8 Tg [N] im Jahr 1990. *Olivier et al.* [1996] geben für dieses Jahr eine Menge von 9.6 Tg [N] an. Die Emissionen in der Europäischen Union werden mit 1.8 Tg [N] im Jahr 1990 angegeben, wobei Abweichungen verschiedener Datensätze von etwa 20 Prozent vorliegen [*Matthes und Sausen*, 2000].

5.2.2 Berechnung eines verbrauchsorientierten Katasters

Zur Berechnung eines Emissionskatasters kann ein aktivitätsorientierter oder ein verbrauchsorientierter Ansatz verwendet werden. Bei einem aktivitätsorientierten Ansatz dient die Zahl der in einem Land gefahrenen Kilometer als Maß für die Intensität des Straßenverkehrs. Da hierfür keine weltweiten Daten existieren, wurde in der vorliegenden Arbeit ein verbrauchsorientierter Ansatz verwendet. In diesem Fall wird die verbrauchte Treibstoffmenge als Maß für die Intensität des Straßenverkehrs verwendet. Hierfür kann auf statistische Daten der Internationalen Energiebehörde (IEA), der Organisation für ökonomische Entwicklung (OECD) und der statistischen Abteilung der Vereinten Nationen (UNSTAT) zurückgegriffen werden, die für die meisten Länder Angaben über nationale Treibstoffverbräuche bereitstellen. Die Emissionsmengen nach *Benkovitz et al.* [1996] und *Olivier et al.* [1996] wurden ebenfalls mit Hilfe von verbrauchsorientierten Ansätzen berechnet.

Da in die Berechnung der Emissionsmengen eine Reihe von Unsicherheiten miteingehen, wurde eine Fehleranalyse des verbrauchsorientierten Ansatzes durchgeführt, um die Belastbarkeit der darauf basierenden Simulationen einzuschätzen. Hierdurch kann eine Unsicherheit der berechneten Emissionsmengen angegeben werden. Exemplarisch wird hierfür ein verbrauchsorientierter Ansatz für die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs explizit durchgerechnet und die Unsicherheit bestimmt. Diese Berechnung ist in Anhang B.2 dargestellt. Sie basieren auf den nationalen Verbrauchsangaben nach *UNSTAT* [1997] und den Emissionsfaktoren nach *Olivier et al.* [1996]. Nationale Verbräuche werden mit einem aggregierten (zusammengefassten) Emissionsfaktor multipliziert. Tabelle 5.1 enthält neben den Emissionsmengen nach *Olivier et al.* [1996] und *Benkovitz et al.* [1996] die regionalen Emissionsmengen des verbrauchsorientierten Ansatzes. Für Unsicherheiten der berechneten Emissionsmenge gibt es bei diesem Ansatz zwei mögliche Ursachen: die Verbrauchsangaben und die spezifischen, aggregierten Emissionsfaktoren. Die Abschätzung der Unsicherheiten ist ebenfalls im Anhang B.2.2 dargestellt. Die weltweiten Stickoxidemissionen des

Tabelle 5.1: **Stickoxidemissionen** (in Gg[N]) in den einzelnen Regionen 1990; EDG [Olivier *et al.*, 1996], GEIA [Benkovitz *et al.*, 1996], deren Mittelwert, dem VBA (eigene verbrauchsorientierte Berechnung nach UNSTAT [1997]), dem Verhältnis des Mittelwerts zum VBA und der Unsicherheit der berechneten Menge (absolut und relativ). Für GUS sind für 1990 keine Verbrauchsdaten erhältlich, entsprechend wurde die Unsicherheit an Hand des Mittelwerts abgeschätzt.

Region	EDG	GEIA	Mittel	VBA	Verhältnis	Unsicherheit	
	Gg[N]	Gg[N]	Gg[N]	Gg[N]		Gg[N]	[%]
Kanada	299	233	266	255	1.04	51	20
USA	3358	2970	3164	3390	0.93	651	19
Südamerika	825	928	877	806	1.09	244	30
Afrika	325	253	289	287	1.00	49	29
Europa	2245	2317	2281	1889	1.21	300	18
Westeuropa	2039	1916	1978	1428	1.40	263	18
Osteuropa	205	401	303	114	2.66	43	37
GUS	564	480	522	-	-	193	37
Naher Osten	368	443	406	547	0.74	204	37
Indien (Region)	261	267	264	244	1.08	93	38
China (Region)	258	234	246	376	0.65	376	100
Ostasien	332	229	281	318	0.88	205	64
Ozeanien	181	112	147	184	0.80	33	18
Japan	376	294	335	376	0.89	53	14
global	9593	8760	9176	8328	1.22	2265	29

Straßenverkehrs, mit einem verbrauchsorientierten Ansatz, berechnet betragen (8.33 ± 2.27) Tg [N] pro Jahr, also eine Unsicherheit von 27 Prozent. Der Mittelwert aus den existierenden Datensätzen ist um 22 Prozent höher als die in dieser Arbeit durchgeführte Abschätzung (Tabelle 5.1). Hierbei spielt sicherlich eine Rolle, dass in den Daten nach UNSTAT [1997] für das Jahr 1990 keine Angaben für die Gemeinschaft Unabhängiger Staaten (GUS) enthalten ist. Regionen mit hohen absoluten oder relativen Unsicherheiten sind die USA, China und Asien. In den USA sind insbesondere die hohen Unsicherheiten des Emissionsfaktors für dieselbetriebene Fahrzeuge verantwortlich. Für China und Asien hingegen gibt es stark unterschiedliche Angaben zum nationalen Verbrauch, die sich um den Faktor 3 unterscheiden (Anhang B.2.2). Wichtig für die Wirkung der Straßenverkehrsemissionen ist auch deren geographische Verteilung: Der überwiegende Anteil der Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs, mit 74 Prozent, wird in den nördlichen Extratropen emittiert, gefolgt von 23 Prozent in den Tropen und nur 3 Prozent in den südlichen Extratropen.

5.3 Kohlenmonoxidemissionen

Für die Kohlenmonoxidemissionen des Straßenverkehrs steht mit Olivier *et al.* [1996] ein globaler Datensatz zur Verfügung, der auch in dieser Arbeit verwendet wurde. Der Straßenverkehr

produziert demnach gut 40 Prozent der CO-Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe. Die angegebene Emissionsmenge des Straßenverkehrs beträgt 206.7 Tg [CO] pro Jahr. Die Unsicherheit der Kohlenmonoxidemissionen wurde im Anhang wie bei den Stickoxiden mit einem verbrauchsorientierten Ansatz abgeschätzt und beträgt 60 Prozent (Tabelle B.5) und ist damit deutlich höher als die der Stickoxidemissionen (Tabelle 5.1). *OECD* [1995] gibt eine höhere globale CO-Emissionsmenge durch den Straßenverkehr (von 230 Tg [CO] pro Jahr) an als *Olivier et al.* [1996]. Im Vergleich zu *Olivier et al.* [1996] liegt die Emission in Europa durch den Straßenverkehr um einen Faktor 3 höher, in den Nicht-OECD-Staaten um 30 Prozent höher und in den USA hingegen um den Faktor 3 niedriger. Eine Ursache hierfür sind bereits die Verbrauchsdaten der Nicht-OECD-Staaten, die mit einer hohen Unsicherheit behaftet sind (Anhang B.2.2). So gibt es Verbrauchsangaben, die um einen Faktor 3 höher liegen als die Angaben der [UNSTAT [1997], die in etwa den in *Olivier et al.* [1996] für die Berechnung verwendeten Angaben entsprechen. Die geographische Verteilung ist hier ähnlich wie bei den Stickoxiden mit etwa höheren Beiträgen in den Tropen, auf Grund des in Nicht-OECD-Ländern - in tropische Breiten - verhältnismässig höheren Emissionsfaktor durch ineffektive Verbrennung (wenig Wartung) im Motor. Hierbei werden etwa 67 Prozent in der nördlichen Extratropen, 31 Prozent in den tropischen Breiten und knapp 3 Prozent in den südlichen Extratropen.

5.4 Methan-Emissionen des Straßenverkehrs

Der Straßenverkehr produziert global etwa 370 Gg [CH₄] Methanemissionen pro Jahr [*Olivier et al.*, 1996]. Der Anteil des Straßenverkehrs an den weltweiten Methanemissionen von etwa 600 Tg [CH₄] pro Jahr liegt damit unter 0.1 % und wird deswegen bei der in dieser Arbeit durchgeführten Atmosphärenmodellierung vernachlässigt (Abschnitt 7.1).

5.5 Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffemissionen

5.5.1 Gesamt-NM-Kohlenwasserstoffemissionen des Straßenverkehrs

Bei einer Betrachtung der Gesamt-NMHC-Emissionen wird die totale gebundene Masse Kohlenstoff, die in den emittierten Kohlenwasserstoffen enthalten ist, addiert. Der Straßenverkehr stellt mit einer Jahresemission von 34.4 Tg [C] einen Anteil von knapp 20 Prozent der anthropogenen NMHC-Emissionen dar [*Olivier et al.*, 1996]. Die Unsicherheit der NMHC-Emissionen liegt mit 65 Prozent (Tabelle B.10) deutlich höher als die der NO_x-Emissionen (Tabelle 5.1).

Für das Jahr 1990 zeigt Abbildung B.2 die geographische Emissionsverteilung der summierten NMHCs aus anthropogenen Quellen. Hierin sind keine Emissionen von Isopren enthalten. Isoprenemissionen werden in Abschnitt 5.5.3 getrennt dargestellt. In der geographischen Verteilung der Emissionsstärke (Abbildung B.2) sind die Quellregionen auf der Nordhemisphäre zu erkennen.

Tabelle 5.2: Jährliche NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs nach Spezies unterteilt [*Olivier et al.*, 1996] in Pg [Molekularmasse].

NMVOC Species	Nr.	Gesamt	%	Süd-H.	Tropen	Nord-H.
Ethan	02	304	0.9	10	81	212
Propan	03	194	0.6	9	45	139
Butan	04	4370	13.2	157	1050	3162
Pentan	05	5651	17.0	202	1363	4085
Hexan	06	6882	20.7	235	1795	4853
Alkane		17401	52.4	613	4334	12451
Ethen	07	1737	5.2	59	468	1211
Propen	08	834	2.5	28	223	582
Ethin	09	988	3.0	33	265	690
And. Alk(adi)ene	12	2537	7.6	89	643	1805
Alkene/Alkine		6097	18.4	209	1599	4288
Benzene ^a	13	1046	3.2	36	276	734
Methylbenzol ^b	14	2511	7.6	85	668	1759
Dimethylbenzol ^c	15	1701	5.1	58	453	1190
Trimethylbenzol	16	769	2.3	26	205	537
And. Aromaten	17	2708	8.2	90	731	1887
Aromaten		8736	26.3	294	2333	6107
Methanal ^d	21	491	1.5	16	133	342
And. Alkanal ^e	22	403	1.2	13	110	280
Alkanale ^e		894	2.6	29	243	622
Alkanone ^f	23	58	0.2	2	16	40
Gesamt-NMHC 1990		33186	100			

^aBenzol, ^bToluol, ^cXylen, ^dFormaldehyd, ^eAldehyde, ^fKetone

5.5.2 Emissionen der einzelnen NMHC-Gruppen

Neben der Darstellung der Gesamt-NMHC-Emissionen wird auch die Aufteilung auf einzelne Spezies benötigt. Diese ist in Tabelle 5.2 nach *Olivier et al.* [1996] für den Straßenverkehr dargestellt. Hierbei wurden die in EDGAR 2.0 verwendeten Angaben in Tg [Molekülmasse] verwendet. Alkane stellen mit über 50 Prozent den größten Massenanteil der Emissionen dar. Ein Viertel der Emission erfolgt in der Form von Aromaten. Knapp 20 Prozent der Emissionen werden als Alkene emittiert. Die restlichen drei Prozent der Emissionen des Straßenverkehrs bestehen aus Aldehyden und Ketonen [*Olivier et al.*, 1996]. *Friedrich* [2003] stellt eine mittlere Zusammensetzung des Straßenverkehrs dar mit 36 % Alkanen, 30 % Aromaten, 18 % Alkene, 11 % Aldehyde, 4 % Alkine und etwa 1 % Bei der genauen Zusammensetzung der NMHC-Emissionen besteht eine hohe Unsicherheit. Deswegen wurde in der vorliegenden Arbeit auf eine Abschätzung dieser Unsicherheit

verzichtet (Anhang B.2.2.6), und nur die Unsicherheit der Gesamt-NMHC-Emissionen angegeben (Abschnitt 5.5.1).

Bevor diese Emissionen in die Simulation integriert werden, müssen sie entsprechend des Chemieschemas gruppiert werden. In der vorliegenden Arbeit werden die Kohlenwasserstoffemissionen des Straßenverkehrs in Bindungsgruppen betrachtet, da das verwendete Chemieschema CBM-IV Schema nach *Gery et al.* [1989] auf einem strukturellen Kohlenstoffbindungsschema basiert. Hierfür werden die von *Houweling et al.* [1998] erstellten Datensätze verwendet und daraus der Anteil des Straßenverkehrs berechnet. *Houweling et al.* [1998] haben die ursprünglichen Emissionsdatensätze angepasst, um Abbaureaktionen, die vom Modell nicht berücksichtigt werden oder deutlich rascher als der Modellzeitschritt ablaufen, indirekt durch ihre Abbauprodukte zu berücksichtigen (siehe Anhang B.1.4). Diese angepassten Emissionsdatensätze werden in der vorliegenden Arbeit verwendet.

5.5.3 Isoprenemissionen

Bislang gibt es keine gesicherten Angaben über anthropogene Isopren-Quellen. Aus natürlichen Quellen werden etwa 400 Tg [C] Isopren pro Jahr emittiert. In den letzten Jahren wurde die Hypothese aufgestellt, der Straßenverkehr emittiere Isopren. Die vermutete Emissionsstärke ist jedoch so gering, dass sie im Rahmen dieser Arbeit zu vernachlässigen ist.

Kapitel 6

Zukünftige Spurengasemissionen

Um Überlegungen zur zukünftigen Wirkung des Straßenverkehrs anstellen zu können, müssen zunächst mögliche Entwicklungen der zukünftigen Emissionen des Straßenverkehrs aufgezeigt werden. In diesem Kapitel werden unterschiedliche Methoden - ökonomische Abschätzungen, externe Rahmenbedingung, Szenariotechnik und Technologieszenarien - vorgestellt, mit denen mögliche Entwicklungen, so genannte Projektionen, abgeschätzt werden können. Um den möglichen Bereich aufzuzeigen, in dem sich die zukünftigen Emissionen bewegen, werden anschließend drei Szenarien für den Straßenverkehr - für die Spurengase NO_x und NMHC - bis zum Jahr 2020 gerechnet.

6.1 Einflussgrößen der zukünftigen Entwicklung

Die Höhe und Zusammensetzung der zukünftigen Emissionen des Straßenverkehrs hängt von der Entwicklung der Flottenzusammensetzung, der Nutzung und der Verbrennungstechnologie ab. Für den Personenverkehr wird die Flottenzusammensetzung sowohl durch persönliche Präferenzen der Fahrzeugbesitzer als auch durch technologische Entwicklungen geprägt. Hiermit eng verzahnt ist die Frage der Verbrennungstechnologie. Bereits beim Kauf führen persönliche Präferenzen immer wieder zu Veränderungen des Flottenverbrauchs, wie beispielsweise der vermehrte Kauf von meist benzinbetriebenen Geländewagen in den USA, sogenannte SUV (engl. *sport utility vehicle*), oder von geringverbrauchenden Dieselfahrzeugen als Personenwagen deutlich machen. Die Flotte des Lastkraftverkehrs wird neben den technologischen Entwicklungen weniger durch persönliche Präferenzen, als durch die geplante Nutzung der Fahrzeuge bestimmt. Die spätere Nutzung der Fahrzeuge bestimmt wiederum die Menge des verbrauchten Treibstoffs und die Emissionsfaktoren, die von den Verbrennungsbedingungen abhängen. Schließlich wird die Emissionsmenge ebenfalls durch ökonomische Randbedingungen beeinflusst, direkt im Lastkraftverkehr, indirekt im Personenverkehr. Auf diese Weise ergeben sich die zukünftigen Emissionsmengen als Ergebnis eines komplexen Zusammenspiels aller Einflussfaktoren. Da die Entwicklung dieser Faktoren nicht bekannt ist, und auch wenn sie wären, ein vollständiges Abbild dieser Verzahnungen in der Praxis nicht möglich ist, werden in der vorliegenden Arbeit zunächst Methoden vorgestellt, die eine Abschätzung ermöglichen. Es werden insbesondere *Bottom-up*- und die *Top-down*-Ansätze

unterschieden. Bei einem *Bottom-up*-Ansatz wird ausgehend von den einzelnen Fahrzeugen auf die Gesamtmenge hochgerechnet, während bei *Top-down*-Ansätzen mit nationalen Angaben auf die einzelnen Verursacher heruntergerechnet wird, in dem beispielsweise ein aggregierter Emissionsfaktor die Flottenzusammensetzung widerspiegelt. Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit sind *Top-down*-Ansätze, da *Bottom-up*-Ansätze für globale Abschätzungen durch eine hohe Anzahl an notwendigen Eingabedaten, und dadurch eine hohe Anzahl an Fehlerquellen nicht geeignet sind. Eine *Top-down*-Abschätzung beruht auf der Betrachtung zweier nahezu unabhängiger Faktoren: der zukünftigen Intensität des Straßenverkehrs, hier die verbrauchte Treibstoffmenge, und des zukünftigen, aggregierten Emissionsfaktors. Die zukünftig verbrauchte Treibstoffmenge kann mittels ökonomischen Überlegungen (historische Entwicklung, Energie-Sektor-Modell, makroökonomische Szenarien), mit der Szenariotechnik oder an Hand von Protokollvorgaben (beispielsweise Kyoto-Protokoll) abgeschätzt werden. Beispiele hierfür werden in den folgenden Abschnitten vorgestellt. Für den zukünftigen Emissionsfaktor des Straßenverkehrs werden Technologieszenarien diskutiert, die Annahmen zur Verbrennungstechnologie und der Abgasnachbehandlung machen.

6.2 Methoden der Abschätzung

6.2.1 Ökonomische Betrachtungen

Die zukünftige Intensität des Straßenverkehrs und damit die zukünftig verbrauchte Treibstoffmenge, kann an die ökonomische Entwicklung gekoppelt werden. Im einfachsten Fall wird die historisch beobachtete Entwicklung der Volkswirtschaft, und damit konkret der Treibstoffverbrauch, für die Zukunft fortgeschrieben. In einem umfassenderen Ansatz werden zukünftige Treibstoffverbräuche (und andere ökonomische Indikatoren) durch Simulation mit einem ökonomischen Modell berechnet. Hierfür können Energiesektormodelle verwendet werden, die Verbrauchssektoren einer Volkswirtschaft (wie Energieerzeugung, Industrie oder Transport) einzeln abbilden. Umfangreichere Realisierungen umfassen mehrere Energiesektoren bis hin zu einem ökonomischen Modell der Volkswirtschaft und enthalten zusätzlich eine dynamische Komponente für den Emissionsfaktor. Eine weitere Möglichkeit Abschätzungen der zukünftigen Entwicklung zu machen, ist die Verwendung von makroökonomischen Szenarien. Diese Szenarien sind ein vollständiger Satz von Indikatoren aus Simulationen der zukünftigen wirtschaftlichen Entwicklung mit globalen makroökonomischen Modellen. Diese Modelle bilden in vereinfachter Weise die ökonomischen Prozesse zwischen nationalen Volkswirtschaften und deren Wirtschaftssektoren ab. Im Rahmen von vorgegebenen Kriterien, wie beispielsweise hohes oder niedriges weltweites Wirtschaftswachstum, werden für jeden nationalen Sektor wesentliche ökonomische Indikatoren berechnet. Mit diesen ökonomischen Abschätzungen werden zunächst klassische ökonomische Größen, wie Brutto-sozialprodukt (BSP) oder industrielle Produktion, für eine zukünftige Entwicklung bestimmt. An sie muss der Treibstoffverbrauch gekoppelt werden. Als entscheidender Indikator tritt hier die Energieintensität auf, die angibt wieviel Energieträgern bei der Herstellung einer Einheit des Brutto-sozialprodukts verbraucht werden. In den OECD-Ländern ist im Gegensatz zu den Übergangswirtschaften eine Entkopplung von wirtschaftlichem Wachstum und Energieverbrauch erreicht worden [Viguier,

Tabelle 6.1: Abschätzungen der zukünftigen CO₂-Emissionen aus den Sektoren Energie, Industrie und Landnutzung: IS92a (1990-1999) und IPCC (Bereich der unterschiedlichen Szenarien) nach IPCC [2001], SRES wie in IMAGE 2.2 [IMAGE-team, 2001] verwendet und nur aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe (ohne Landnutzung) nach dem IEO [2002]. Die Angaben von IMAGE 2.2 sind in Klammern ergänzt um die Mengen aus der früheren Abschätzung der Gesamtemissionsmengen aus IMAGE 2.1 [Alcamao et al., 1996]. Die Abschätzungen für die Kohlendioxidemissionen des Straßenverkehrs, stammen aus dem internationalen Energiebericht (IEO) [IEO, 2002] und aus einer Arbeit der OECD [1995].

Globale Kohlendioxid-Emissionen [Pg C pro Jahr]					
Gesamt					
Zeit	IS92a	IPCC	SRES	IEO	Bereich
1990	6.3 ± 0.4		7.3	5.8	5.8 - 7.3
2000	8.4	7.97 - 8.4	7.9	(¹⁹⁹⁹)6.1	7.9 - 8.4
2010	9.9	8.5 - 10.9	9.0 (8.4)	7.9	8.5 - 10.9
2020	11.4	9.6 - 12.6	10.1 (10.9)	9.9	
2025			(15.4)		
2030	12.7	9.1 - 14.7	(14.2)	-	9.1 - 14.7
2050	14.5	10.3 - 17.6	10.5 (15.6)		10.3 - 15.6
Straßenverkehr					
Zeit	OECD	IPCC	SRES	IEO	Bereich
2000	1.27			(¹⁹⁹⁹)1.11	
2020	1.66			1.85	
2030	1.84				

1999]. Dieser vollständigen Entkopplung wird jedoch für die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Abschätzung nicht gefolgt, da das Transportaufkommen nicht als Energiesektor zählt und für die nächsten Jahrzehnte noch eine deutliche Steigerung erwartet wird [OECD, 1995].

Zukünftige CO₂-Emissionen

Rosa and Ribeiro [2000] schätzen beispielsweise die CO₂-Emissionen für den Zeitraum 1700 bis 1996 an Hand der historischen Entwicklung des BSPs mit Hilfe der Energieintensität ab. Da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der globalen Wirkung des Straßenverkehrs liegt, wird exemplarisch an dieser Stelle auf die globalen Abschätzungen des IPCC [2001] und das Modell IMAGE 2.2 [IMAGE-team, 2001] verwiesen. IMAGE 2.2 beschreibt eine mögliche, zukünftige Entwicklung an Hand von Indikatoren wie beispielsweise Bruttosozialprodukt, Bevölkerungswachstum, privatem Konsum und der Anzahl der Personenwagen pro Einwohner in verschiedenen Regionen. Für ein umfassende Darstellung der aktuellen Version des Modells wird IMAGE-team [2001] verwiesen.

Ergebnisse solcher Modellansätze sind in Tabelle 6.1 für die globalen CO₂-Emissionen aus unterschiedlichen Arbeiten zusammengestellt. Die CO₂-Emissionen beziffern jeweils die Menge aus der Verbrennung von fossilen Brennstoffen, industriellen Prozessen, Abholzung und Landnutzung [IPCC, 2001]. Der direkte Vergleich der früheren Abschätzung nach IMAGE 2.1 [Alcamao et al.,

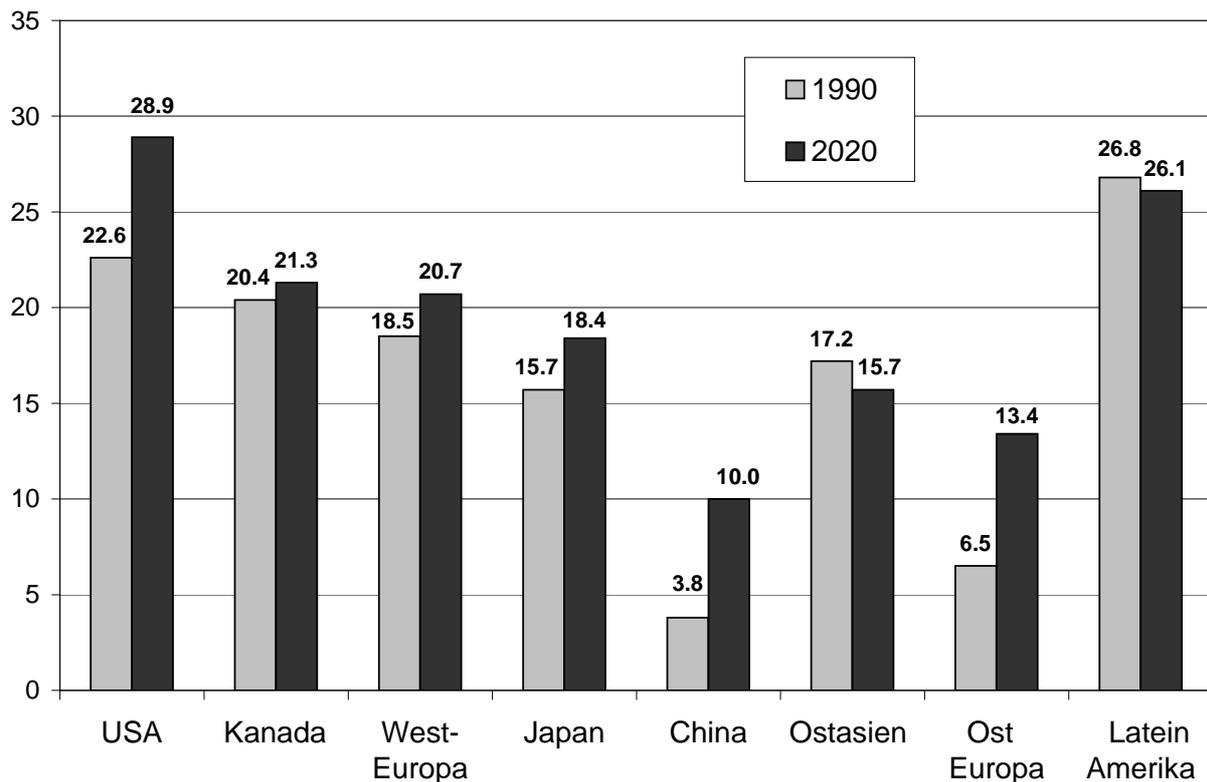


Abbildung 6.1: Relative Anteile des Straßenverkehrs an den CO₂-Gesamtemissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe in verschiedenen Regionen für 1990 und 2020 in [%] nach *Olivier et al.* [1996] (1990) und *IEO* [2002] (2020).

1996] mit der neueren nach IMAGE 2.2, erlaubt die bessere Einordnung einer ebenfalls zum damaligen Zeitpunkt entstandenen Abschätzung der *OECD* [1995]: es zeigt sich keine systematische Abweichung der früheren Studien von der neueren Arbeit.

Die Angaben des IEO enthalten gleichzeitig Abschätzungen der Gesamtemissionen und der Straßenverkehrsemissionen, womit der relative Anteil des weltweiten Straßenverkehrs an den weltweiten anthropogenen Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe im Jahr 2020 berechnet werden kann (Abbildung 6.1). Der relative Anteil des Straßenverkehrs an den Gesamtemissionen beträgt nach diesen Projektionen 15 bis 17 Prozent. Dies entspricht einer Menge von 1.66 Gt [C] im Jahr 2020 und 1.84 Gt [C] im Jahr 2030.

Ein Vergleich der relativen Anteile des Straßenverkehrs an den CO₂-Gesamtemissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe in unterschiedlichen Regionen (Abbildung 6.1) zeigt, dass hier deutliche regionale Unterschiede bestehen. Den höchsten relativen Anteil des Straßenverkehrs an den anthropogenen CO₂-Emissionen finden wir in Lateinamerika mit mehr als 25 Prozent. Der absolute Beitrag Lateinamerikas zu den weltweiten Emissionen beträgt jedoch nur etwa 8 Prozent. Die USA hingegen sind im Jahr 1990 weltweit für 36 Prozent der Straßenverkehrsemissionen verantwortlich und Westeuropa für 20 Prozent. Die zukünftigen Anteile des Straßenverkehrs im Jahr 2020 zeigen in der Regel einen zunehmenden Beitrag des Straßenverkehrs auf. Nur in den Regionen Ostasien und Lateinamerika sinken die Beiträge um etwa einen Prozentpunkt. Dies wird

Tabelle 6.2: Abschätzung der zukünftigen NO_x -Emissionen aus anthropogenen Quellen (Energie, Industrie und Landnutzung) nach dem IS92a-Szenario *IPCC* [2001] und dem Straßenverkehr nach *OECD* [1995] in Tg [N] pro Jahr.

Zeit	Gesamt Tg [N]	Straße Tg [N]	Anteil [%]
2000	37.0	8.65	23.4
2020	49.8	10.95	22.0
2030	55.2	13.72	24.9

durch eine angenommene, zunehmende Industrialisierung und damit gestiegene industrielle Emissionen bewirkt. Deutliche Zuwächse werden projiziert für die USA (+ 6 Prozentpunkte), Osteuropa (+ 7 Prozentpunkte) und China (+ 6 Prozentpunkte). In anderen industrialisierten Regionen (beispielsweise Kanada, Japan, Westeuropa) werden Zunahmen der relativen Anteile um ein bis drei Prozentpunkte projiziert (Abbildung 6.1 und *IEO* [2002]).

Zukünftige Stickoxidemissionen

Da die Emission der Stickoxide von der Technologie des Prozesses abhängt, müssen hier zusätzliche Annahmen über die zukünftig eingesetzte Technologie gemacht werden. Für die Stickoxide spielt es eine entscheidende Rolle, ob und in welcher Form Katalysatoren weltweit eingesetzt werden. Entsprechend liegen die Unsicherheiten der projizierten NO_x -Emissionen vergleichsweise hoch. In Tabelle 6.2 sind die gesamten Stickoxidemissionen (aus Energie, Industrie und Landnutzung) dem Anteil des Straßenverkehrs gegenübergestellt. Da die Angaben jeweils unterschiedlichen Veröffentlichungen entnommen wurden, dient der relative Anteil der Plausibilitätsprüfung. Die relativen Anteile bewegen sich im Zeitraum 2000 bis 2030 (Tabelle 6.2) zwischen 22 und 25 Prozent. Der relative Anteil des Straßenverkehrs liegt im Jahr 2020 niedriger als in den Jahren 2000 und 2030. Ursache hierfür ist die in der Studie der *OECD* [1995] für den Straßenverkehr angenommene zukünftige stickoxidarme Verbrennungstechnologie. Diese führt dazu, dass zunächst die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs hinter dem Wachstum und damit den Verbrauchszunahmen zurückbleiben (Abbildung 1.1). Für andere Quellsektoren wird keine entsprechende Abnahme des Emissionsfaktors angenommen. Beim Straßenverkehrs dominiert erst nach 2020 schließlich das Wachstum des Straßenverkehrs und somit des Treibstoffverbrauchs, so dass der Straßenverkehr im Jahr 2030 schließlich einen Anteil von fast 25 Prozent der Gesamtstickoxidemissionen verursacht.

6.2.2 Abschätzung an Hand von Protokollvorgaben

Eine weitere Möglichkeit zukünftige Emissionsszenarien zu erstellen, liegt in der Annahme das Kyoto-Protokoll zu erfüllen. Da in diesem Protokoll Höchstgrenzen für die Emission anthropogener Kohlendioxidemissionen festgelegt sind, ergibt sich eine Rahmenbedingung für ein Emissionsszenario. Da jedoch das Protokoll - für den Fall des Emissionshandels - keine Aussagen über die

Tabelle 6.3: CO₂-Gesamtemissionen aus unterschiedlichen Projektionen im Jahr 2010 für unterschiedliche Emissionspfade im Rahmen des Kyoto-Protokolls in Gt [C] pro Jahr und relative Änderung auf das Jahr 1990 bezogen für die Anhang I, Anhang II und Ökonomien im Übergang (*economies in transition, EIT*) [UNFCCC, 2001].

2010	Anhang II		EIT		Anhang I		Global
	Emission Gt [C]	% zu 1990	Emission Gt [C]	% zu 1990	Emission Gt [C]	% zu 1990	Emission Gt [C]
Mittelwert	4.02	120.5	0.98	71.0	5.00	106.0	10.00
Minimum	3.79	113.0	0.82	59.5	4.62	98.0	9.21
Maximum	4.30	129.0	1.14	82.3	5.41	114.6	10.8

Verteilung der zulässigen Emissionen auf die verschiedenen Quellsektoren und Regionen macht, gibt es eine Vielzahl von Szenarien, die der Rahmenbedingung einer Stabilisierung genügen.

Zwischen den einzelnen Abschätzungen zukünftiger Emissionsmengen bestehen teils erhebliche Unterschiede. In der Arbeit des UNFCCC [2001] wird exemplarisch ein Vergleich von globalen CO₂-Abschätzungen verschiedener Modelle dargestellt. In Tabelle 6.3 sind die mittleren CO₂-Gesamtemissionen für 2010 absolut und als relative Änderung bezogen auf 1990 dargestellt. Für die Ökonomien im Umbruch (EIT, engl. *economies in transition*) zeigt sich in allen Projektionen eine Abnahme der Emissionen. Anders sieht die Situation bei den Anhang I Staaten aus. Hier wird im Mittel ein Wachstum von 6 % angenommen. In den Anhang II -Staaten wird im Mittel von einem Wachstum von gut 20 % ausgegangen, mit Werten im Bereich zwischen 13 % und 29 %.

6.2.3 Abschätzung mittels Szenariotechnik

Eine weitere Möglichkeit Szenarien zukünftiger Emissionen zu bestimmen, stellt die Szenariotechnik dar, wie von Schwartz [1996] entwickelt. Sie versucht den möglichen Ereignishorizont, also alle möglichen Situationen, an Hand von Extremszenarien aufzuspannen. Hierbei steht die Kombination von technologischer Information und Experteneinschätzungen der zukünftigen Entwicklungstrends im Vordergrund. Ziel ist es einen Ergebnisraum zukünftiger Entwicklungen aufzuspannen, um hieraus konkrete Szenarien an Hand von spezifizierten Kriterien auszuwählen. So kann ein Trendszenario entwickelt werden, in das keine Annahmen über insgesamt mögliche Entwicklungen eingeflossen sind. Die Entwicklung dieser Szenarien wird als ein Prozess verstanden, in den eine möglichst interdisziplinäre Gruppe von Experten einbezogen wird. Diese Methode wird an dieser Stelle vorgestellt, da sie erlaubt, zukünftige Situationen in vernetzter Weise zu entwerfen. Dies soll als alternative Methode angesprochen werden, zu der in der globalen Modellierung typischerweise verwendete Skalierung von Emissionen. Selbst in integrierten Modellen wie IMAGE werden hinsichtlich der Aktivitätsniveaus lineare, nicht miteinander gekoppelte Annahmen gemacht. Das bedeutet, bisher findet keine Vernetzung der Sektoren hinsichtlich Aktivitätsintensitäten und Emissionsfaktor statt. Für die Generierung von aufschlussreichen Zukunftsszenarien, die von der Fortschreibung vergangener Entwicklungen abweichen, stellt dies eine interessante Alternative dar. Bis jetzt stehen jedoch auf globaler Skala noch keine Ergebnisse einer

solchen Szenarioanalyse zur Verfügung.

6.3 Zukünftige Emissionsfaktoren

Neben dem zukünftigen Treibstoffverbrauch, beeinflusst der zukünftige Emissionsfaktor die Emissionen des Straßenverkehrs. Hierbei bestimmen Annahmen über die zukünftige Technologie die Höhe des Faktors kritisch. Somit besitzen Abschätzungen des Emissionsfaktors eine hohe Unsicherheit, weshalb in der vorliegenden Arbeit nur ein Rahmen für die zukünftigen Emissionsfaktoren bestimmt wird. Die Höhe des zukünftigen Emissionsfaktors kann beispielsweise an die Erfüllung einer Abgasnorm gekoppelt sein. Hierbei muss dann jedoch berücksichtigt werden, dass die *real-world* Emissionen teilweise, auf Grund z.B. von Verschleiss, deutlich höher liegen können. Somit sind Annahmen über Wartung der Fahrzeuge ebenfalls entscheidend. Ebenso kann an Hand der zukünftigen Motoren- und Katalysatorenentwicklung der zukünftige Emissionsfaktor abgeschätzt werden. Hier spielen auch alternative Treibstoffe und deren Emissionen eine wesentliche Rolle. Da diese Abschätzungen meist stark spekulativ sind, ist es wünschenswert sie mit Beobachtungen zu vergleichen. Dies ist jedoch nur in Ausnahmefällen möglich, wie beispielsweise in Brasilien [Colon et al., 2001]. In Colon et al. [2001] werden die leichtflüchtigen Kohlenwasserstoffe in Sao Paulo, Brasilien betrachtet. Speziell hierbei ist, dass die Fahrzeuge insbesondere mit alkoholbasierten Treibstoffen fahren. Insofern kann diese Region als eine Art Testgebiet für zukünftige Fahrzeugflotten auf der Basis der Oxy-Treibstoffe gesehen werden. Colon et al. [2001] folgert, dass durch die ethanolbetriebenen Fahrzeuge die Zusammensetzung der NMHC-Profile dahingehend beeinflusst, dass Ethanol, Methanol und Propanol deutlich erhöht sind.

Um den Bereich zukünftiger Emissionsfaktoren aufzuzeigen, wird in der vorliegenden Arbeit der konservative Ansatz - ohne Technologiesprung - gemacht, der eine Fortschreibung der historischen Entwicklung mit einer annualen Veränderungsrate vorsieht.

6.4 Abschätzung

Für eine Abschätzung der zukünftigen Emissionen des Straßenverkehrs werden in der vorliegenden Arbeit ökonomische Indikatoren genutzt, um den zukünftigen Treibstoffverbrauch im Straßenverkehr abzuschätzen. Es wird die Annahme gemacht, dass der Verbrauch an das ökonomische Sozialprodukt einer Volkswirtschaft gekoppelt ist. Angaben für mögliche Entwicklungen des Sozialprodukts sind in der Arbeit der OECD [1997] in Form von zwei unterschiedlichen makroökonomischen Szenarien - starkes (ST) und schwaches (SCHW) Wachstum - enthalten (Tabelle B.13). Der Vorteil dieses Ansatzes besteht darin, dass solche mit globalen makroökonomischen Modellen berechnete Indikatoren ein in sich konsistentes Bild der unterschiedlichen Wirtschaftssektoren und nationalen Volkswirtschaften zur Verfügung stellen. Zusätzlich wird, um Effizienzsteigerungen in der zukünftigen Fahrzeugflotte zu berücksichtigen, die Effizienz des Treibstoffverbrauchs in der folgenden Abschätzung an den ökonomischen Indikator der Produktivität der eingesetzten Produktionsfaktoren (TFP) gekoppelt (Tabelle B.14). Auf diese Weise wird Treibstoff im Straßenverkehr ökonomisch genauso effektiv genutzt, wie beispielsweise Brennstoffe in

Tabelle 6.4: Zukünftige **NO_x-Emissionen des Straßenverkehrs** in den Jahren 2010, 2015 und 2020 für die drei Szenarien HM (starkes Wirtschaftswachstum und moderater Anstieg des Emissionsfaktors), LR (schwaches Wirtschaftswachstum und Abnahme des Emissionsfaktors) und HB (starkes Wirtschaftswachstum und Abnahme des Emissionsfaktors RR) in Tg [NO_x] pro Jahr.

Region	2010			2015			2020		
	HM	LR	HB	HM	LR	HB	HM	LR	HB
Kanada	537.	288.	265.	467.	294.	275.	675.	348.	342.
USA	6028.	3234.	2977.	5246.	3304.	3091.	7576.	3913.	3845.
Südamerika	2235.	975.	1104.	1791.	968.	1055.	3351.	1289.	1700.
Afrika	989.	357.	488.	766.	351.	451.	1648.	491.	836.
Westeuropa	3533.	1858.	1745.	3167.	1975.	1866.	4185.	2097.	2124.
Osteuropa	369.	214.	182.	338.	215.	199.	455.	269.	231.
GUS	717.	311.	354.	594.	307.	350.	1014.	419.	514.
Naher Osten	1071.	378.	529.	830.	382.	489.	1785.	504.	906.
Indien(Region)	843.	358.	416.	675.	348.	398.	1326.	507.	673.
China(Region)	1221.	535.	603.	915.	496.	539.	2016.	803.	1023.
Ostasien	1236.	537.	611.	962.	518.	567.	1964.	746.	997.
Ozeanien	439.	233.	217.	357.	224.	210.	627.	327.	318.
Japan	703.	374.	347.	640.	401.	377.	793.	413.	402.
Weltweit	19921.	9651.	9839.	16746.	9783.	9866.	27413.	12127.	13912.

Tabelle 6.5: Notwendige Reduzierung des aggregierten Emissionsfaktors in Prozent, um die Emissionen auf dem Niveau von 1990 zu halten für die beiden Szenarien - starkes ST/MO und schwaches SCHW/RD Wirtschaftswachstum [OECD, 1997].

	2015		2020	
	ST/MO	SCHW/RD	ST/MO	SCHW/RD
NO _x	4.5	2.2	3.2	1.8
NMHC	5.1	2.6	3.5	2.0

Produktionsprozessen.

Für die Abschätzung zukünftiger Emissionsmengen wird zusätzlich der aggregierte Emissionsfaktor benötigt. Ausgehend von den Faktoren des Jahres 1990 [Olivier *et al.*, 1996] werden mit Annahmen über die jährliche Veränderung für die zukünftigen Werte angegeben. Hierbei werden zwei mögliche Technologie-Szenarien betrachtet: einerseits reduzierte Emissionsfaktoren (RD) und ein andererseits moderat ansteigende Emissionsfaktoren (MD). Die Reduzierung des Emissionsfaktors im Szenario RD kann mit dem politischen Willen begründet werden, die Spurengasemissionen des Straßenverkehrs zu verringern. Ausgehend von den Werten von 1990 wird jedes Jahr eine konstante relative Abnahme des aggregierten Emissionsfaktors angenommen. Für die Stickoxide werden 2 % pro Jahr angenommen, da ihre Entstehung bei der derzeitigen Verbrennungstechnologie prozesstechnisch bedingt ist und sie in Folge dessen nur durch Abgasnachbehandlung entfernt werden

können. Für die NMHC-Emissionen wird eine jährliche Abnahme von 4 das sie durch geeignete Anpassung der Prozesse bereits während der Verbrennung vermieden werden können. Im Szenario MD hingegen wird eine Zunahme des Emissionsfaktors um 1 % pro Jahr angenommen. Ursachen für einen Anstieg des NO_x -Emissionsfaktors können beispielsweise Leistungssteigerungen in der Fahrzeugflotte sein, oder der politische Wille die Emissionsfaktoren der Partikelemissionen zu verringern. Ein Anstieg des NMHC-Emissionsfaktors kann beispielsweise mit verlängerten Wartungsintervallen begründet werden. Im Folgenden werden nur zwei Kombinationen gezeigt: die beiden Extremfälle ST/MD und SCHW/RD. Ziel ist einen Unsicherheitsbereich zukünftiger Emissionsmengen anzugeben.

Für das Jahr 2020 ergeben sich Emissionsfaktoren durch den Straßenverkehr (Tabelle B.3), die sich je nach Szenario um mehr als einen Faktor 2 unterscheiden. Aus der angenommenen Entwicklung des Treibstoffverbrauchs und des Emissionsfaktors ergeben sich insgesamt für die NO_x -Emissionen, die in Tabelle 6.4 zusammengestellten Emissionsmengen. Je nach angenommenem Szenario schwankt die jährliche Emissionsmenge der Stickoxide im Jahr 2020 zwischen 12.1 und 27.4 Tg [N]. Nach der gleichen Methode wurden die zukünftigen NMHC-Emissionen berechnet, deren Abschätzung im Jahr 2020 zwischen 23.7 und 108.8 Tg [NMHC] pro Jahr beträgt (Tabelle B.15). Auch bei den NMHC-Emissionen findet die im Zusammenhang mit den Stickoxiden angesprochene Umverteilung statt.

Um den Einfluss der für die Emissionsfaktoren angenommenen Entwicklung auf die zukünftigen Emissionsmengen zu zeigen, wird für die Jahre 2015 und 2020 jeweils die jährliche, prozentuale Reduktion angegeben, die jedes Jahr ab 1990 notwendig ist um in den Zieljahren die gleiche Menge an Emissionen wie 1990 zu emittieren (Tabelle 6.5). Um die weltweiten Straßenverkehrsemissionen im Jahr 2015 auf dem Niveau von 1990 zu halten, muss im SCHW/RD-Szenario global der aggregierte Emissionsfaktor jedes Jahr um 2.2 % sinken. Im Szenario ST/MO muss er sogar um 4.5 % pro Jahr sinken. Um die Emissionsmenge von 1990 im Jahr 2020 zu erreichen, ist nur eine geringere jährliche Reduktion von 1.8 % und 3.2 % notwendig, diese jedoch 30 Jahre - anstatt für 2025 nur 20 - Jahre lang.

Im Jahr 2020 werden im Szenario LR weltweit nahezu genauso viel NMHCs emittiert, wie im Jahr 1990. Das bedeutet, die 2-prozentige Verringerung des Emissionsfaktors pro Jahr kompensiert das makroökonomische Wachstum. Jedoch hat auf Grund der makroökonomischen Entwicklung eine regionale Umverteilung stattgefunden: Ostasien emittiert nun mehr als 10 Prozent der globalen NMHC-Emissionen, anstatt vormals einen Anteil von nur 6 Prozent. Bei den Stickoxiden findet bei der Stabilisierung der Emissionsmengen im Jahr 2020, also einer Reduzierung des Emissionsfaktors von 3.2 Prozent pro Jahr, in Ostasien sogar eine Verdopplung statt, auf Grund der Umverteilung von vormals 3 Prozent auf mehr als 7 Prozent Anteil an den globalen Straßenverkehrsemissionen im Jahr 2020. Die relativen Anteile der OECD-Länder an den weltweiten Emissionen sinken in der Folge bis zum Jahr 2020, beispielsweise in den USA von 40 % im Jahr 1990 auf nur noch 28 % bis 32 % - je nach Szenario - im Jahr 2020. Diese Umverteilung der relativen Anteile findet statt, da das ökonomische Wachstum in Nicht-OECD-Ländern deutlich stärker als in OECD-Ländern für die Zukunft erwartet wird.

Tabelle 6.6: Vergleich der in dieser Arbeit vorgenommenen Projektionen der Emissionen in den Regionen USA, Asien und weltweit mit Angaben nach Aardenne *Aardenne et al.* [1999], *Streets et al.* [1999] und weiteren Referenzen (*in Tabelle*).

Region	Jahr	Projektion				Referenz
		Bereich	Szenario	Vergleich	Abweichung	
Stickoxidemissionen						
Asien	2020	2.8 - 6.1	6.1 ^{HM}	9.3	+ 50 %	Aardenne
China	2020	0.8 - 2.0	2.0 ^{HM}	3.2 - 3.7	+ 60 %	Streets
USA	2010	3.0 - 6.0	3.1 ^{HB}	1.5	+100 %	USEPA, 1996
weltweit	2010	9.8 - 20.0	9.8 ^{HB}	9.0	+ 9 %	OECD [1995]
weltweit	2020	12.1 - 27.4	12.1 ^{LR}	11.0	+ 10 %	OECD [1995]
NMHC-Emissionen						
weltweit	2010	28.0 - 77.4	28.0 ^{HB}	29.2	+ 4 %	OECD [1995]
weltweit	2020	34.5 - 108.8	34.5 ^{LR}	34.4	+ 0 %	OECD [1995]

6.5 Vergleich globaler und regionaler Projektionen

Um die Qualität globaler Abschätzungen, meist Top-down Ansätze, zu überprüfen, werden sie mit regionalen Abschätzungen, meist Bottom-up Ansätze, in einzelnen Regionen verglichen. Hierbei stehen insbesondere Studien zu den Regionen Europa, USA und Asien zur Verfügung, da diese Regionen zu den Hauptverursachern zählen - USA und Europa - oder ein hohes Wachstum für die Zukunft erwarten (Asien). Für einzelne Regionen wurden für Arbeiten zum Bodenozone und zum grenzüberschreitenden Transport mit dem Modells RAINS und RAINS-ASIA Abschätzungen für das Jahr 2010 gemacht [*Streets et al.*, 1999]. Für die USA existieren ebenfalls eine Reihe von Abschätzungen beispielsweise des DOE, Energy Outlook, xxx. *Aardenne et al.* [1999] schätzen die Stickoxidemissionen des Transportsektors in Asien - alle Länder, inklusive China und Indien - im Jahr 2020 mit 11.6 Tg [N] ab. Unter der Annahme, dass knapp 80 Prozent der Transportemissionen aus dem Straßenverkehr stammen [*Olivier et al.*, 1996], ergibt sich eine Menge von 9.3 Tg [N] pro Jahr in Asien. In der vorliegenden Arbeit wurde in den drei Szenarien eine Menge zwischen 2.8 und 6.1 Tg [N] für den Straßenverkehr in Asien berechnet. *Streets et al.* [1999] schätzen alleine für China Transportemissionen zwischen 3.2 und 3.7 Tg [N] ab. In der vorliegenden Arbeit werden zwischen 0.8 und 2.0 Tg [N] abgeschätzt. Die Ursache für die deutlichen Unterschiede ist, dass bereits im Jahr 1990 - dem Ausgangsjahr der Projektion - für China eine wesentlich geringere Menge als in anderen Studien angesetzt wurde, da die Verbrauchsdaten [*UNSTAT*, 1997] für China niedriger sind. Die Abschätzung in der vorliegenden Arbeit geht in der Folge von einem geringeren, absoluten Zuwachs aus. Dieser Vergleich zeigt deutlich, wie hoch die Unsicherheiten zukünftiger Emissionsmengen sind.

Im Bericht der *USEPA* [1996] werden nationale Emissionen des Straßenverkehrs für die USA von 1.5 Tg [N], 3.34 Tg [C] NMHC-Emission und 36.5 Tg CO für das Jahr 2010 angegeben. *OECD* [1995] gibt für 2010 die USA eine Menge von 1.3 Tg [N] und 3.6 Tg NMHC und 15.3 Tg CO an. Die globale Menge beläuft sich nach *OECD* [1995] auf 9.0 Tg [N] und 29.2 Tg NMHC

und 122 Tg CO im Jahr 2010. Angaben für das Jahr 2020 für den Straßenverkehr betragen 10.95 Tg [N] und 34.4 Tg NMHC und 123 Tg CO weltweit [OECD, 1995].

6.6 Zusammenfassung

Wesentliches Ergebnis der Abschätzung der zukünftigen Emissionsmenge ist die Tatsache, dass die Emissionen des Straßenverkehrs weiter zunehmen werden. Diese in den durchgeführten Abschätzungen erzielten Ergebnisse sind in Übereinstimmung mit Arbeiten wie beispielsweise OECD [1995] und Aardenne *et al.* [1999]. Zusätzlich zeigte sich die Umverteilung der relativen Anteile von den industrialisierten zu den weniger industrialisierten Regionen: diese Regionen liefern in Zukunft einen höheren relativen - und absoluten - Anteil an den weltweiten Straßenverkehrsemissionen, insbesondere auf Grund des in diesen Regionen projizierten höheren Wirtschaftswachstums. Schließlich zeigten die durchgeführten Abschätzungen und der Vergleich mit anderen Arbeiten deutlich, wie hoch die Unsicherheit für diese projizierten Emissionsmengen auf Grund der unbekanntem Entwicklung der Indikatoren ist.

Kapitel 7

Experimentdesign

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden eine Reihe von Experimenten mit dem globalen Modellsystem (ECHAM4/CBM-IV) durchgeführt, um die Wirkung des Straßenverkehrs auf globaler Skala zu untersuchen. Im vorliegenden Kapitel wird der grundlegende Aufbau der Simulationen beschrieben. Für ein Experiment werden jeweils zwei Simulationen - die sich in den Emissionsdaten unterscheiden - miteinander verglichen. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente und hierfür gerechnete Simulationen werden zusammengestellt.

7.1 Modellsimulationen

Struktur der Simulationen

Um die Wirkung des Straßenverkehrs auf die globale Atmosphäre mit Modellsimulationen zu untersuchen, werden jeweils zwei Simulationen durchgeführt: eine Kontrollsimulation und eine Szenariosimulation. Die Kontrollsimulation enthält alle Emissionen und beschreibt eine Art Referenzzustand der Atmosphäre. In der Szenariosimulation werden die Emissionen des Straßenverkehrs aus der Simulation ausgenommen. Der Vergleich dieser beiden Simulationen liefert die Auswirkung der untersuchten Emissionen des Straßenverkehrs.

Emissionen im Modell

Die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs in den Simulationen betragen 8.8 Tg [N] pro Jahr nach *Benkovitz et al.* [1996] und sind geographisch nach *Olivier et al.* [1996] verteilt. Desweiteren werden NO_x -Emissionen durch die Verbrennung fossiler Brennstoffe (13.8 Tg [N] a^{-1}), Biomasseverbrennung (5.0 Tg [N] a^{-1}) und Mikroorganismen in Böden (5.5 Tg [N] a^{-1}) berücksichtigt, die nach *Benkovitz et al.* [1996], *Yienger und Levy* [1995] bzw. [*Hao und Liu* [1994] verteilt sind. Die Blitzemissionen sind an Hand der Parametrisierung von *Price und Rind* [1992] verteilt und auf eine globale Menge von 5.0 Tg [N] a^{-1} skaliert [*Lawrence et al.*, 1995; *Levy et al.*, 1996]. Die CO-Emissionen des Straßenverkehrs in den durchgeführten Simulationen betragen nach *OECD* [1995] 230.1 Tg [CO] pro Jahr und sind nach *Olivier et al.* [1996] verteilt. Die weiteren CO-Emissionen stammen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe (248.4 Tg [CO] a^{-1}), Biomassenverbrennung

(500 Tg [CO] a⁻¹), Vegetation (100 Tg [CO] a⁻¹), Ozeanen (40 Tg [CO] a⁻¹) und natürlich entstandenen Feuer (30 Tg [CO] a⁻¹) nach [Roelofs und Lelieveld, 2000]. Die geographische Verteilung der höheren Kohlenwasserstoffemissionen aus dem Straßenverkehr und der Industrie werden entsprechend *Olivier et al.* [1996] vorgegeben, nach [Roelofs und Lelieveld [2000] in das NMHC-Schema des Chemiemoduls umgerechnet und betragen insgesamt 90 Tg [C] a⁻¹. Emissionen von höheren Kohlenwasserstoffen betragen 19.4 Tg [C] pro Jahr und bestehen zu 50 % bzw. 25 % aus Alkanen bzw. Ethen. Die geographische Verteilung der Isoprenemissionen wurde nach GEIA (engl. *Global Emissions Inventory Activity*) [Guenther et al., 1995] vorgenommen. Für die globale Menge wird *Roelofs und Lelieveld* [2000] gefolgt, die eine (um 100 Tg [C] a⁻¹) reduzierte Emissionsmenge von 400 Tg [C] a⁻¹ - auf Grund der von [Houweling et al., 1998] gefundenen Überschätzung - vorsehen. Die tageszeitliche Variation der Isoprenemissionen wird mit dem kurzwelligen Strahlungsfluss am Boden als Gewichtungsfaktor verwendet. Aceton wird während der Oxidation von Propan gebildet. Da Propan nicht explizit im CBM-IV Chemieschema abgebildet wird, wird in dieser Arbeit dem Ansatz von *Wang et al.* [1998] gefolgt, der bereits von *Roelofs und Lelieveld* eingesetzt wurde, und es wird eine direkte Quelle von Aceton in die Simulation integriert, mit einer Ausbeute der Propanoxidation von 80 %, dessen Emissionen 7.8 Tg [C] pro Jahr betragen. Zusätzlich werden noch 2.27 Tg [C] pro Jahr aus der Vegetation emittiert, mit der gleichen geographischen Verteilung wie Isopren.

Die Wirkung der Spurengasemissionen CO₂, N₂O, CH₄, Ruß und SO₂ wurde nicht mit Hilfe des GCMs modelliert. Kohlendioxid und Lachgas spielen in der troposphärischen Chemie nur eine untergeordnete Rolle. Methanemissionen des Straßenverkehrs wurden in der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Modellierung nicht gesondert betrachtet. Ursache hierfür ist, dass andere anthropogene und natürliche Quellen, wie Landnutzung, Energieerzeugung und Feuchtgebiete, um zwei Größenordnungen höhere Emissionen freisetzen. Außerdem beträgt die Lebensdauer von Methan in der Atmosphäre mehrere Jahre und ist somit im Vergleich zu den anderen Kohlenwasserstoffen bedeutend länger. Entsprechend gering ist somit der Anteil der Methanemissionen des Straßenverkehrs, die oxidiert werden. Deshalb werden die Methanemissionen des Straßenverkehrs nicht gesondert in das Modell integriert. Schließlich wird die Randbedingung für Methan im Modell in Form einer Konzentrationsrandbedingung vorgegeben, so dass Emissionsquellen derzeit nicht getrennt berücksichtigt werden. Ebenso wurden die Ruß- und SO₂-Emissionen des Straßenverkehrs nicht in das Atmosphärenmodell integriert. Diese spielen insbesondere eine Rolle für heterogene Prozesse, die jedoch in der vorliegenden Modellversion weitgehend vernachlässigt werden, da einerseits die Spezies als passive Tracer behandelt werden (*Köhler et al.*, 2001] oder notwendige Aerosolmodule erst aktuell für eine globale Modellierung entwickelt werden.

Wahl der Simulationszeiträume

Um die Wirkung der Straßenverkehrsemissionen unabhängig von einer meteorologischen Situation eines bestimmten Jahres zu bestimmen, werden mit dem Modellsystem mehrere Jahre simuliert und gemittelt und auf diese Weise langjährige Monatsmittel erzeugt. In der vorliegenden Arbeit wurden - nach einem Einschwingzeitraum von zwei Jahren - vier Jahre simuliert und gemittelt. Um den Einfluss des Straßenverkehrs zu ermitteln, werden zwei Simulationen miteinander verglichen,

Tabelle 7.1: Zusammenstellung der Experimente der Straßenverkehrssimulationen; Bezeichnung und Beschreibung hinsichtlich der in der Simulation enthaltenen Emissionen.

Name	Jahr	Beschreibung
Kontrollsimulation		
CTR90	1990	Emissionen aus allen Quellen enthalten
Szenariosimulationen		
<i>Simulation zur Gesamtwirkung</i>		
NO_ROAD	1990	ohne Emission (NO _x , CO, NMHC) des Kfz-Verkehrs
<i>Einzelgassimulationen</i>		
NO_NOX	1990	ohne NO _x -Emission des Kfz-Verkehrs
NO_NMHC	1990	ohne NMHC-Emissionen des Kfz-Verkehrs
NO_CO	1990	ohne CO-Emission des Kfz-Verkehrs
<i>Regionale Einzelsimulationen</i>		
NO_ROADUSA	1990	ohne Emission (NO _x , CO, NMHC) des Kfz-Verkehrs in USA
NO_ROADEUR	1990	ohne Emission (NO _x , CO, NMHC) des Kfz-Verkehrs in Europa

in denen die gleiche Meteorologie verwendet wird. Es ändert sich auf Grund der unterschiedlichen Emissionen, die in das Modell integriert werden, die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre. Dies bewirkt jedoch keine Änderung der meteorologischer Größen, da ohne Rückkopplung auf z.B. Strahlung gerechnet wird. Da der gleiche meteorologische Zustand in beiden Simulationen berechnet wird, kommen Unterschiede nur durch die chemischen Spezies zustande. Diese haben i.d.R Lebensdauern von Tagen bis maximal einigen Monaten (beispielsweise CO mit 60 Tagen). Somit kann in guter Näherung die nach zwei Jahren erreichte neue chemische Zusammensetzung als eingeschwungener Zustand betrachtet werden.

Bei einem meteorologischen Mittel über nur vier Jahre besteht die Gefahr, dass ein systematischer Fehler durch eine meteorologische Besonderheit - wie beispielsweise besonders kalte Winter - entsteht. Da die Analyse sich auf die Troposphäre bezieht, die durch eine hohe Variabilität innerhalb eines Jahres ausgezeichnet ist, spielen interannuale Besonderheiten meist eine untergeordnete Rolle. Trotzdem wurde, um diesen Effekt auszuschließen, eines der Experimente auf zwei unterschiedlichen Großrechnern durchgeführt. Der Vergleich der beiden so entstandenen Wirkung des Straßenverkehrs in zwei unterschiedlichen Meteorologien, würde einen Einfluss der Meteorologie aufzeigen. Der Vergleich (Anhang B.4) zeigt, dass keine systematischen Unterschiede in den auf den zwei unterschiedlichen Rechnern berechneten Auswirkungen auftreten. Somit kann der meteorologische Zustand des 4-Jahres-Mittels, als ein mittlerer meteorologischer Zustand betrachtet werden.

7.2 Experimente

Um die Auswirkungen der Spurengasemissionen des Straßenverkehr auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre zu bestimmen, werden für ein Experiment zwei Modellsimulationen

Tabelle 7.2: Übersicht der Vorstudien zur Fernwirkung von Straßenverkehrsemissionen. Die untersuchten Emissionen werden jeweils aus- oder angeschaltet: NO = Vergleich zur Kontrollsimulation; ON = Vergleich zur straßenverkehrsfreien Simulation.

Simulation	Straßenverkehrs- emissionen	Simulations- dauer[Monate]
NO_ROADUSA1	Weltweit, außer USA	1
NO_ROADUSA6	Weltweit, außer USA	6
ON_ROADUSA6	Nur USA	6
NO_ROADEUR1	Weltweit, außer EUR	1
NO_ROADEUR6	Weltweit, außer EUR	6

durchgeführt. Erstens wird eine Kontrollsimulation durchgeführt (CTR90). Zweitens wird, um im Experiment die Gesamtwirkung des Straßenverkehrs zu bestimmen, ein Szenario (NO_ROAD) gerechnet (Tabelle 7.1), das ohne die gesamten Emission des Straßenverkehrs (NO_x, NMHC, CO) simuliert wird (NO_ROAD). Auf diese Weise wird eine straßenverkehrsfreie Atmosphäre in der Szenariosimulation berechnet. Die Differenz dieser beiden Simulationen gibt die Auswirkung des Straßenverkehrs an. Durch diese Art der Experiments wird der Straßenverkehr als zusätzliche, zuletzt hinzugekommene, atmosphärische Quelle für Spurengasemissionen betrachtet.

Neben dem Experiment zur Gesamtwirkung werden Experimente zur Wirkung der einzelnen Spurengase, so genannte Einzelgasstudien durchgeführt, um entscheidende Prozesse zu identifizieren. Erneut werden Szenariosimulationen durchgeführt, in denen nun jeweils nur eine Spurengaskomponente des Straßenverkehrs (NO_x, NMHC oder CO) abgeschaltet wird (NO_NOX, NO_NMHC, NO_CO) (Tabelle 7.1). Erneut ergibt sich die Wirkung, nun die der einzelnen Spurengaskomponente, durch den Vergleich mit der Kontrollsimulation (CTR90). Um den Einfluss regionaler Emissionen auf die globale Atmosphäre, insbesondere ihre Fernwirkung, zu bestimmen, wurden regionale Einzelstudien durchgeführt (Tabelle 7.1). In diesen Studien wird untersucht welche Wirkung die Emissionen aus den USA (NO_ROADUSA) und aus Europa (NO_ROADEUR) einzeln besitzen.

Den Methanemissionen des Straßenverkehrs kommt in der Chemie ebenfalls nur eine untergeordnete Rolle zu, da die Emissionsmenge im Vergleich zu anderen Emissionsquellen vernachlässigt werden kann. Folglich werden sie in dieser Arbeit nicht gesondert berücksichtigt. Die Auswirkungen von Schwefeldioxid und Rußpartikeln aus dem Straßenverkehr sind nicht Gegenstand dieser Arbeit, da nur gasförmige Spurenstoffe betrachtet werden.

Um die Fernwirkung zu verstehen wurde in verschiedenen Szenariosimulationen jeweils die Emissionen der Regionen USA und Europa einzeln abgeschaltet (NO_ROADUSA bzw. NO_ROADEUR). Die Differenz zur Kontrollsimulation gibt den absoluten Beitrag der jeweiligen Region an der Gesamtwirkung an. In Tabelle 7.2 sind die verschiedenen Simulationen mit den zugehörigen Emissionen zusammengestellt. Da die Chemie nichtlinear ist, und somit die Wirkung einer zusätzlichen Emissionsmenge vom chemischen Regime abhängt, wurde zusätzlich eine Szenariosimulation durchgeführt, in der alleine die USA Straßenverkehrsemissionen freisetzen (ON_ROADUSA6). Durch den Vergleich mit der Wirkung des obigen Experiments (NO_ROADUSA6) kann der Einfluss der Nichtlinearität abgeschätzt werden.

Kapitel 8

Ergebnis der numerischen Experimente

In Experimenten mit dem globalen Modell ECHAM4/CBM-IV wurde der Einfluss des Straßenverkehrs auf die Atmosphäre bestimmt. Im Folgenden werden die Ergebnisse der Simulationen dargestellt. Zunächst wird der Effekt der Gesamtheit der Straßenverkehrsemissionen gezeigt (Abschnitt 8.1). In zusätzlichen Einzelgasstudien wurde die Wirkung einzelner Spurengasemissionen (Abschnitt 8.2) und die Fernwirkung von Straßenverkehrsemissionen in den USA und Europa (Abschnitt 8.1.2) untersucht. Der Einfluss der Straßenverkehrsemissionen auf die troposphärischen Ozonsäulendichten (troposphärisches Gesamt Ozon) wird in Abschnitt 8.4 aufgezeigt. Für die berechnete Änderung der Ozon- und Hydroxylradikalkonzentrationen wird der resultierende Strahlungsantrieb bestimmt (Abschnitt 8.5).

8.1 Wirkung der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs

Im Folgenden wird ausgehend von der Wirkung auf die Konzentrationsverteilungen der primären Spurengase (NO_x , CO, NMHC) der Einfluss auf das sekundäre Spurengas Ozon analysiert. Die Auswirkungen des Straßenverkehrs werden zunächst als Beiträge zu den zonal gemittelten Verteilungen der Spezies dargestellt. Eine zonale Mittelung bietet sich für die Darstellung der globalen Wirkung an, da die Emissionsstärken stark mit der geographischen Breite variieren. Desweiteren werden die Auswirkungen in den horizontalen Verteilungen der Spezies dargestellt. Stellvertretend für die bodennahen Schichten werden die Spurengasverteilungen auf einem Druckniveau von 1000 hPa gezeigt. Für den Eintrag aus der planetaren Grenzschicht (PBL) in die freie Troposphäre geben die Spurengasverteilungen auf dem Druckniveau 700 hPa (etwa 3 Kilometer Höhe) einen guten Anhaltspunkt. Die Wirkung in der oberen Troposphäre wird auf dem Druckniveau 300 hPa gezeigt, also in etwa 10 Kilometer Höhe.

Um den Jahresverlauf der Auswirkungen des Straßenverkehrs zu zeigen, werden im vorliegenden Abschnitt die Monate der in mittleren Breiten höchsten und niedrigsten Sonnenstände - Juli (Nordsommer und Südwinter) und Januar (Nordwinter und Südsommer) - gezeigt. Schließlich wird der Jahresverlauf charakteristischer, gemittelter Größen dargestellt.

8.1.1 Primäre Spezies und Ozon

8.1.1.1 Zonal gemittelte Verteilungen

Die CO-, NO_x- und NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs bewirken in den zonal gemittelten Verteilungen der entsprechenden Spurengase eine Zunahme der troposphärischen Mischungsverhältnisse (Abbildung 8.1). Die Struktur der relativen Beiträge der Straßenverkehrsemissionen zu den verschiedenen Spurengasverteilungen ist jedoch auf Grund unterschiedlicher Lebensdauern, Hintergrundverteilungen und möglicher Reservoirspezies sehr unterschiedlich.

Die (im Vergleich zu den Stickoxiden) weniger strukturierte troposphärische **Kohlenmonoxid**-Verteilung nimmt im Juli im zonalen Mittel in den Extratropen um mehr als 12 Prozent (NH) bzw. mehr als 8 Prozent (SH) zu. Im Januar werden in der der Nordhemisphäre mehr als 24 Prozent und in der Südhemisphäre nur noch 6 Prozent erreicht. Im Winter liegen die Beiträge in der Nord- und Südhemisphäre gut ein Viertel höher als im Sommer auf Grund der photochemischen Lebensdauer von CO. Diese ist im Winter länger und erlaubt so eine stärkere Anreicherung von CO in der Atmosphäre. So beträgt im Nordwinter der Beitrag des Straßenverkehrs zur CO-Verteilung nördlich von 40°N in der gesamten Troposphäre über 20 Prozent. Der maximale relative Beitrag des Straßenverkehrs wird erwartungsgemäß in Bodennähe in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre (mehr als 24 Prozent) erreicht. In den Tropen liegen die relativen Beiträge mit 4 bis 8 Prozent im Juli etwas niedriger, da dort die Hintergrundkonzentration von Kohlenmonoxid auf Grund der Biomasseverbrennung höher ist und zudem die Straßenverkehrsemissionen in diesen Breiten geringer sind als in den nördlichen Extratropen (Abschnitt 5.2.2). Die absoluten Beiträge des Straßenverkehrs im zonalen Mittel (Abbildung 8.2) betragen im Juli auf der Nordhemisphäre 10 bis 50 ppb und sind auf der Südhemisphäre und in den Tropen mit 5 bis 10 ppb um etwa einen Faktor drei kleiner (Abbildung 8.2). Im Januar liegen - wiederum auf Grund der photochemischen Lebensdauer von CO - die absoluten Werte im Nordwinter etwa um den Faktor zwei höher, im Südwinter hingegen etwa um den Faktor zwei höher.

Bei den **Stickoxiden** wird im zonalen Mittel ein relativer Beitrag von mehr als 12 Prozent in beiden Hemisphären erreicht (Abbildung 8.1). In mittleren Breiten wird dieser Wert in Bodennähe sowohl in der Nordhemisphäre als auch in der Südhemisphäre deutlich überschritten, wobei erneut - wie bei CO - die höheren Werte im jeweiligen Wintermonat erreicht werden: beispielsweise betragen die maximalen Werte in mittleren Breiten im Sommer in Süd- und Nordhemisphäre mehr als 32 Prozent. So sind bei den Stickoxiden - wie auch bei CO - die relativen Beiträge des Straßenverkehrs auf Grund der photochemischen Lebensdauer im Winter etwa ein Viertel höher als im Sommer. Die absoluten Beiträge des Straßenverkehrs zu der zonal gemittelten NO_x-Verteilung (Abbildung 8.2) liegen - Januar und Juli - in der PBL der Nordhemisphäre (mehr als 200 ppt) eine Größenordnung höher als in der Südhemisphäre (unter 20 ppt). Die relativen Beiträge des Straßenverkehrs sind in der Südhemisphäre dennoch von der gleichen Größenordnung wie in der Nordhemisphäre (Abbildung 8.2), da die Stickoxide dort deutlich geringere Hintergrundkonzentrationen aufweisen. Ein Vergleich der zonalen Verteilungen zeigt die - im Vergleich zu CO und Ozon - vergleichsweise starke räumliche Variation der absoluten Beiträge zu NO_x. Ursache hierfür ist die deutlich kürzere atmosphärische Lebensdauer der Stickoxide, die um etwa eine Größenordnung kürzer als die von CO ist. Dadurch fallen die absoluten Beiträge des Straßenverkehrs zu den Mi-

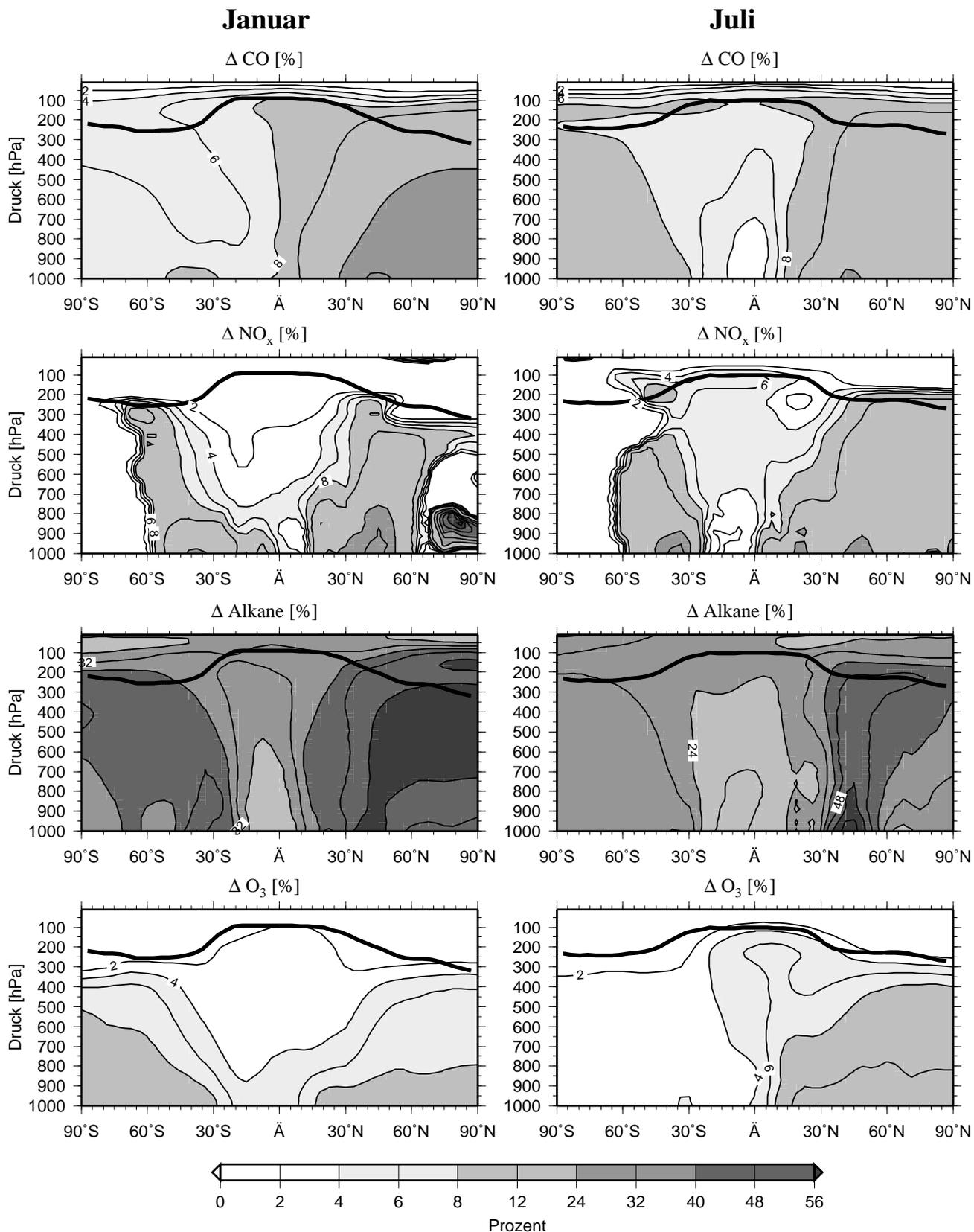


Abbildung 8.1: Relativer Beitrag der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs zu den zonal gemittelten Verteilungen der primären Spezies **CO**, **NO_x**, **Alkane** und **Ozon** (in %) im Januar und Juli. Die Beiträge sind nur für Regionen dargestellt, in denen mehr als 1 ppb/ppt (nach Abbildung 8.2) vorliegt. Die Lage der Tropopause (Monatsmittel) ist mit einer fett gedruckten Linie markiert.

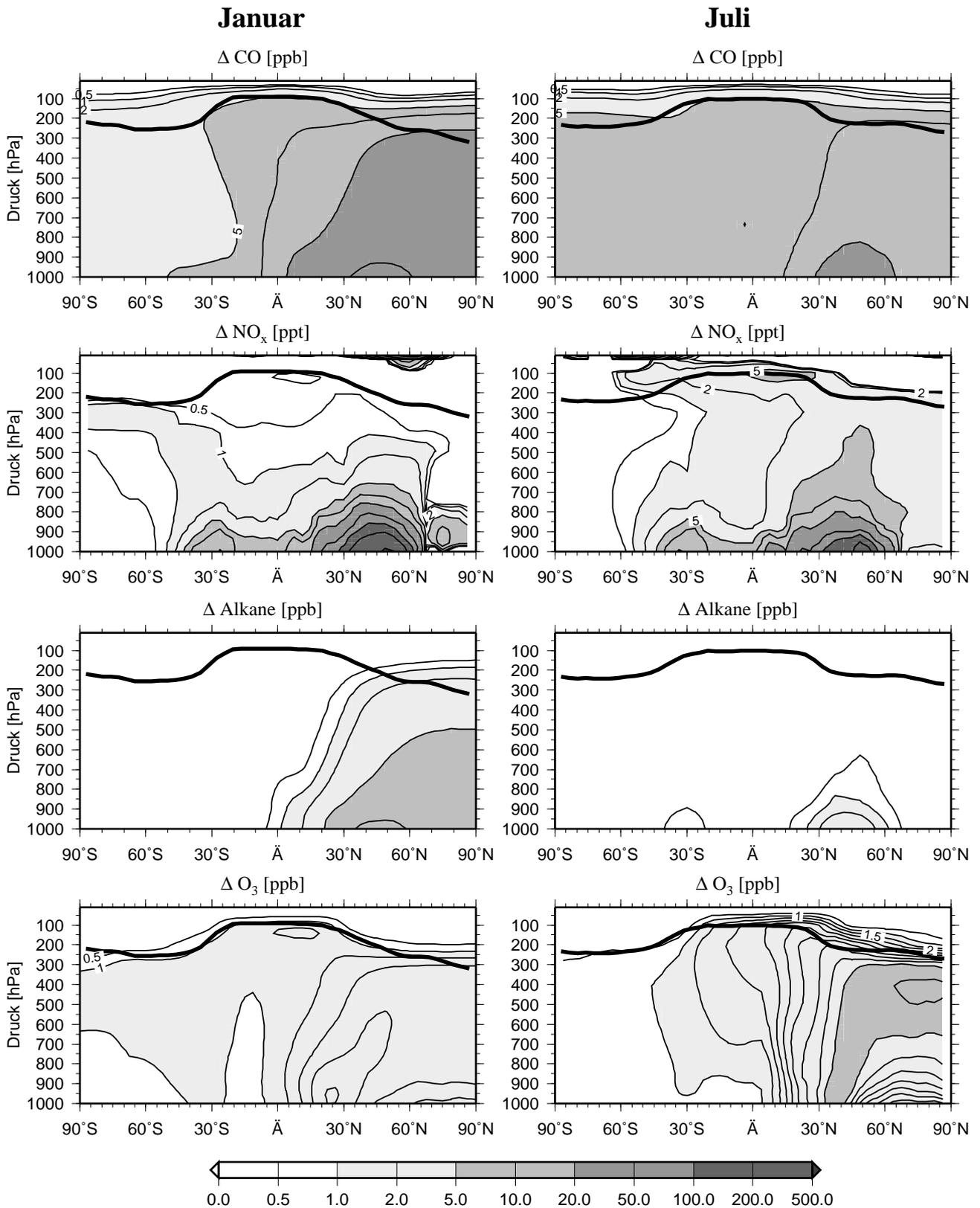


Abbildung 8.2: Einfluss der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs auf die zonal gemittelten Verteilungen der primären Spezies CO , NO_x , Alkane und Ozon (in ppb / ppt) im Januar und Juli. Die Lage der Tropopause (Monatsmittel) ist mit einer fett gedruckten Linie markiert. Isolinien bei Ozon sind äquidistant mit 0.5 ppb Abstand.

schungsverhältnissen der Stickoxide mit zunehmenden Abstand von den Quellregionen rascher ab als die von Kohlenmonoxid. In der Konsequenz wird die NO_x -Verteilung stärker durch lokale Emissionsquellen beeinflusst.

Im Januar fällt der Beitrag des Straßenverkehrs in arktischen Breiten, sowohl in den absoluten (mehr als 10 ppt) als auch in den relativen Beiträge (mehr als 56 Prozent) auf. Ursache hierfür ist - wie in der Einzelgasstudie gezeigt (Abschnitt 8.2.4) - die Bildung der temporären Reservoirspezies PAN auf Grund der NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs (siehe auch Abbildung 8.11), die bei ihrem thermischen Zerfall NO_x freisetzt. Wird PAN in der freien Troposphäre in polare Breiten transportiert (polare Zellen, Abschnitt 2.1), ist es während dem Transport stabil und gelangt erst nach dem Absinken in hohen Breiten wieder zu höheren Temperaturen (Abbildung 2.1). Hierbei wird PAN, das auf Grund der NMHC des Straßenverkehrs gebildet wurde, thermisch instabil und setzt in geringen Höhen in der Arktis NO_x frei.

Bei der Verteilung der NMHCs besitzt der Straßenverkehr einen höheren relativen Beitrag (nur für die Alkane gezeigt) als bei CO und NO_x , da bereits bei den Emissionen die relativen Anteile des Straßenverkehrs bei einzelnen NMHC-Spezies bis zu 90 Prozent betragen. Die NMHC-Verteilungen sind dadurch ausgezeichnet, dass sie durch die Straßenverkehrsemissionen noch bis in die obere Troposphäre hinein stark mit Beiträgen über 48 Prozent bei den Alkanen beeinflusst werden. Dies wird durch die im Vergleich zu den Stickoxiden deutlich längere Lebensdauer der Alkane ermöglicht und da keine bedeutende Quelle für Alkane in der freien Troposphäre - wie beispielsweise bei den Stickoxiden Blitze - existiert. Die absoluten Beiträge des Straßenverkehrs zu den Alkanenverteilung weist im Januar etwa fünf mal höhere Beiträge als im Juli auf, da die photochemische Lebensdauer - wie bei CO und NO_x - im Winter deutlich höher ist.

Der höchste absolute **Ozonbeitrag** durch den Straßenverkehr von mehr als 5 ppb im zonalen Mittel wird im nordhemisphärischen Sommer erreicht (Abbildung 8.2). Beiträge von 5 ppb werden im zonalen Mittel ausgehend von Quellregionen in etwa 35°N bis in eine Höhe von 350 hPa (etwa 8 km) nördlich von 45°N überschritten. Maximale relative Ozonbeiträge - mehr als 12 Prozent - werden im Juli nördlich von 20°N in der PBL berechnet (Abbildung 8.1). Ozon entsteht in den Quellregionen (insbesondere in den nördlichen mittleren Breiten) und deren Abluftgebieten auf Grund der Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs (vgl. auch Abbildung 8.2). Stickoxide bilden - ab einer Mindestkonzentration des NO_x von etwa (10-30) ppt - über die Reaktionen (2.5), (2.2) und (2.3) photochemisch Ozon. Folglich wird dort, wo die Stickoxide des Straßenverkehrs emittiert oder transportiert werden, Ozon gebildet. So zeigt sich auch in der Arktis eine Ozonzunahme durch den Straßenverkehr. Hierfür verantwortlich sind Stickoxide des Straßenverkehrs, die mit Hilfe des temporären Reservoirgases PAN, welches auf Grund der NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs gebildet wird (Abbildung 8.2), aus den Quellgebieten in die Arktis transportiert werden (Abschnitt 8.2.4). Das heisst, nur die kombinierte Emission von Stickoxiden und NMHCs durch den Straßenverkehr ist für diese Ozonbildung verantwortlich. Wie die Netto-Ozonproduktion (Abbildung 8.8) zeigt, wird in mittleren Breiten der freien Troposphäre Ozon lokal gebildet. Insgesamt wird, durch Transport und lokale Bildung, ein Beitrag von 8 bis 12 Prozent in der freien Troposphäre der Extratropen berechnet. Hohe relative Beiträge von mehr als 6 Prozent werden auch in der oberen Troposphäre der Tropen und der nördlichen Extratropen erreicht. Dort wird netto Ozon produziert, d.h. Ozon wird nicht nur dort hin transportiert, sondern auch lokal gebildet. Die positive

Netto-Ozonproduktion kommt zustande, da der Brutto-Ozonverlust durch die minimale Wasserdampfkonzentration sehr schwach ist. In den südlichen Extratropen hingegen ergibt sich im Juli nur noch ein relativer Beitrag von weniger als 4 Prozent, da im Südwinter die photochemische Ozonproduktion deutlich schwächer ist. In der oberen Troposphäre in tropischen Breiten wird ein absoluter Beitrag im Juli von mehr als 3 ppb erreicht. Eine Ozonänderung in dieser Region ist besonders wirksam für die Strahlungsbilanz, da dort minimale Temperaturen herrschen (Abbildung 2.1) und die Temperatur des strahlungsaktiven Spurengases entscheidend für die Reemission von Strahlung ist. In den südlichen Extratropen liegt der absolute Beitrag des Straßenverkehrs um den Faktor fünf niedriger (nur 0.5 bis 1.5 ppb). Bei den relativen Beiträgen des Straßenverkehrs zu Ozon zeigt sich nun die Besonderheit, dass in Nord- und Südhemisphäre ähnlich hohe Werte berechnet werden (Abbildung 8.1). Wie oben gezeigt ist bei den relativen Beiträgen zu den primären Spurengasen der Unterschied zwischen Januar und Juli in der Südhemisphäre schwach ausgeprägt: So liegen die relativen Beiträge für Kohlenmonoxid, Stickoxide und NMHCs im Januar um etwa ein Viertel niedriger als im Juli und weisen ein ähnliches hemisphärisches Muster auf. Bei Ozon hingegen zeigt sich bei den relativen Beiträgen im Januar und Juli ein deutlich unterschiedliches hemisphärisches Muster: Im Januar liegen die relativen Beiträge mit mehr als 8 Prozent in der Südhemisphäre genauso hoch wie in der Nordhemisphäre. Die Nordhemisphäre weist - wie auch die primären Spurengase - um etwa ein Viertel höhere Beiträge im Sommer als im Winter auf. In der Südhemisphäre hingegen unterscheiden sich die relativen Beiträge zwischen Südsommer und Südwinter um mehr als einen Faktor vier. Die Ursache für die hohen Beiträge im Südsommer ist nun die nichtlineare Photochemie in Verbindung mit den niedrigen Hintergrundkonzentrationen von Ozon und NO_x . Die nichtlineare Photochemie bewirkt, dass bei niedrigeren Stickoxidkonzentrationen die Ozonproduktivität aller Stickoxide höher ist. Somit können die Emissionen des Straßenverkehrs in der Südhemisphäre, die um mehr als eine Größenordnung geringer sind als in der Nordhemisphäre (Abschnitt 5.2.2, eine Ozonzunahme bewirken, die nur um einen Faktor drei niedriger liegt als in der Nordhemisphäre (Abbildung 8.2). Dieser absolute Beitrag von etwa 1 ppb im Südsommer entspricht wegen der geringeren Hintergrundkonzentration von Ozon einem relativen Beitrag von mehr als 8 Prozent.

8.1.1.2 Horizontale Verteilungen

In der horizontalen Verteilung (1000 hPa) (Abbildung 8.3) der Beiträge des Straßenverkehrs zu den primären Spurengasen am Boden sind deutlich die Quellregionen erkennbar. Wesentliches Merkmal der Beiträge des Straßenverkehrs zu der **Stickoxidkonzentrationsverteilung** im Januar und Juli sind hohe Beiträge und Konzentrationen (*nicht gezeigt*) über den kontinentalen Quellgebieten. Über den Ozeanen und Nicht-Quellgebieten sind die Beiträge aufgrund der kontinentalen Quellen und der kurzen Lebensdauer der Stickoxide deutlich niedriger. Die Konzentrationen sind dort um eine Größenordnung niedriger (*nicht gezeigt*).

In den dichtbesiedelten Zentren der Nord- und Südhemisphäre (USA, Europa, Japan, Ballungsräume in Südamerika, Afrika und Australien) werden absolute Beiträge des Straßenverkehrs zur atmosphärischen NO_x -Verteilung zwischen 100 ppt und mehreren ppb simuliert. Die relativen Beiträge betragen dort zwischen 32 und 60 Prozent. Mit zunehmendem Abstand von den Quell-

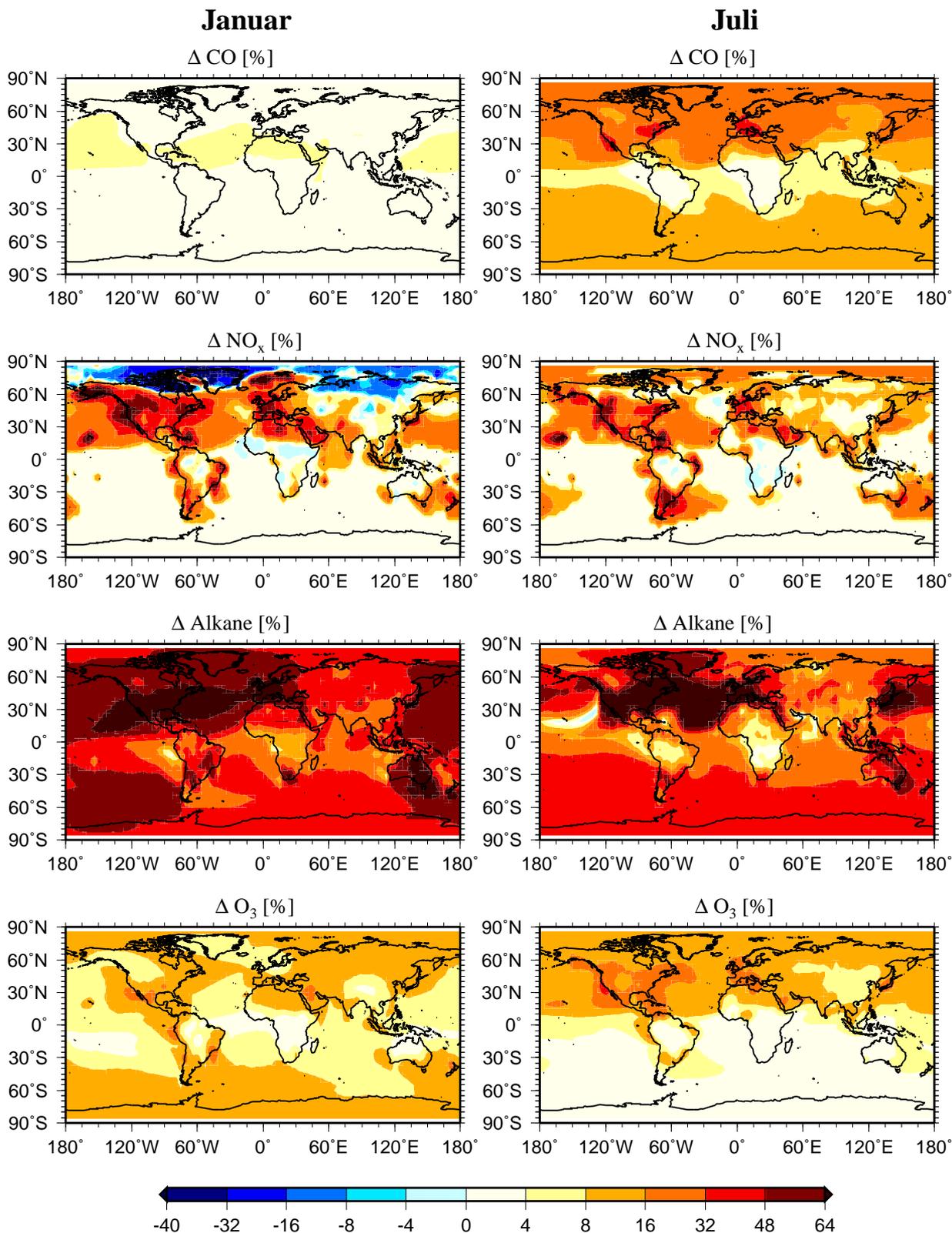


Abbildung 8.3: Relativer Beitrag der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs zu der horizontalen Verteilung (1000 hPa) von **CO** (oben), **NO_x** (2. Zeile), **Alkane** (3. Zeile) und **Ozon** (unten) im Januar (links) und Juli (rechts) (in %).

regionen fallen die relativen Beiträge des Straßenverkehrs rasch ab: im Sommer deutlich stärker als im Winter (Abbildung 8.3). In den Nicht-Quellregionen und über den Ozeanen liegen somit die relativen Beiträge meist unter 16 Prozent, die absoluten Beiträge unter 30 ppt. Nur in Zungen kontinentaler Luft über den Ozeanen werden deutlich höhere relative Beiträge berechnet. Im Juli betragen die relativen Beiträge im Westatlantik und Ostpazifik über 16 Prozent. Mehr als 16 Prozent Beitrag findet sich auch vor den Küsten Japans, Südamerikas, Australiens und Neuseelands. Die absoluten Beiträge liegen in diesen maritimen Gebieten meist unter 100 ppt. Höhere absolute Beiträge finden sich im Januar: Die Advektion von stickoxidbelasteter Luft führt - auf Grund der vergleichsweise längeren Lebensdauer der Stickoxide - zu absoluten Beiträgen von über 300 ppt (*nicht gezeigt*) vor der Ost- und Westküste der USA. Über den westlichen Teilen des Nordatlantik betragen die relativen Beiträge des Straßenverkehrs mehr als 24 Prozent. Über der Arabischen Halbinsel zeigen sich im Januar und Juli relative Beiträge zwischen 32 und 48 Prozent. In der Südhemisphäre werden im Südwinter in den Abluftgebieten von Südamerika, Australien und Neuseelands noch einige Tausend Kilometer von den Kontinenten entfernt relative Beiträge über 16 Prozent erreicht (Abbildung 8.3). Die absoluten Mischungsverhältnisse liegen dort unter 30 ppt (*nicht gezeigt*). Wie aufgrund der jahreszeitabhängigen photochemischen Lebensdauer der Stickoxide (Abschnitt 2.4) zu erwarten, zeigen sich über kontinentalen Gebieten auf der Nordhemisphäre im Winter höhere absolute Beiträge als im Sommer. Die Beiträge liegen in kontinentalen Gebieten in der Regel im Januar über 300 ppt, im Juli über 100 ppt.

Im Ostatlantik (30°N bis 45°N) zeigt sich, dass die relativen Anteile in den unteren Schichten der Atmosphäre niedriger liegen als im Westatlantik. Dort trägt der Straßenverkehr weniger als 10 Prozent zur atmosphärischen NO_x-Verteilung bei, während er im restlichen Atlantik mehr als 20 Prozent beiträgt. Dies ist eine Folge des Datensatzes (*Benkovitz et al.* [1996]), der Stickoxidemissionen durch Schiffe nur im Nordatlantik berücksichtigt. Werden Schiffsemissionen nicht berücksichtigt, so trägt der Straßenverkehr mehr als 18 % zu der Stickoxidbelastung im Westatlantik bei. Bei Berücksichtigung der Stickoxidemissionen durch Schiffe beträgt dieser Wert dagegen weniger als 6 %. Auffällig ist der starke Gradient der Stickoxidkonzentrationen mit zunehmendem Abstand von den Quellregionen. Dies macht deutlich, dass für die Fernwirkung des Straßenverkehrs andere chemische Spezies verantwortlich sind.

Südlich von dieser Region im Ostatlantik - nun bei etwa 25°N - fallen hohe relative Beiträge des Straßenverkehrs zur Stickoxidverteilung auf. Diese werden - wie in Regionalstudie (Abschnitt 8.1.2) und Einzelgasstudien (Abschnitt 8.2.4) gezeigt - führen die NMHC-Emissionen in den USA dazu, dass dort vermehrt PAN gebildet wird, welches in den Ostatlantik transportiert wird. Dort sinken die Luftmassen ab und setzen während des thermischen Zerfalls des PAN Stickoxide frei.

Die Beiträge des Straßenverkehrs zu der **CO-Verteilung** weisen, wie bereits in der zonal gemittelten Verteilung gesehen, abseits der Quellregionen schwächere Gradienten auf als die Stickoxide, auf Grund der im Vergleich zu NO_x deutlich höheren Lebensdauer. Diese längere Lebensdauer ist auch die Ursache dafür, dass der relative Beitrag des Straßenverkehrs zur CO-Verteilung in den nördlichen Extratropen nahezu überall über 24 Prozent liegt.

Auch für die Beiträge des Straßenverkehrs zu **Ozon** werden maximale Zunahmen des Mischungsverhältnisses im Juli in Bodennähe (1000 hPa) in den Quellregionen der Straßenverkehrsemissionen an der Ost- und Westküste der USA, im Süden Europas und im Osten Chinas

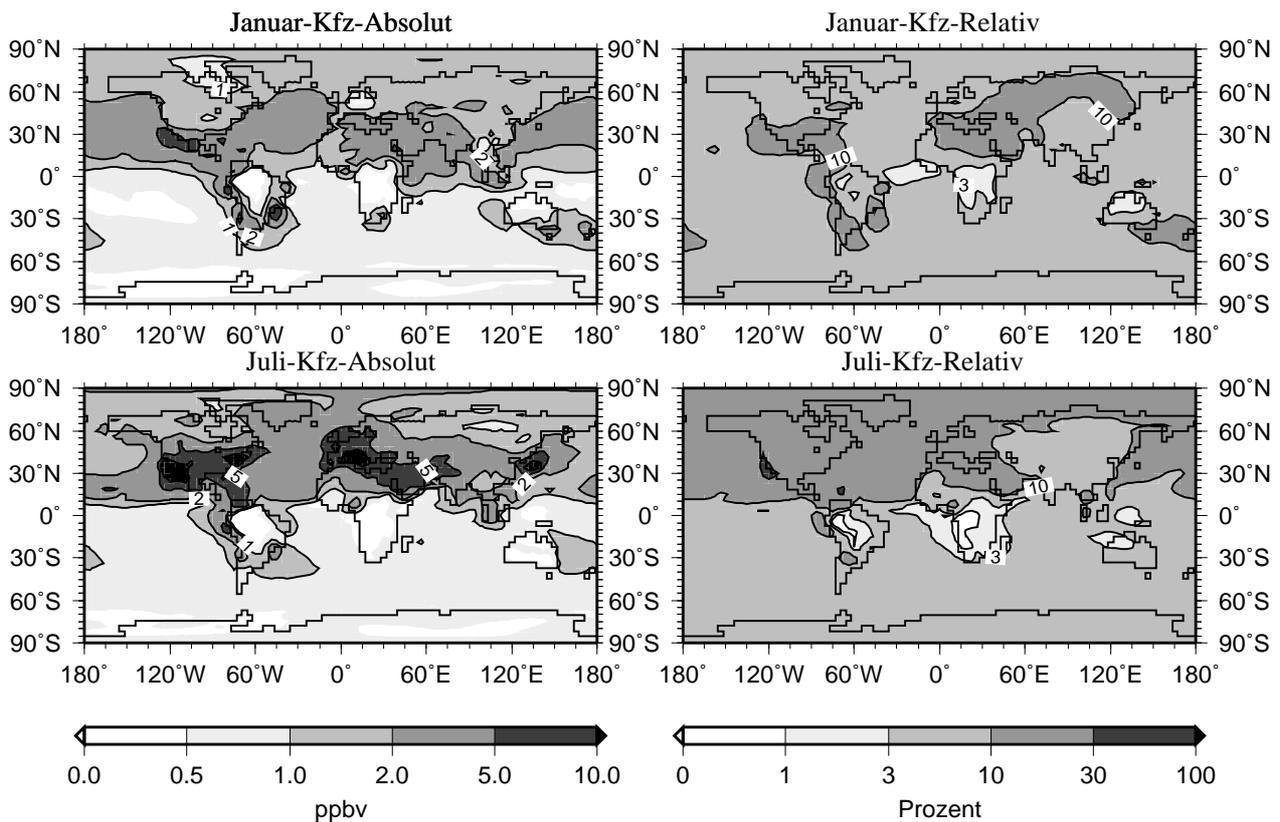


Abbildung 8.4: Signal der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs in der planetaren Grenzschicht (1000 hPa) in der **Ozonverteilung** in [ppb] und [%] im Januar (*oben*) und Juli (*unten*).

erreicht (Abbildung 8.4). Teilweise werden allerdings in Nicht-Quellregionen ebenso hohe Zunahmen der Ozonkonzentrationen wie in Quellgebieten selbst berechnet. Im Juli zeigt sich über den Quellgebieten der Nordhemisphäre eine Ozonbeitrag von mehr als 5 ppbv. In den USA, Japan und Südeuropa werden Beiträge von 10 ppbv überschritten. Dies entspricht relativen Beiträgen (*nicht gezeigt*) von mehr als 10 Prozent, an der Westküste der USA über 30 Prozent. Ein zusammenhängendes Gebiet mit absoluten Beiträgen über 5 ppbv (entspricht über 10 Prozent) erstreckt sich von Südeuropa über die Arabische Halbinsel bis nach Indien. Über weiten Teilen der gesamten nördlichen Extratropen wird eine Ozonzunahme durch den Straßenverkehr von mehr als 2 ppbv berechnet. Die relativen Beiträge des Straßenverkehrs liegen in der nördlichen Hemisphäre meist bei mehr als 10 Prozent.

In der Südhemisphäre sind im Juli geringere absolute Beiträge zu beobachten: unter 1 ppbv über den Ozeanen, in Quellgebieten lokal bis zu 2 ppbv. Ursache hierfür ist die im südhemisphärischen Winter deutlich reduzierte photochemische Ozonproduktion. Die 'Abgasfahne' von Australien und Neuseeland mit 1 bis 2 ppbv absolutem Beitrag durch den Straßenverkehr erstreckt sich in der Folge bis ungefähr 170° West. Insgesamt liegen die relativen Beiträge auf der südlichen Hemisphäre im Juli niedriger als in der nördlichen Hemisphäre bei weniger als 10 Prozent.

Im Januar bewirken die Emissionen des Straßenverkehrs mit meist weniger als 2 ppbv deutlich niedrigere Beiträge zum bodennahen Ozon. Nur an der Westküste der USA bewirkt der Straßenverkehr eine Erhöhung des bodennahen Ozons um mehr als 5 ppbv. Auffällig ist, dass die höheren

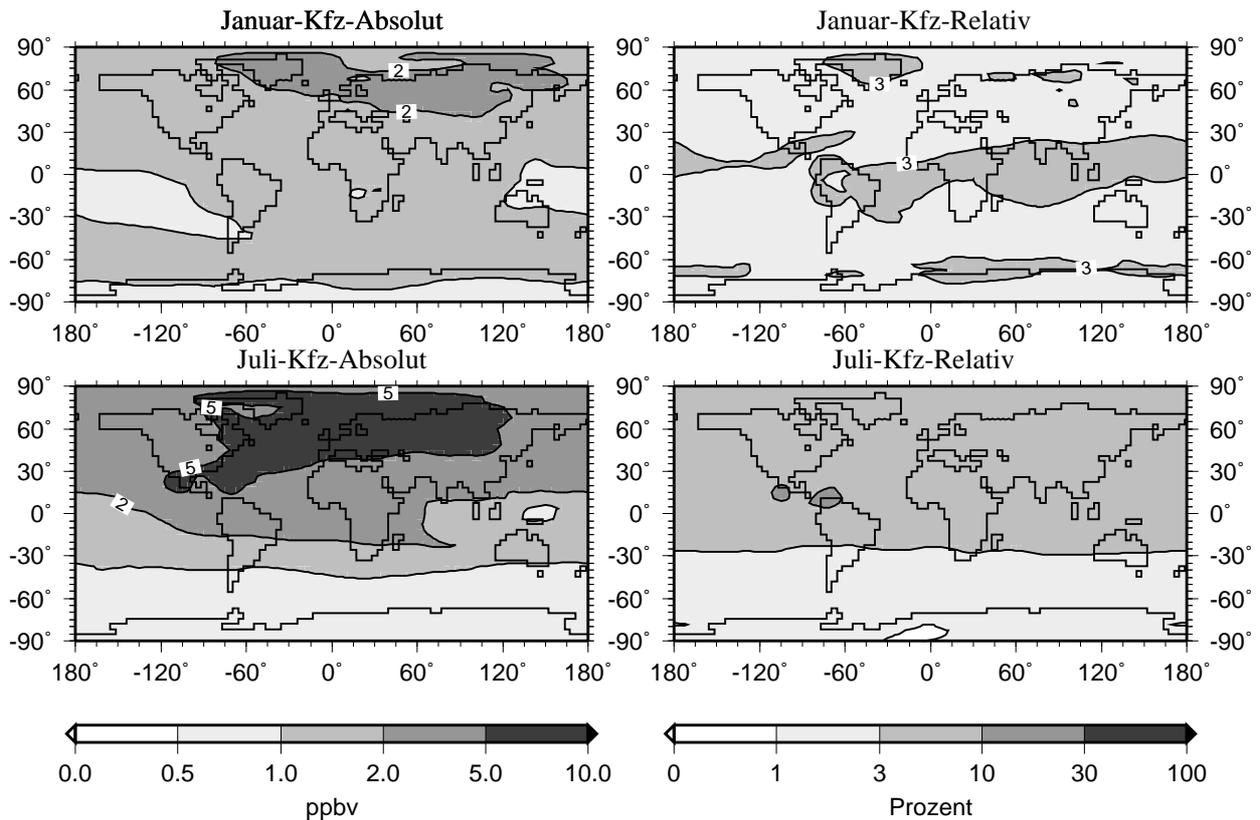


Abbildung 8.5: Signal der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs in der oberen Troposphäre (300 hPa) in der **Ozonverteilung** in [ppbv] und [%] im Januar (*oben*) und Juli (*unten*).

absoluten Beiträge meist nicht direkt in den Quellregionen, sondern in den Abluftgebieten, erreicht werden. Wie in den Einzelgasstudien dargestellt findet in den Quellregionen durch die Stickoxidemissionen eine Titration von Ozon statt, während in den Abluftgebieten PAN, das auf Grund der NMHC-Emissionen gebildet wird, thermisch zerfällt (Abschnitt 8.2). Über den Ozeanen der nördlichen Hemisphäre und weiten Teilen der nördlichen Tropen trägt der Straßenverkehr 2 bis 5 ppb zum bodennahen Ozon bei. Dies entspricht einem relativen Beitrag unter 10 Prozent (*nicht gezeigt*). In den Quellregionen der südlichen Hemisphäre, der Tropen und Südeuropas werden im Januar höhere Ozonzunahmen durch den Straßenverkehr als im Juli berechnet. Die Beiträge liegen bei 2 bis 5 ppb in industrialisierten Zentren, in Abgasfahnen mehr als 1 ppb. Bei den relativen Beiträgen zeigt sich wiederum nahezu kein hemisphärischer Unterschied. Die relativen Beiträge liegen bei 3 bis 10 Prozent, in Quellregionen und den Abluftgebieten über 10 Prozent. Unter 3 Prozent relativer Beitrag findet sich nur in stark durch Biomasseverbrennung beeinflussten Gebieten, d.h. vor der Ostküste von Südamerika und in Zentralafrika. Die Quellregionen des Straßenverkehrs in der Südhemisphäre, städtische Regionen in Südamerika, Südafrika, im Südwesten Australiens und in Neuseeland weisen Beiträge des Straßenverkehrs von bis zu 7 ppb auf. Dies entspricht relativen Beiträgen von über 16 Prozent. Die Werte fallen jedoch meist etwa 1000 Kilometer vom Festland entfernt unter 1 ppb. Nur östlich von Australien liegen die Werte ungefähr 25 Längengrade, also etwa 2000 Kilometern, über einem ppb. Dies entspricht noch einem relativen Beitrag zwischen 8 und 12 Prozent bis in westliche Längen von 165° W. Das bedeutet, dass im südhemisphärischen

Sommer ein bodennaher Transport der vom Straßenverkehr mit Ozon angereicherten Luftmassen über mehrere Tausend Kilometer Ozean in bodennahen Schichten möglich ist (im Modell).

Im Juli zeigen sich hohe absolute Ozonbeiträge von mehr als 5 ppb bis in eine Höhe von 10 Kilometer (300 hPa) (Abbildung 8.5). Mit zunehmender Höhe finden sich Ozonbeiträge über 5 ppb bis in polare Breiten: In der oberen Troposphäre (300 hPa) wird ein Beitrag von 5 ppb nördlich von 45°N vom Osten der USA bis in den Osten Russlands überschritten. Im Januar wird in der freien Troposphäre in hohen Breiten der Nordhemisphäre ein Ozonbeitrag von mehr als 2 ppb berechnet. Beiträge über 3 Prozent zeigen sich in tropischen Breiten und über Grönland in der freien Troposphäre. Hohe Ozonbeiträge in der freien Troposphäre entstehen durch den Transport von Stickoxiden in der Reservoirspezies PAN (Abschnitt 8.2). Sinken die Luftmassen ab, führen die steigenden Temperaturen zu einem thermischen Zerfall von PAN, wodurch NO_x freigesetzt wird und Ozon produziert werden kann.

Zusammenfassend lässt sich zu den Beiträgen in den horizontalen Verteilungen sagen, dass sich im Juli maximale Ozonbeiträge durch den Straßenverkehr in den unteren Schichten der Atmosphäre, insbesondere in Quellregionen und direkten Abluftgebieten zeigen. In den oberen Schichten der Atmosphäre sind die Regionen mit maximalen Ozonbeiträgen geographisch deutlich ausgedehnter und erstrecken sich über weite Teile der nordhemisphärischen Extratropen. Im Januar werden in der planetaren Grenzschicht nur über den Ozeanen der nördlichen Hemisphäre und über dem vorderen Orient maximale Ozonbeiträge von 2 ppb erreicht. In der freien Troposphäre zeigt sich der Transport von NO_x in der Reservoirspezies PAN. Im Juli liegen die relativen Beiträge deutlich höher und überschreiten vereinzelt 10 Prozent.

Die horizontale Ozonverteilung in etwa 10 km Höhe (300 hPa, Abbildung 8.5) zeigt die Fernwirkung des Straßenverkehrs im Juli in den oberen Schichten der freien Troposphäre: Ausgehend von den Quellgebieten finden sich Ozonbeiträge von mehr als 5 ppb in einer Region, die sich von den USA über den Nordatlantik und Europa bis in den Osten Russlands und in polare Regionen erstreckt. Dies entspricht einem relativen Beitrag zwischen 3 und 10 Prozent. In den niedrigeren Höhenschichten zwischen 3 und 6 Kilometer (700 bis 500 hPa) wird über diesen Gebieten ein relativer Beitrag durch den Straßenverkehr von 10 Prozent überschritten (*nicht gezeigt*). Dies zeigt, dass durch vertikalen Transport Luftmassen, die durch die Emissionen des Straßenverkehrs mit Ozon angereichert sind, bis in eine Höhe von 9 Kilometern transportiert werden. Da die Lebensdauer mit der Höhe zunimmt, ist so ein interkontinentaler Transport ozonreicher Luftmassen und damit der Wirkung der Straßenverkehrsemissionen über weite Strecken möglich.

Die USA erscheinen als mögliche Quelle für die modellierten Ozonbeiträge, da in der Atlantikregion vorwiegend westliche Windrichtungen vorherrschen. Im Gegensatz zu den Verhältnissen in der freien Troposphäre werden in der planetaren Grenzschicht über dem Nordatlantik nur Beiträge unter 5 ppb erreicht. Gleichzeitig liegt die Netto-Ozonproduktionsrate in dieser Region unter $10^4 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. Dies entspricht einer Produktion von maximal 0.03 ppb Ozon pro Tag. Über großen Regionen findet sogar ein Netto-Ozonabbau von mehr als 0.3 ppb pro Tag statt. Dies deutet darauf hin, dass der effektive Transport von ozonangereicherten Luftmassen insbesondere in der freien Troposphäre stattfindet. Diese Luftmassen stammen vermutlich aus den USA, wo auf Grund bodennaher Emissionen Ozon produziert wird. Die niedrigen Netto-Ozonproduktionsraten zeigen, dass es während des Transports nur zu geringer chemischer Produktion in der freien Troposphäre

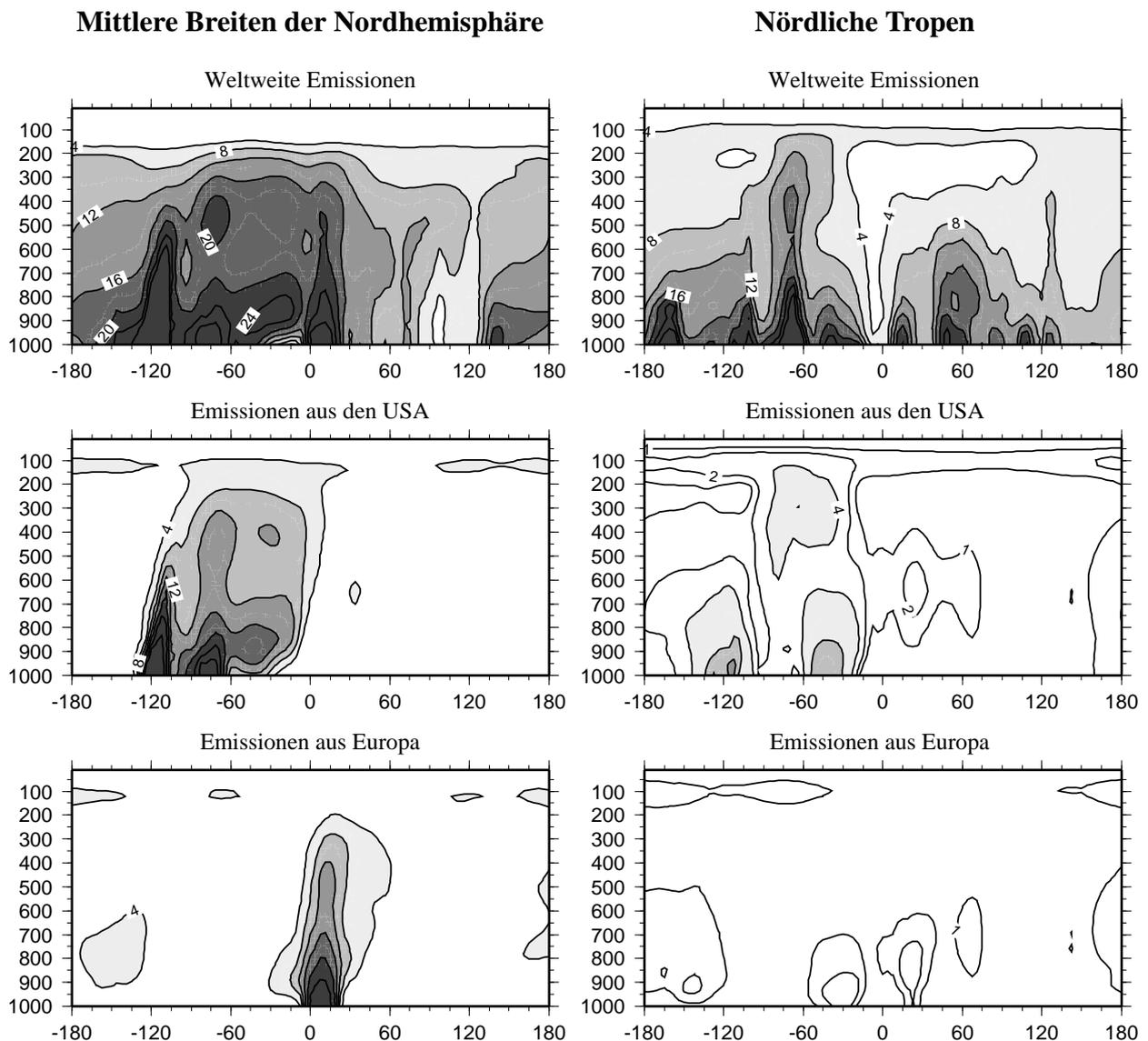


Abbildung 8.6: Meridional gemittelte relative **Stickoxidbeiträge** des Straßenverkehrs im Juli (in %) für die geographischen Breitenbereiche mittlere Breiten der Nordhemisphäre (30°N-60°N, *links*) und nördliche Tropen (0°-30°N, *rechts*) aufgetragen für die geographischen Längen; Einfluss der Emissionen des Straßenverkehrs: weltweit (*oben*), nur aus den USA (*Mitte*) und nur aus Europa (*unten*). Isolinien sind äquidistant mit Abstand 4 %. Bei den Regionalbeiträgen (USA, Europa) in den nördlichen Tropen ergänzt um Isolinien bei 1 % und 2 %.

kommt. Dies legt insbesondere die Frage nahe, wieviel Europa und Amerika zu den berechneten Ozonbeiträgen beitragen. Dieser Frage wird im folgenden Abschnitt mit Hilfe von zwei Regionalstudien nachgegangen.

8.1.2 Ferntransport der Wirkung des Straßenverkehrs

Ein zentraler Gesichtspunkt für die globale Wirkung regionaler Straßenverkehrsemissionen ist der Export chemischer Spezies aus der Grenzschicht. Erst dieser Transport aus der Grenzschicht

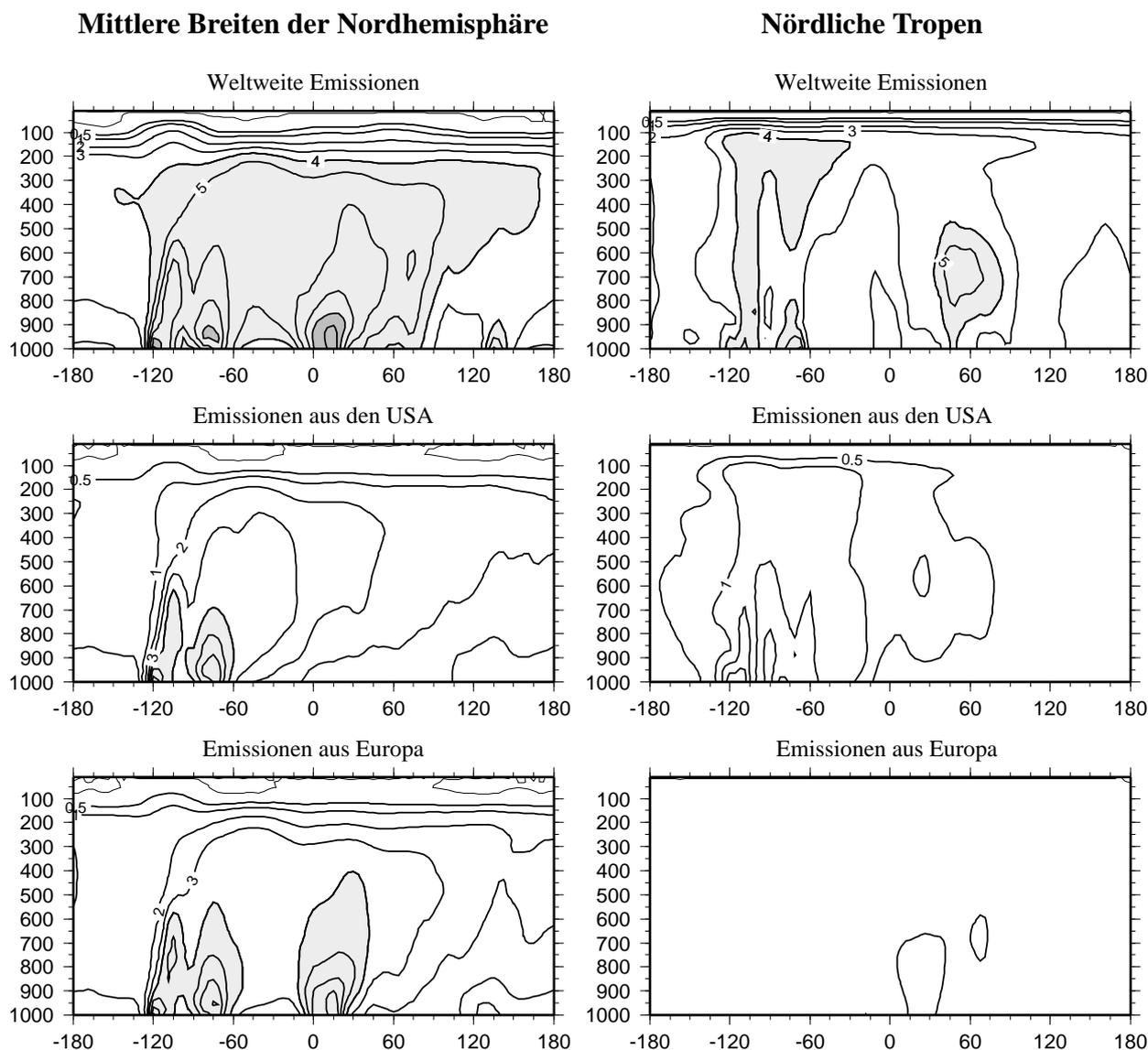


Abbildung 8.7: Meridional gemittelte **Ozonbeiträge** im Juli (in ppb) für die geographischen Breitenbereiche mittlere Breiten der Nordhemisphäre (30°N-60°N, *links*) und nördliche Tropen (0°-30°N, *rechts*) aufgetragen für die geographischen Längen; Einfluss der Emissionen des Straßenverkehrs: weltweit (*oben*), nur aus den USA (*Mitte*) und nur aus Europa (*unten*). Isolinien äquidistant mit Abstand 1 ppb, eine Linie zusätzlich bei 0.5 ppb.

ermöglicht die Ausbreitung über große Entfernungen. Es können einerseits primäre Spurengase, also solche die direkt emittiert werden (wie NO_x , CO, NMHC), als auch sekundäre Spurengase (z.B. Ozon, OH und PAN) exportiert werden. Um diesen Export zu untersuchen wird die Wirkung von regionalen Straßenverkehrsemissionen aus den USA und Europa mit Regionalexperimenten (Abschnitt 7.2) bestimmt. Für die Darstellung der Ergebnisse der Studien eignet sich eine meridionale Mittelung über zwei Breitenkreisbereiche: mittlere Breiten der Nordhemisphäre (30°N-60°N) und nördliche Tropen (0°-30°N), da die Hauptquellgebiete in nördlichen Breiten liegen. Diese Mittelung wird in einem Meridionalschnitt dargestellt (Abbildung 8.7).

Wie bereits durch den starken Gradienten der relativen Beiträge der Stickoxidemissionen im Juli vor der Ostküste der USA gezeigt (Abbildung 8.3), können Stickoxide insbesondere in den Sommermonaten v.a. in der PBL nur über kurze Strecken transportiert, da sie auf Grund der starken Sonneneinstrahlung und der Umwandlung in wasserlösliche Spezies eine geringe Lebensdauer besitzen. So findet auch in der freien Troposphäre nur ein schwacher Ferntransport der Stickoxide statt (Abbildung 8.7). Der absolute Beitrag des Straßenverkehrs zum NO_x -Mischungsverhältnis fällt in der Grenzschicht vor der Ostküste der USA auf einer Strecke von 1000 Kilometern um mehr als eine Größenordnung (*nicht gezeigt*).

Stickoxide liefern insbesondere in den Quellregionen - mittlere Breiten - Beiträge zwischen 4 und 32 Prozent. Mit zunehmender Höhe und wachsender Entfernung von den Quellgebieten nehmen die relativen Beiträge auf Grund der geringen Lebensdauer von NO_x deutlich ab (Abbildung 8.6). In der freien Troposphäre über den USA trägt der Straßenverkehr der USA zwischen 8 und 16 Prozent zur atmosphärischen Stickoxidverteilung bei. In der freien Troposphäre über Europa hingegen tragen Emissionen aus den USA weniger als 4 Prozent zur Stickoxidverteilung bei (Abbildung 8.6). Europa liefert dort einen Beitrag von mehr als 16 Prozent.

Trotz der geringen Lebensdauer von NO_x weist der Straßenverkehr in Europa einen Beitrag zur Stickoxidverteilung im Pazifik von über 4 Prozent auf. Ebenso fallen bei den Beiträgen des Straßenverkehrs der USA in den nördlichen Tropen hohe relative Beiträge in Bodennähe - östlich von 60°W - zur Stickoxidverteilung auf. In diesen Nicht-Quellregionen verursachen die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs im Juli relative Beiträge zur Stickoxidverteilung von mehr als 24 Prozent. Diese Stickoxide werden nicht direkt transportiert, sondern über die temporäre Reservoirspezies PAN indirekt transportiert. Wie in den Einzelgasstudien gezeigt wird - Abbildung 8.23 - bewirken die NMHC-Emissionen die Bildung von PAN und ermöglichen so den Transport der Stickoxide in der freien Troposphäre bei geringen Temperaturen. In den Luftmassen aus den USA im Nordatlantik zeigen sich auch hohe Beiträge (mehr als 1 ppb) zu Ozon (Abbildung 8.7). Hierdurch findet in diesen Regionen durch den Straßenverkehr in Bodennähe keine Netto-Ozonproduktion (*nicht gezeigt*) statt, da der Brutto-Ozonverlust - der proportional zur Ozonkonzentration ist - gegenüber der Brutto-Produktion überwiegt. Jedoch findet in der freien Troposphäre (700 hPa, *nicht gezeigt*) Netto-Ozonbildung im Nordatlantik (maximal $3 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$), an der Westküste der USA und regional in arktischen Breiten (Alaska) statt. Mit dem gleichen Mechanismus (PAN) werden Stickoxide aus Europa mit geringen Beiträgen von 1 % transportiert. In der Mittelmeerregion tragen sie auf Grund der hohen solaren Einstrahlung erneut zur Ozonproduktion bei. Es kommt zu einer Netto-Ozonproduktion (in 700 hPa) auf Grund der Straßenverkehrsemissionen in Europa in der Region des östlichen Mittelmeers, in Vorderasien, an der Pazifikküste der USA und in der Arktis. Diese Regionen der Ozonproduktion stimmen mit den Regionen überein, in denen der Straßenverkehr aus Europa Beiträge von mehr als 1 % zur Stickoxidverteilung aufweist. Ebenso verursachen die USA dort einen Einfluss in der selben Stärke - etwa 1 %.

Diese Transportwege wurden ebenfalls bei Simulationen mit einem Chemie-Transport-Modell gezeigt. *Stohl et al.* [2002] zeigen für den arktischen Winter, dass europäische Emissionen in polare Regionen transportiert werden und dort zum 'arctic haze' beitragen. Dies kann als Indiz für diesen Transportweg im Sommer gewertet werden. Weiterhin zeigen *Stohl et al.* [2002] für eine ausgewählte meteorologische Situation den Transport von CO-reichen Luftmassen im Juli in ei-

nem zyklonalen System - WCB (engl. *Warm-Conveyor-Belts*) - von der Ostküste der USA bis nach Europa. In dem untersuchten Zeitraum sanken die Luftmassen über dem Mittelmeer ab, wo sich diese Luftmassen mit den Luftmassen aus Europa mischten.

Wie die Regionalstudien zeigen, sind die USA und Europa in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre zu einem wesentlichen Anteil an der Wirkung der Straßenverkehrsemissionen beteiligt. In der freien Troposphäre über dem Atlantik trägt der gesamte Straßenverkehr mehr als 5 ppb zu Ozon bei. Hiervon haben mehr als 2 ppb ihren Ursprung in den USA. Weiterhin finden sich in der gesamten freien Troposphäre östlich von Greenwich Beiträge des Straßenverkehrs in den USA von mehr als 1 ppb. Dies entspricht relativen Beiträgen zwischen 1 und 2 Prozent. Europa trägt in mittleren Breiten über dem Nordatlantik mehr als 0.5 ppb zur Ozonverteilung bei. Der Straßenverkehr in Europa und den USA zusammen verursacht also etwa 3 ppb, etwa 60 % der Gesamtwirkung. Dieser Ferntransport der Wirkung von regionalen Straßenverkehrsemissionen auf Ozon verdeutlicht die globale Wirkung der regionalen Straßenverkehrsemissionen. Dennoch zeigt sich, dass alleine der Straßenverkehr in den USA und Europa nicht die gesamte Wirkung des Straßenverkehrs beschreiben. Zusätzliche Regionen - vermutlich in Asien - tragen ebenfalls wesentlich zur Wirkung des Straßenverkehrs auf globaler Skala bei.

In den nördlichen Tropen ist die starke Konvektion innerhalb der Hadley-Zellen zu erkennen. Luftmassen, die in Folge der Straßenverkehrs mit bis zu 4 ppb Ozon angereichert sind, werden bis in eine Höhe von mehr als 11 Kilometern transportiert. Hiervon stammt etwa 1 ppb aus den USA mit regionalem Ursprung sowohl an der West- als auch an der Ostküste.

8.1.3 Photochemische Ozonproduktion durch den Straßenverkehr

Die Änderung der Netto-Ozonproduktionsrate ist in Abbildung 8.8 gemeinsam mit der Änderung der Brutto-Ozonproduktions- und -abbauraten und der Änderung des HO_2 dargestellt. Das Vorzeichen der Netto-Ozonproduktion gibt an, in welchen Gebieten der Atmosphäre Ozonproduktion (positives Vorzeichen) und in welchen Gebieten Ozonabbau (negatives Vorzeichen) überwiegt. Global und im langjährigen Mittel müssen sich Ozonproduktion und -abbau ausgleichen, da das Modell einen Gleichgewichtszustand simuliert. Weiterhin müssen sich im globalen Mittel Abbau und Produktion ausgleichen, da sonst kein neuer Gleichgewichtszustand erreicht wäre.

Der Straßenverkehr bewirkt im zonalen Mittel eine maximale Netto-Ozonproduktion in Bodennähe. In der freien Troposphäre führt der Straßenverkehr zu einem Netto-Ozonabbau in tropischen und hohen Breiten und einer Netto-Ozonproduktion in mittleren Breiten. In der oberen Troposphäre schließlich führt der Straßenverkehr zu einer Netto-Ozonproduktion in mittleren Breiten und polaren Breiten der Nordhemisphäre. Aufschluss über die Entstehung dieser Zu- und Abnahmen der Netto-Ozonproduktion geben jeweils die Änderungen der NO_x - und HO_2 -Konzentration sowie der Brutto-Ozonproduktions- und -abbauraten. Die Bruttoraten sind etwa eine Größenordnung größer als die Nettoraten und nehmen in Folge des Straßenverkehrs in der gesamten Troposphäre (außer in den Regionen des Polarwinters) zu. Die Wirkung des Straßenverkehrs in diesen vier Regionen der Troposphäre - Bodennähe, freie Troposphäre (tropisch und polar), freie Troposphäre in mittleren Breiten und obere Troposphäre (der Nordhemisphäre) - wird im Folgenden erläutert.

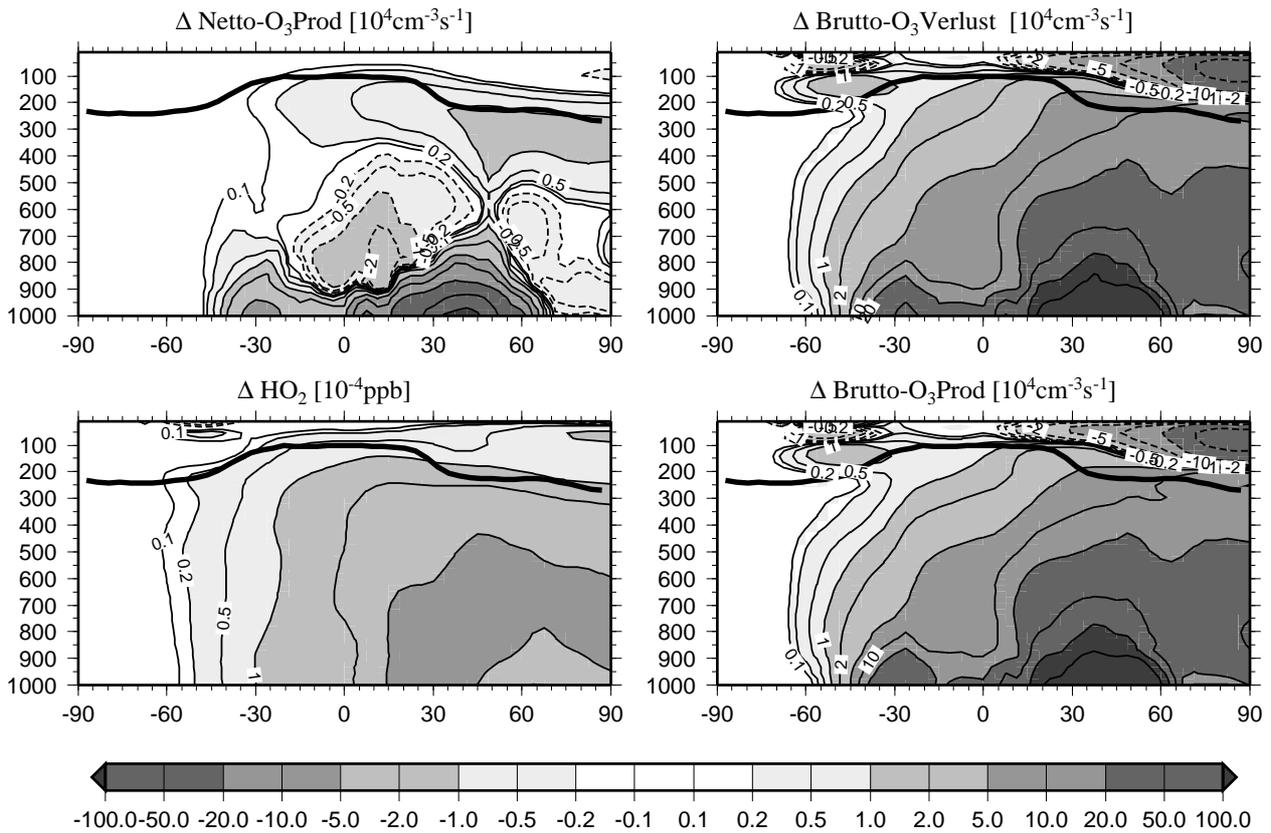


Abbildung 8.8: Absoluter Beitrag der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs zu den zonal gemittelten Verteilungen der **Netto-Ozonproduktion**, des **HO_2 -Radikals**, der **Brutto-Ozonproduktion** und des **Brutto-Ozonabbaus** im Juli.

Die Regionen maximaler Änderung der Netto-Ozonproduktion durch den Straßenverkehr befinden sich in Bodennähe der Quell- und Abluftgebieten (Abbildung 8.8). Im zonalen Mittel wird in der planetaren Grenzschicht im Juli in den Breiten 40°S bis 70°N ein Beitrag von mehr als $10 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$ und in 35°N bis 45°N ein Beitrag von mehr als $100 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$ berechnet. In den horizontalen Verteilungen zeigt sich, dass diese Netto-Ozonproduktion in den USA, in Europa, über der Arabischen Halbinsel und im asiatischen Raum (Japan) stattfindet (*nicht gezeigt*). Da in der Kontrollsimulation in diesen Breiten ebenfalls eine Netto-Ozonproduktion gegeben ist, bewirkt der Straßenverkehr eine Verstärkung des dort beobachteten Effekts. In den bodennahen Schichten mit Netto-Ozonproduktion weisen auch die NO_x - und HO_2 -Verteilung eine deutliche Zunahme auf. Die Stickoxide nehmen durch den Straßenverkehr um mehr als 30 Prozent zu (Abbildung 8.1), dies entspricht mehr als 100 ppt (Abbildung 8.2). HO_2 nimmt relativ um 3 bis 10 Prozent zu (Abbildung 8.8), absolut um $2 \cdot 10^{-4}$ bis $10 \cdot 10^{-4} \text{ ppb}$ (*nicht gezeigt*). Maximale Zunahmen der bodennahen NO_x - und HO_2 -Konzentration werden in 30°N berechnet. Dort ist auch der maximale Beitrag des Straßenverkehrs zur Netto-Ozonproduktionsrate zu beobachten. Eine Zunahme der Stickoxide erhöht die Brutto-Ozonproduktion. Die HO_x -Zunahme verstärkt die Umwandlung von NO in NO_2 , ohne dass dabei Ozon verbraucht wird, und stellt somit auch eine Quelle für Ozon dar (Reaktion 2.4). Als Folge der erhöhten Ozonkonzentration (Abbildung 8.2) erhöht sich gleich-

zeitig der Brutto-Ozonverlust (Abbildung 8.8). Netto wird jedoch in Bodennähe (und der freien Troposphäre) in mittleren nördlichen Breiten Ozon gebildet, da die Brutto-Produktion stärker zunimmt als der Brutto-Verlust. Somit handelt es sich hier um einen direkten - die Verhältnisse der Kontrollsimulation verstärkenden - Effekt.

In der freien Troposphäre der tropischen und der hohen Breiten kommt es insgesamt zu einem Ozonabbau durch den Straßenverkehr kommt. Auch in der Kontrollsimulation wird dort insgesamt Ozon abgebaut. In dieser Höhe nimmt die Brutto-Ozonabbaurate - auf Grund der erhöhten Ozonkonzentration - stärker zu, als die Brutto-Ozonproduktionsrate, in Folge der höheren NO_x - und HO_2 -Konzentration zunimmt. Die Brutto-Raten werden durch den Straßenverkehr um etwa 20 bis $50 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^{-3} \text{ s}$ erhöht. Da die Brutto-Ozonabbaurate direkt von der Ozonkonzentration abhängt, Die durch den Straßenverkehr erhöhte Ozonkonzentrationen durch den Straßenverkehr erhöhte Konzentrationen zu einer Zunahme des Brutto-Ozonabbaus (sekundärer Effekt). Da in der Kontrollsimulation hier ebenfalls ein Netto-Ozonabbau beobachtet wird, verstärkt der Straßenverkehr auch in der freien Troposphäre der tropischen und hohen Breiten den Effekt der in der Kontrollsimulation berechnet wird (direkter Effekt).

In mittleren Breiten der Nordhemisphäre bewirkt der Straßenverkehr in der freien Troposphäre im zonalen Mittel eine Netto-Ozonproduktion. Da dies Regionen sind, in denen in der Kontrollsimulation im zonalen Mittel Ozon abgebaut wird (d.h. negative Netto-Ozonproduktion), bewirkt hier der Straßenverkehr eine Abschwächung des im zonalen Mittel beobachteten Netto-Ozonabbaus. In diese Region werden die chemisch aktiven Luftmassen aus den Quellgebieten exportiert und so zeigt sich in der horizontalen Verteilung zeigt sich, dass es in den Breiten der Quellregionen (etwa 50°N) sowohl zu Netto-Ozonproduktion, als auch zu Netto-Ozonabbau kommt (*nicht gezeigt*). In der zonalen Mittelung überwiegen schließlich die Gebiete der Ozonproduktion durch den Straßenverkehr.

Schließlich ist in der oberen Troposphäre ebenfalls eine Zunahme der Netto-Ozonproduktionsrate durch den Straßenverkehr zu verzeichnen. Es handelt sich hierbei um einen direkten Effekt des Straßenverkehrs, da auch in der Kontrollsimulation ab etwa 500 hPa Ozon produziert wird (positive Netto-Ozonproduktionsrate). Im Bereich zwischen 250 und 400 hPa nördlich von 35°N wird ein relativer Beitrag des Straßenverkehrs zu der Netto-Ozonproduktion von mehr als $10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}^{-1}$ (bei etwa 60°N) berechnet. In der oberen Troposphäre ist eine deutliche Zunahme der Stickoxide (um mehr als 12 %) und des HO_2 (um mehr als $1.5 \cdot 10^{-4}$ ppb, Abbildung) zu verzeichnen. Eine Zunahme dieser beiden Spezies bewirkt, wie oben beschrieben, einen Anstieg der Brutto-Ozonproduktionsrate. Gleichzeitig nimmt Ozon nur um etwa 6 % zu (Abbildung 8.2), wodurch die Brutto-Ozonverlustrate schwächer ansteigt als die Brutto-Produktionsrate (Abbildung 8.8). Der Straßenverkehr verstärkt also die in der Kontrollsimulation beobachtete Ozonproduktion (direkter Effekt).

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass der Straßenverkehr in drei der vier Regionen aufgrund der höheren HO_2 - und Stickoxidkonzentrationen eine Zunahme der Netto-Ozonproduktion bewirkt. In der freien Troposphäre über den Quellgebieten wird hierbei im zonalen Mittel ein indirekter Effekt - der Wirkung in der Kontrollsimulation entgegengesetzt - nämlich eine Netto-Ozonproduktion, simuliert. Zusätzlich wird in der freien Troposphäre ein sekundärer, direkter Effekt berechnet: Auf Grund der erhöhten Ozonkonzentration kommt es zu einem verstärkten Ozon-

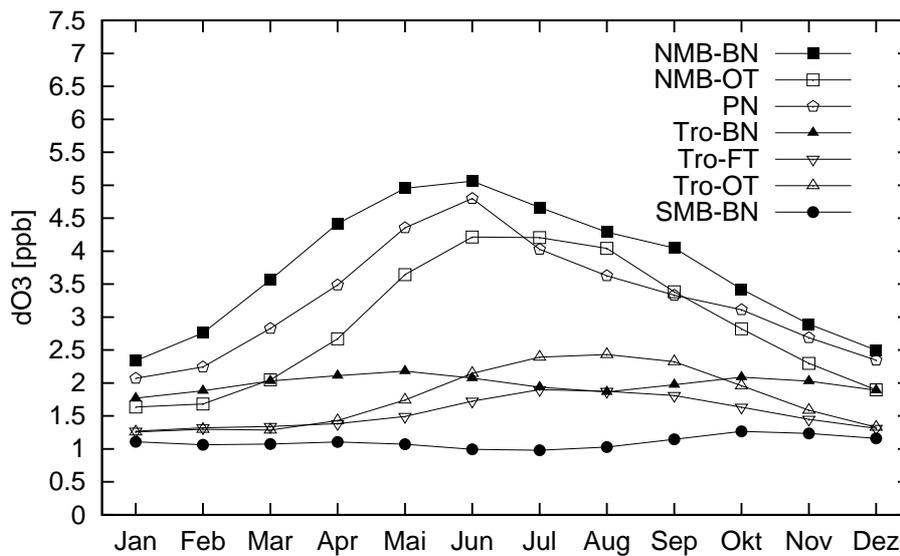


Abbildung 8.9: Mittlere Ozonzunahme durch den Straßenverkehr in einzelnen Regionen der Atmosphäre im Verlauf eines Jahres in ppb. BN = Bodennähe, FT = Freie Troposphäre, OT = Obere Troposphäre, MB = Mittlere Breiten, TR = Tropen, PN = Polar-Nord.

abbau, der gegenüber der Ozonproduktion durch die Emissionen dominiert (sekundärer Effekt). Dieser Ozonabbau wird auch in der Kontrollsimulation in dieser Region berechnet (direkter Effekt).

8.1.4 Wirkung der Emissionen im Jahresverlauf

Um die Wirkung der Straßenverkehrsemissionen im Laufe des Jahres zu zeigen, wurden zunächst charakteristische Regionen definiert. Diese Regionen ermöglichen es, den regional unterschiedlichen chemischen Mechanismen Rechnung zu tragen. Grundlage für die Definition dieser Regionen ist das Zonalmittel der beobachteten Netto-Ozonproduktion. Es werden acht charakteristische Regionen der Troposphäre in Tabelle B.17 definiert. In Bodennähe werden an Hand der geographischen Breite drei Regionen unterschieden: nördliche mittlere Breiten (NMB-BN), tropische Breiten (TR-BN) und südliche mittlere Breiten (SMB-BN). Die obere Troposphäre wird unterteilt in die tropischen Breiten und die Extratropen (TR-OT, N-OT, S-OT). Zusätzlich wird die freie Troposphäre in tropischen Breiten (TR-FT) und die arktische Troposphäre (PN) analysiert. Wesentliche Größen wie die Ozon-, PAN-, HO₂- und OH-Änderungen werden anschließend für die so definierten charakteristischen Gebiete der Atmosphäre im Jahresverlauf dargestellt. Der Beitrag des Straßenverkehrs wird in Verbindung mit dem Jahresgang der Größen im Kontrolllauf diskutiert.

In mittleren Breiten der Nordhemisphäre (NMB-BN) zeigt sich im Jahresverlauf der Ozonzunahmen deutlich die durch anthropogene Aktivitäten stark direkt beeinflusste bodennahe Schicht (Abbildung 8.9). Dort werden maximale Beiträge des Straßenverkehrs zur Ozonkonzentration mit 5 ppb im Mai und Juni berechnet. Dieses Maximum tritt gleichzeitig auf mit dem Maximum der dort berechneten mittleren Gesamtozonverteilung (35 ppb) auf. Die maximale Netto-Ozonproduktion (Abbildung 8.10) wird in NMB-BN erst im Juli erreicht, also einen Monat später

als die maximale Ozonzunahme. Dies bedeutet, dass nicht alleine die photochemische Netto-Ozonproduktion das Maximum bestimmt, sondern auch dynamische Effekte, wie beispielsweise ein verstärkter Export aus bodennahen Schichten. Die Produktionsrate in der Bodenschicht der nordhemisphärischen Extratropen ist im Juli mit etwa $35 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$ sieben mal so groß wie im Januar. Eine Zunahme der Netto-Ozonproduktion durch den Straßenverkehr über $5 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$ wird nur in Bodennähe berechnet. In der nördlichen oberen Troposphäre (N-OT) findet sich das Maximum des Straßenverkehrsbeitrags, mit Werten von etwa 4 ppb, einen Monat später im Juni und Juli. Diese Verzögerung des Maximums kann mit den Transportzeiten für den Export der Luftmassen, die durch den Straßenverkehr mit Ozon angereichert sind, begründet werden. Die bodennahen Schichten der südlichen Extratropen (SMB-BN) weisen eine entgegengesetzte Saisonalität auf - mit einem Minimum im Juli und August und einem Maximum im Dezember und Januar. Den gleichen Verlauf weist die Netto-Ozonproduktion durch den Straßenverkehr in dieser Region auf. Dies zeigt den entscheidenden Einfluss des Sonnenstandes in Bodennähe, da die Maxima zeitgleich mit den Sonnenhöchstständen auftreten. Die absoluten Ozonbeiträge durch den Straßenverkehr sind in SMB-BN mit maximal 1.25 ppb etwa viermal kleiner als in NMB-BN. Die gemittelten, gesamten Ozonkonzentrationen hingegen sind maximal im Juli und August mit 25 ppb (*nicht gezeigt*). Die gesamte Ozonkonzentration wird in SMB-BN im Jahresverlauf folglich durch andere Emissionsquellen als den Straßenverkehr dominiert. In den Tropen findet sich in Bodennähe (TR-BN) zwei Maxima (Mai und Oktober). Entsprechend liegen in den SMB-BN und TR-BN die Netto-Ozonproduktionsraten (Abbildung 8.10) deutlich niedriger: in den Tropen bei etwa $8 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$ und in Bodennähe der Südhemisphäre zwischen 3 und $7 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$.

Die freie und obere Troposphäre der Tropen (TR-FT, TR-OT) weist bei den Ozonzunahmen (Abbildung 8.9) dagegen einen anderen Jahresverlauf auf als die bodennahen Schichten. In beiden Regionen zeigen sich maximale Ozonzunahmen im Juli/August, die nicht alleine durch den Sonnenstand beeinflusst werden. Im Jahresverlauf der Netto-Ozonproduktion zeigt sich (Abbildung 8.10), dass in dieser Region das ganze Jahr über netto Ozon abgebaut wird, mit maximalem Abbau im September. Die absoluten Beiträge zu den Netto-Ozonproduktionsraten liegen unter $2 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$. Ozon wird also in diese Region transportiert - und nicht dort gebildet - und zerfällt dort. Der maximale Abbau im September findet kurze Zeit nach dem Auftreten maximaler Konzentrationen (im August) statt. Ein Transport von Ozon aus den Quellgebieten ist in den nördlichen Tropen (Abbildung 8.6) an der Westküste der USA und über der Arabischen Halbinsel bis in die freie Troposphäre möglich: bis in 200 hPa (USA) und bis 500 hPa (Arabische Halbinsel). Dieser Transport bedingt insbesondere die beobachteten Ozonzunahmen durch den Straßenverkehr in den Regionen TR-FT und TR-OT im Nordsommer.

Die polaren Breiten der Nordhemisphäre (PN) weisen im Jahresverlauf meist eine negative Netto-Ozonproduktion auf (Abbildung 8.10). Nur im Mai und Juni zeigt sich dort eine positive Netto-Ozonproduktion, die sprunghaft auf Werte von bis zu $1.25 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$ ansteigt. Im Juli, dem Monat mit der maximalen solaren Einstrahlung nimmt die Produktionsrate stark ab und der Netto-Ozonabbau von $0.25 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$ setzt in PN wieder ein. In den Monaten Mai und Juni werden auch vergleichsweise höhere Ozonzunahme durch den Straßenverkehr berechnet. Die Ursache für diesen Effekt liegt in der Bildung der temporären Spezies PAN in den Quellregionen, wie in Abschnitt 8.1.5 gezeigt wird.

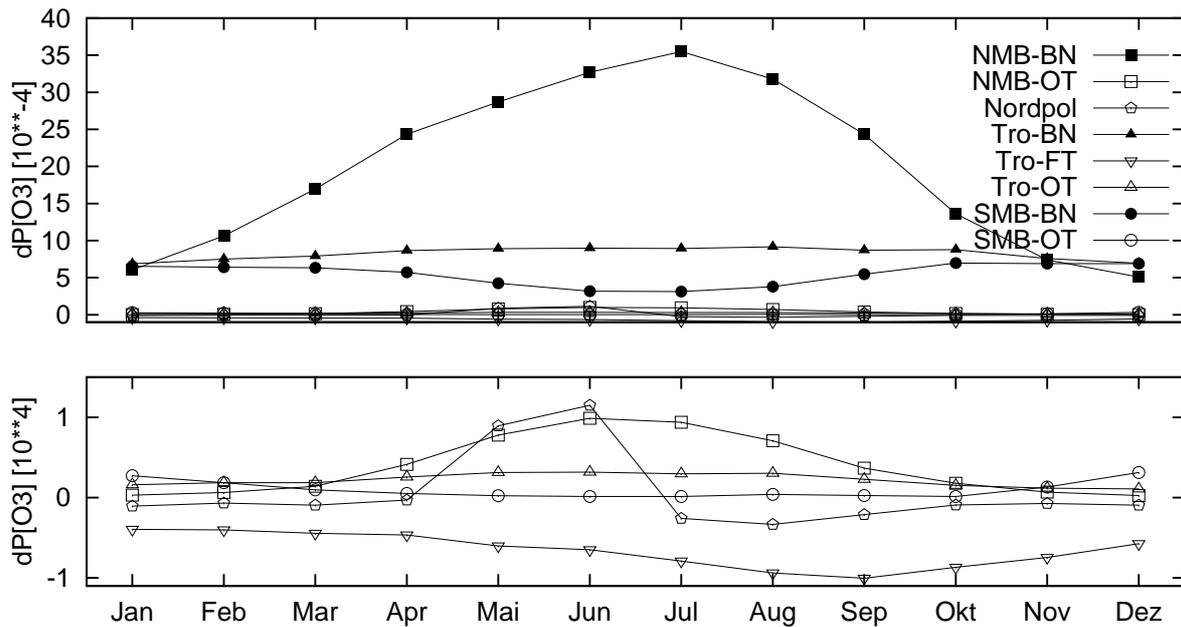


Abbildung 8.10: Mittlere **Netto-Ozonproduktion** durch den Straßenverkehr in einzelnen Regionen der Atmosphäre im Verlauf eines Jahres in 10^4 Moleküle $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$ für die BN-Regionen (oben) und die FT- und OT-Regionen (unten). Zur Verdeutlichung sind die Regionen in FT, OT und PN ein zweites Mal mit anderer Ordinate dargestellt. Die Legende der Symbole gilt für das obere und das untere Bild. Abkürzungen wie in Abbildung 8.9.

8.1.5 Rolle von PAN

Eine wesentliche Rolle in der troposphärischen Ozonchemie spielt insbesondere in den Wintermonaten die Verbindung Peroxyacetylnitrat (PAN). PAN stellt eine Reservoirspezies dar (Abschnitt 2.3), die durch die Reaktion von Stickoxiden mit Abbauprodukten der Kohlenwasserstoffoxidation entsteht. PAN ist bei niedrigen Temperaturen stabil, da der wesentliche Verlustprozess der thermische Zerfall ist. Somit kann PAN bei geringen Temperaturen über weite Strecken transportiert werden und so eine Fernwirkung des Straßenverkehrs verursachen.

Die atmosphärische Verteilung der absoluten Beiträge des Straßenverkehrs zu PAN spiegelt insbesondere die Quellregionen (photochemische Produktion) und die Regionen mit niedrigen Temperaturen (lange Lebensdauer) wider. Im zonalen Mittel werden im Januar in Bodennähe mehr als 30 ppt durch den Straßenverkehr nördlich von 25°N erreicht (Abbildung 8.11), aufgrund der photochemischen PAN-Produktion und der niedrigen Temperaturen im Nordwinter. Auch in der freien und oberen Troposphäre werden in Höhen bis 300 hPa (etwa 9 km) im zonalen Mittel nördlich von 40°N ebenfalls PAN-Werte von 30 ppt überschritten. Dies ist möglich, da PAN bei diesen geringen Temperaturen thermisch stabil ist und sich in nördlichen Nicht-Quellregionen (polare Breiten) und in großen Höhen anreichern kann. Im nordhemisphärischen Sommer (Juli) zeigt sich in geringen Höhen (bis 3 km) eine Beschränkung von PAN auf die Quellregionen (30°N bis 55°N). Erst in größeren Höhen ist durch die dort herrschenden geringeren Temperaturen eine Ausbreitung von PAN im Juli über Nicht-Quellregionen in nördliche Breiten (größer 55°N) zu verzeichnen. Insgesamt werden bis in eine Höhe von 200 hPa (etwa 11 km) absolute Beiträge des Straßenverkehrs

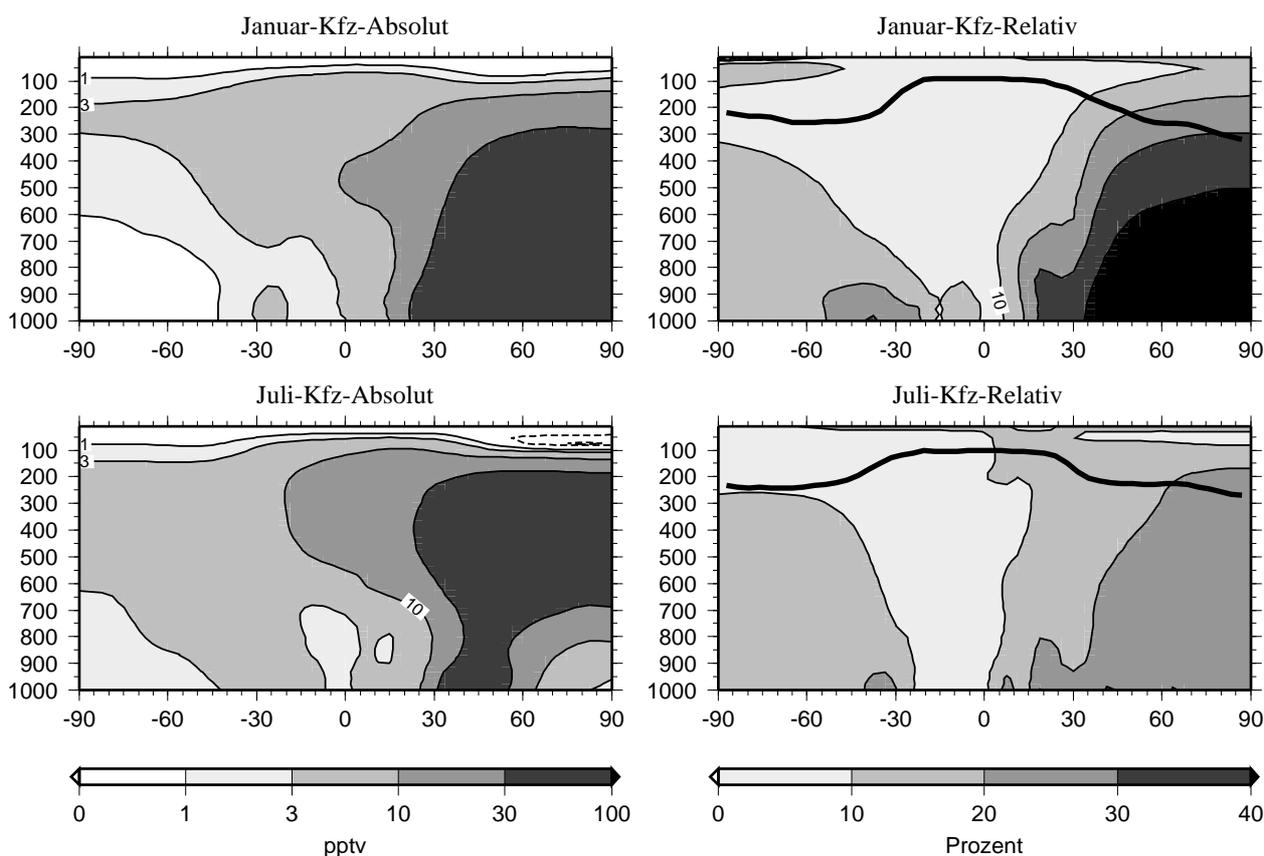


Abbildung 8.11: Absoluter und relativer Beitrag der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs in den zonal gemittelten PAN-Verteilungen (in ppt und Prozent) im Juli und im Januar.

von 30 ppt überschritten.

Die relativen Beiträge des Straßenverkehrs sind im Winter im Gegensatz zum Sommer mit mehr als 30 Prozent deutlich höher, da PAN thermisch stabil ist und sich in arktischen Breiten anreichern kann. PAN spielt in der Folge eine entscheidende Rolle bei der Ozonproduktion in arktischen Breiten die in den Monaten Mai und Juni auftritt (Abbildung 8.10). So beträgt in PN im Januar die absolute PAN-Zunahme durch den Straßenverkehr (Abbildung 8.12) bereits 45 ppt und steigt bis März auf knapp 70 ppt an. In Bodennähe der nördlichen Breiten (NMB-BN) sind mittlere Zunahmen um mehr als 70 ppt zu verzeichnen. In den folgenden Monaten - Mai bis Juli - ist eine starke Abnahme auf unter 40 ppt, am Nordpol unter 20 ppt zu verzeichnen. Minimale Werten werden im Juli und August erreicht. Ursache hierfür ist der thermische Zerfall von PAN, der aufgrund der zunehmenden Temperatur, die atmosphärische Konzentration um eine Größenordnung verringert. Dieser Zerfall des PAN führt - im Mai und Juni - zu einer Freisetzung von Stickoxiden in arktischen Breiten und bewirkt so dort eine Ozonproduktion. Die horizontale Verteilung zeigt, dass im Juli die maximalen Konzentrationen in den Quellgebieten der Nordhemisphäre mit lokal bis über 300 ppt zwar höher liegen (*nicht gezeigt*), da durch die im Nordsummer aktivere Photochemie im Vergleich zum Nordwinter mehr PAN photochemisch gebildet wird. Die zonal und regional gemittelte Konzentration von PAN liegt jedoch mit nur noch etwa 30 ppt um die Hälfte niedriger als im Januar. Ursache hierfür ist die kürzere Lebensdauer im Juli als im Januar, auf Grund der deutlich

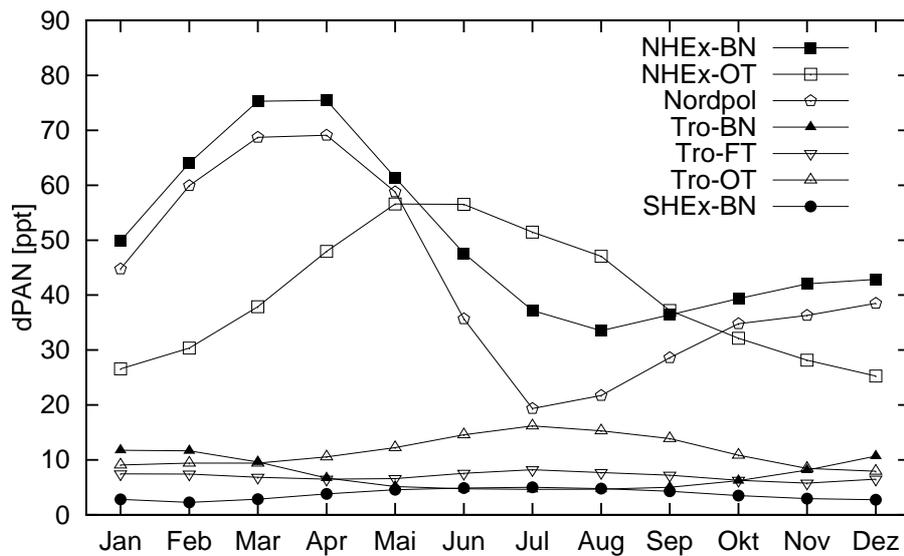


Abbildung 8.12: Mittlere PAN-Zunahme durch den Straßenverkehr in einzelnen Regionen der Atmosphäre im Verlauf eines Jahres in ppt.

höheren Temperaturen.

Die längere Lebensdauer von PAN in den Wintermonaten aufgrund der geringen Temperaturen ermöglicht also den Export aus den Quellgebieten und eine Anreicherung in der Atmosphäre. Das Maximum wird dann im März und April erreicht. Ab Mai führen die steigenden Temperaturen zu verringerten Mischungsverhältnissen, die durch vermehrten thermischen Abbau entstehen. Dieser thermische Abbau führt in den Breiten nördlich von 60°N dazu, dass NO_x freigesetzt wird und in Folge dessen die Netto-Ozonproduktion im Mai sprunghaft ansteigt und im Juni ihr Maximum erreicht (Abbildung 8.10). Im Juli hingegen, steht diese zusätzliche Quelle für Stickoxide nicht mehr zur Verfügung und die Ozonproduktion nimmt deutlich ab. Die zonal gemittelte Verteilung der relativen und absoluten Beiträge des Straßenverkehrs (Abbildungen 8.1 und 8.2) weist auf eine NO_x -Quelle in Bodennähe in arktischen Breiten hin. Im Juli findet in der Region PN insgesamt wieder ein Netto-Ozonabbau statt (wie in dieser Region auch die restlichen Monate des Jahres). Somit bewirkt der Transport der Reservoirspezies PAN, die durch den Straßenverkehr gebildet wurde, eine Netto-Ozonproduktion in hohen Breiten nördlich von 60°N während der Monate Mai und Juni.

Hohe Beiträge des Straßenverkehrs zur PAN-Verteilung zeigen sich in der nördlichen oberen Troposphäre (NMB-OT) (Abbildung 8.12) mit einem Maximum im Mai und Juni. In den Quellregionen kommt es in den Sommermonaten durch die aktive Photochemie zu einer maximalen PAN-Produktion. Durch den Export von PAN in die obere Troposphäre gelangt es in Regionen mit niedrigen Temperaturen. Es bildet sich jedoch ebenfalls kein Sommermaximum aus, da der Export von PAN aus bodennahen Schichten geschieht, in denen maximale Konzentrationen bereits im Frühling erreicht werden (NMB-BN). Die PAN-Verteilung in der oberen Troposphäre der Tropen (TR-OT) weist jedoch ein deutliches Maximum im Juli und August auf. Somit ist in diesen Höhen (obere Troposphäre) - im Gegensatz zu den bodennahen Schichten - kein verstärkter thermischer Zerfall in den Monaten Juni bis August zu verzeichnen. Das bei geringeren gemittelten Konzentra-

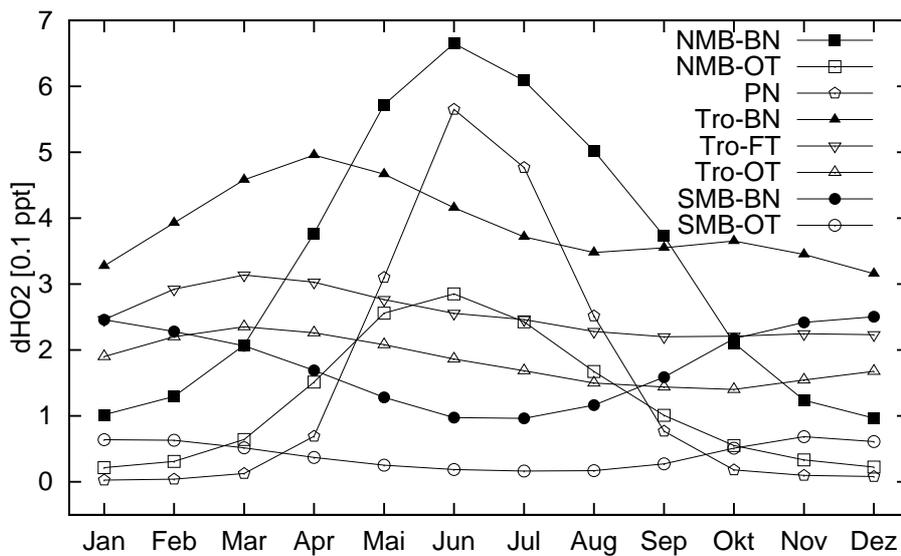


Abbildung 8.13: Mittlere Änderung des Hydroperoxyradikals durch den Straßenverkehr in einzelnen Regionen der Atmosphäre im Verlauf eines Jahres in [10^{-1} ppt].

tionen in der TR-OT verzögerte, erst im Juli auftretende Maximum kann durch PAN-Eintrag erklärt werden, analog zu den Zunahmen von Ozon (Abbildung 8.7). Mittels starker Konvektion gelangt PAN in den nördlichen Tropen insbesondere im Juli - dem Monat mit den höchsten Temperaturen in der Nordhemisphäre - in die obere Troposphäre und besitzt dort eine lange Lebensdauer.

8.1.6 Einfluss auf die troposphärische HO_x -Verteilung

Die troposphärische HO_x -Verteilung stellt die Summe aus dem Hydroxylradikal (OH) und dem Hydroperoxyradikal (HO_2) dar. Da das HO_2 -Radikal eine wesentliche Rolle bei der Ozonproduktion stellt, wurde der Beitrag des Straßenverkehrs zur atmosphärischen Verteilung des HO_2 -Radikals bereits im Zusammenhang mit den Ozonproduktionsraten im Juli dargestellt (Abbildung 8.8). Nachfolgend wird nun der Jahresverlauf der mittleren Zunahmen des Radikals in den charakteristischen Regionen gezeigt. Anschließend wird die Wirkung des Straßenverkehrs auf die sekundäre Spezies OH gezeigt.

8.1.6.1 Jahresverlauf der HO_2 -Zunahmen

Der jahreszeitliche Verlauf der Änderung der HO_2 -Konzentration ist in Abbildung 8.13 dargestellt. HO_2 - wie auch OH - kann auf Grund seiner geringen Lebensdauer kaum transportiert werden. Die Konzentration dieser Spezies wird durch die lokal ablaufenden photochemischen Reaktionen bzw. deren Gleichgewichte bestimmt. So zeigen die Jahresverläufe, dass der Beitrag des Straßenverkehrs zum Hydroxylradikal insbesondere durch den Sonnenstand beeinflusst wird. Die nördlichen Gebiete (NMB-BN, PN und NMB-OT) zeigen Sommermaxima, in der südlichen Hemisphäre (SMB-BN, SMB-OT) sind Wintermaxima zu finden und in den Tropen (TR-BN, TR-OT) zeigen sich zwei Maxima (April und Oktober) zu Sonnehöchststand. Maximale absolute Beiträge des Straßenverkehrs zum HO_2 -Radikal werden in den nördlichen Breiten im Juni berechnet, mehr

als $7 \cdot 10^{-6}$ ppb in NMB-BN. Im Winter sind die absoluten Beiträge um einen Faktor 5 geringer.

Das Hydroperoxyradikal entsteht bei der Oxidation von Kohlenwasserstoffverbindungen mit OH. Die Konzentration von OH wird wiederum durch den Sonnenstand und die Ozonkonzentration beeinflusst. Im nordhemisphärischen Sommer weisen sowohl die Ozonkonzentration als auch die solare Einstrahlung Maxima auf. Somit werden zu Sonnenhöchststand (Juni) maximale HO₂-Zunahmen durch den Straßenverkehr berechnet. Auch in den südlichen Regionen und in den Tropen zeigt sich die Bedeutung des Sonnenstandes mit entgegengesetzter Saisonalität.

Ein grundlegender Unterschied zwischen Ozon und HO₂ zeigt sich in der freien Troposphäre der tropischen Breiten (TR-FT). Bei Ozon zeigte sich in dieser Region der gleiche Jahresgang wie in Bodennähe der nördlichen Breiten, was auf den Transport von ozonreichen Luftmassen aus nördlichen mittleren Breiten in die freie Troposphäre der tropischen Breiten als dominanten Einfluss hindeutete. Bei HO₂ ist jedoch kein Transport möglich - zeigt der Jahresgang dort den gleichen Verlauf wie in Bodennähe der tropischen Breiten (TR-BN). Dies zeigt, dass der Einfluss des Sonnenstands den Beitrag zum HO₂-Radikal und damit die lokal ablaufende Photochemie dominiert und macht erneut deutlich, dass Beiträge zum HO₂-Radikal nicht über weite Strecken transportiert werden können, während dies bei Ozon möglich ist.

8.1.6.2 Einfluss auf das Hydroxylradikal (OH)

Wie in den Grundlagen dargestellt, ist die Konzentration des OH-Radikals bestimmend für die Selbstreinigungskraft der Atmosphäre (Abschnitt 2.3). Der Straßenverkehr führt im Januar in der Nordhemisphäre zu einer Abnahme der OH-Konzentration um mehr als $2 \cdot 10^{-6}$ ppb (relativ um 3 bis 10 Prozent) in den Breiten 10°N bis 35°N von der planetaren Grenzschicht bis in die freie Troposphäre (500 hPa). Durch die starke zonale Abhängigkeit der OH-Konzentration, mit einem Maximum in tropischen Breiten, wird die maximale relative Abnahme um mehr als 10 Prozent in höheren Breiten berechnet. Zusätzlich nehmen die Beiträge des Straßenverkehrs zur OH-Verteilung mit zunehmender Höhe tendenziell ab, da in der wesentlichen Bildungsreaktion (2.13) Wasserdampf benötigt wird. Die Konzentration von Wasserdampf fällt in der Atmosphäre mit der Höhe exponentiell ab (Abschnitt 2.1). In den Einzelgasstudien zeigt sich (Abschnitt 8.2.7), dass sich diese insgesamt berechnete Abnahme als Summe der Wirkung der emittierten Spurengase des Straßenverkehrs ergibt (Abbildung 8.26). Diese Abnahme von OH wird durch die Wirkung der CO- und NMHC-Emissionen dominiert, die eine starke Senke für OH darstellen (Reaktionen (2.14) und (2.16)). Sie führen insbesondere auf Grund des Transports in Nicht-Quellregionen über den Ozeanen zu einem Abbau von OH in den nördlichen Tropen.

Im Juli hingegen führen die Straßenverkehrsemissionen in der Nordhemisphäre nun zu einem positiven Beitrag von bis zu $8 \cdot 10^{-6}$ ppb. Der relative Beitrag beträgt dort 1 bis maximal 13 Prozent (am Boden). Die maximalen zonal gemittelten - absoluten und relativen - Beiträge werden in der Grenzschicht der nördlichen Breiten bei 25°N (entsprechend gut 10 Prozent) erreicht. Bis in eine Höhe von 700 hPa (etwa 3 km) werden im Juli in nördlichen polaren Breiten relative Zunahmen zwischen 2 und 10 Prozent erreicht. Hier zeigen die Einzelgasstudien (Abschnitt 8.2.7), dass die Wirkung der Stickoxidemissionen das Vorzeichen der OH-Änderung bestimmt. Die Stickoxide führen insbesondere in den Quellregionen auf Grund der Ozonzunahme zu einer verstärkten OH-

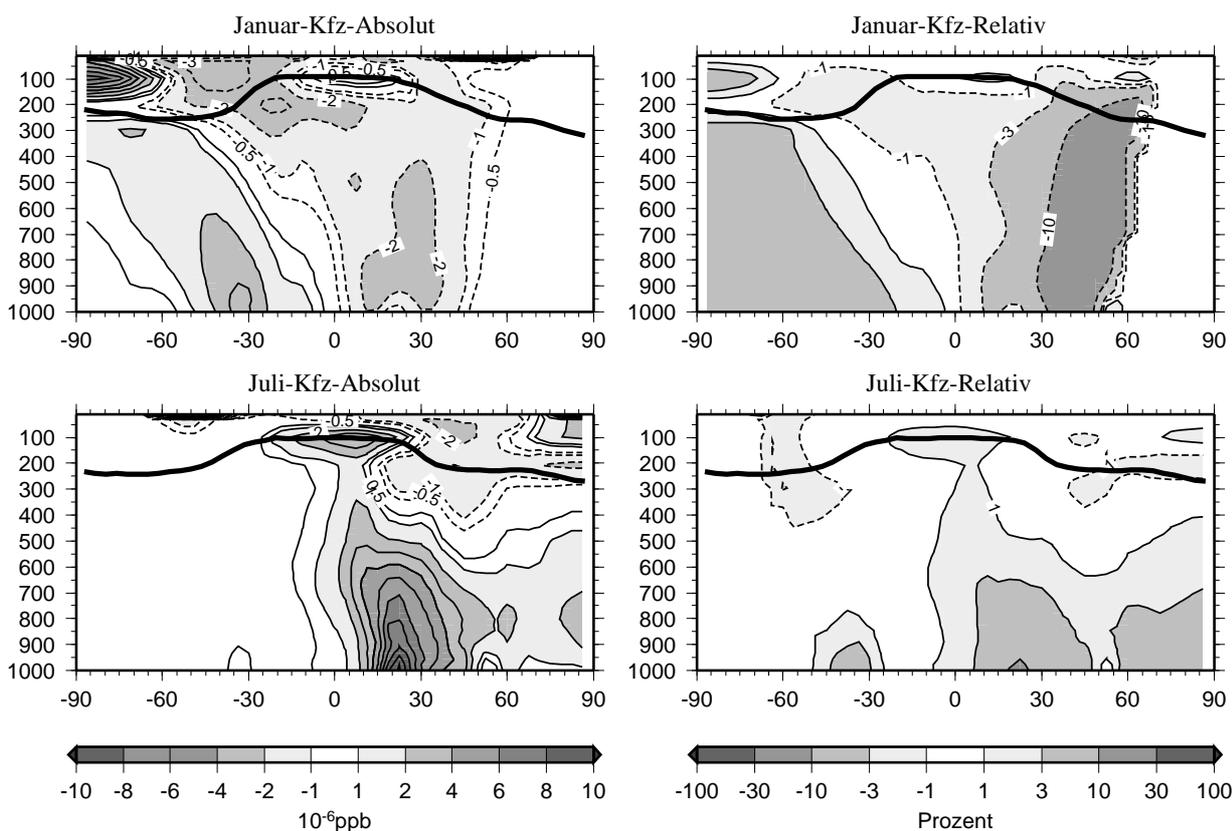


Abbildung 8.14: Beitrag der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs zu der zonal gemittelten **OH-Verteilung** in (10^{-6} ppb) und (in %) im Januar (*oben*) und Juli (*unten*). In den relativen Verteilungen sind nur Werte für Gebiete mit absoluten Beiträgen von mehr als 10^{-6} ppb gezeigt.

Produktion mittels Reaktion (2.13).

In der Südhemisphäre hingegen findet im Januar durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs eine Zunahme von OH statt, und nicht wie in der Nordhemisphäre eine Abnahme. Hier zeigt sich ebenfalls in den Einzelgasstudien (Abschnitt 8.2.7), dass die Wirkung der Stickoxidemissionen - die in den Quellregionen zu einer Erhöhung der OH-Konzentration beitragen - dominiert. Im Januar wird im zonalen Mittel ein positiver Beitrag von bis zu $3 \cdot 10^{-6}$ ppb zu der OH-Konzentration berechnet. In der geographischen Verteilung zeigen sich sowohl hohe positive als auch hohe negative Beiträge von mehr als $10 \cdot 10^{-6}$ ppb Zunahme jedoch auch mehr als $4 \cdot 10^{-6}$ ppb Abnahme. Auch dies ist eine Folge der summierten Wirkung der einzelnen Spurengasemissionen (Abschnitt 8.2.7). Dominieren die Stickoxidemissionen, wie beispielsweise im Januar (*nicht gezeigt*) an der Küste von Südamerika, Afrika (hier v.a. Südafrika), Südostasien und Australien, so wird OH erhöht. Überwiegt hingegen die Wirkung der NMHC- und CO-Emissionen, wie beispielsweise über den Ozeanen der nördlichen Tropen, so wird OH verringert.

Der Jahresverlauf des Einflusses des Straßenverkehrs auf die Mischungsverhältnisse des Hydroxylradikals zeigt deutlich, wie je nach Jahreszeit eine Zunahme oder Abnahme stattfindet (Abbildung 8.15). Ursache hierfür ist erneut die unterschiedliche Wirkung der einzelnen emittierten Spurengase. So findet in allen gezeigten Regionen - außer in der SMB-BN - im Laufe eines Jah-

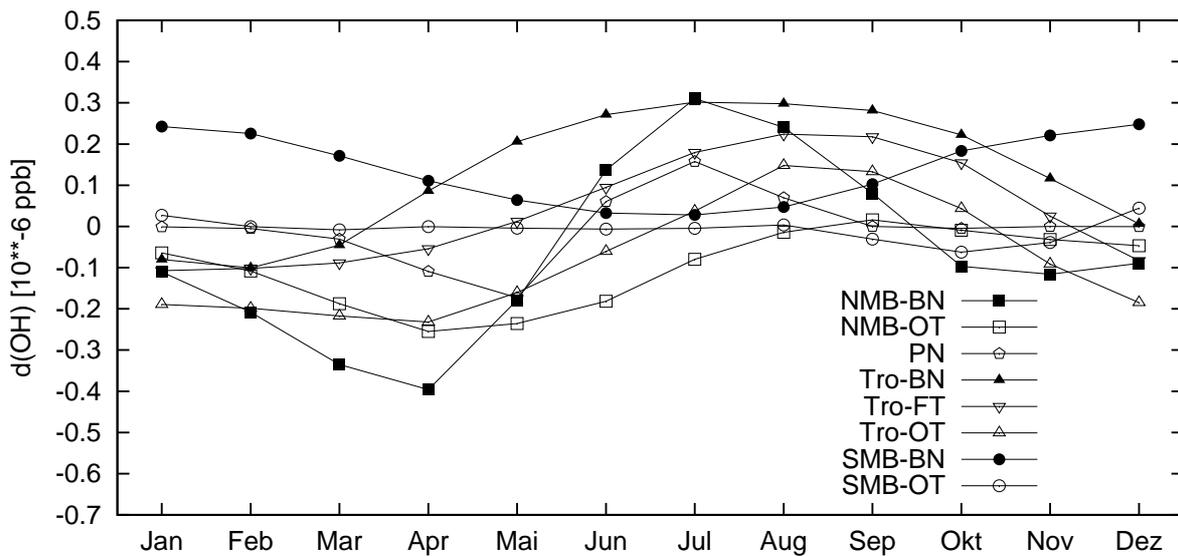


Abbildung 8.15: Mittlere Änderung des Hydroxylradikals durch den Straßenverkehr in einzelnen Regionen der Atmosphäre im Verlauf eines Jahres in $[10^{-3}$ ppb].

res sowohl OH-Zunahmen als auch OH-Abnahmen statt. In den nördlichen Breiten in Bodennähe (NMB-BN) findet in den Monaten Oktober bis Mai eine Abnahme von OH statt, in den Monaten Juni bis September jedoch eine OH-Zunahme. Die maximale Abnahme von OH wird im April berechnet und die maximale Zunahme im Juli. Bis in den Mai bewirken die Gesamtemissionen eine Abnahme der OH-Konzentration, da NMHC und CO als Senke für OH wirken. Ab Juni ist die Wirkung der Stickoxide in der Region NMB-BN stärker als die Wirkung der NMHCs und CO und es kommt durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs zu einer Zunahme von Ozon, da die Stickoxide eine Quelle für OH darstellen.

Wie bereits eingangs erwähnt, beeinflusst die Änderung die Hydroxylradikalkonzentration durch den Straßenverkehr den photochemischen Abbau auch von strahlungswirksamen Gasen, wie Methan. Die sich daraus ergebende indirekte Klimawirksamkeit der Straßenverkehrsemissionen wird in Abschnitt 8.5 diskutiert.

8.2 Wirkung der einzelnen Spurengasemissionen

Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, dass die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs das troposphärische Ozon um bis zu 16 Prozent erhöhen. Um den Einfluss einzelner, emittierter Spezies zu bestimmen, wurden Einzelgasstudien durchgeführt. Hierzu wurden Szenariosimulationen durchgeführt, in denen die Emissionen jeweils einer Spurengasspezies abgeschaltet wurde. Die Differenz der Szenariosimulation und der Kontrollsimulation (siehe Abschnitt 7.2) spiegelt den Einfluss der jeweils betrachteten Spurengaskomponente wieder. In dieser Arbeit wurde die Wirkung der Straßenverkehrsemissionen von Stickoxiden, Kohlenmonoxid und der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe bestimmt. Die Unsicherheit der auf diese Weise bestimmten Wirkung der einzelnen Gase wird am Ende dieses Abschnitts mit Hilfe einer Linearitätsbetrachtung diskutiert. Hierzu wird für die Wirkung auf die sekundären Spezies, OH und Ozon, überprüft inwiefern die

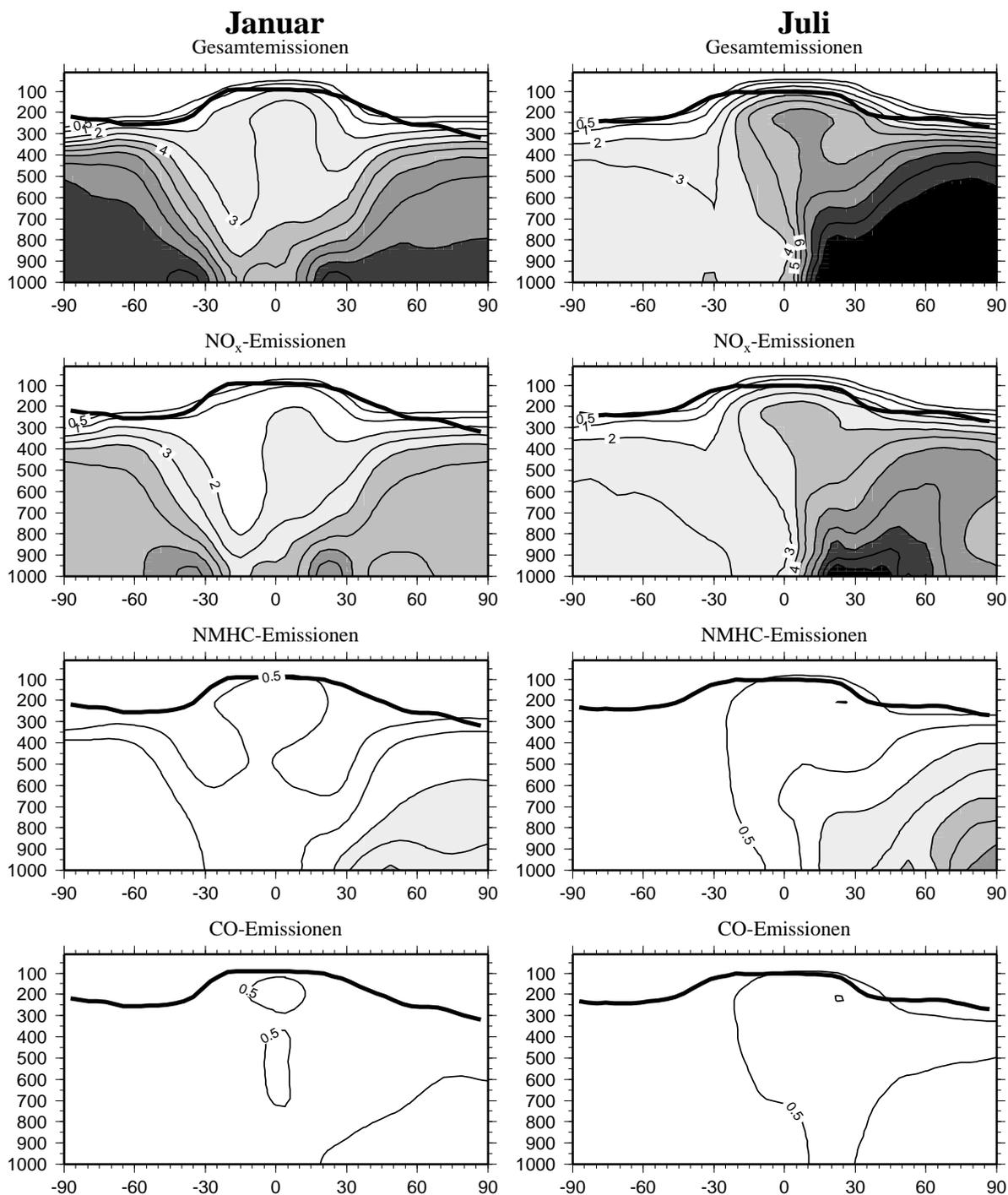


Abbildung 8.16: Einfluss der Emissionen des Straßenverkehrs aus den Einzelgasstudien in der zonal gemittelten **Ozonverteilung** (Monatsmittel) in Prozent im Januar (*links*) und Juli (*rechts*) durch die Stickoxid- (*oben*), durch die NMHC- (*Mitte*) und die CO-Emissionen (*unten*). Isolinien äquidistant mit Abstand 1 und einer zusätzlichen Linie bei 0.5. Die Lage der Tropopause ist mit einer fett gedruckten Linie markiert.

Summe der Wirkung der einzelnen Gase der Wirkung der Gesamtemissionen entspricht.

8.2.1 Vergleich der Wirkung auf Ozon

Die Änderungen (Abbildung 8.2) der zonal gemittelten Ozonverteilungen durch die verschiedenen Komponenten (NO_x , NMHC und CO) der Straßenverkehrsemissionen unterscheiden sich sowohl in der Stärke als auch in der geographischen Verteilung. Die Stickoxidemissionen bewirken im zonalen Mittel in Bodennähe relative Beiträge von mehr als 7 Prozent im Januar und 10 Prozent im Juli. Im Januar finden sich hohe relative Beiträge von 7 Prozent auch in der südlichen Hemisphäre. Die NMHC-Emissionen bewirken deutlich geringere Beiträge zu den zonal gemittelten Verteilung: gut 4 Prozent im Januar und Juli in mittleren Breiten der Nordhemisphäre und gut 6 Prozent im Juli in nördlichen, polaren Breiten in Bodennähe. Schließlich tragen die CO-Emissionen des Straßenverkehrs maximal weniger als 1 Prozent zur zonal gemittelten Ozonkonzentration bei. Die Gesamtemissionen bewirken im Vergleich dazu in den gesamten nördlichen Extratropen in Bodennähe einen Ozonbeitrag von mehr als 12 Prozent (Abbildungen 8.1 und 8.1.1).

Die zonal gemittelte Wirkung der einzelnen Spezies auf die Ozonverteilung zeigt nicht nur die unterschiedliche Stärke, sondern ebenfalls die deutlich unterschiedliche geographische Verteilung. Stickoxide leisten einen maximalen Ozonbeitrag (mehr als 8 %) in den Breiten 15°N bis 60°N , während die NMHC ihren maximalen relativen Beitrag (mehr als 4 %) in polaren Breiten nördlich von 65°N aufweisen. Durch die insgesamt niedrigeren Beiträge der NMHCs zu Ozon im Vergleich zu den Stickoxiden, besitzen die Beiträge der beiden Spurengase in den polaren Breiten der Nordhemisphäre mit 4 bis 8 Prozent in etwa die gleiche Stärke.

Neben der unterschiedlichen Wirkung in den nördlichen Extratropen zeigen sich auch in tropischen Breiten Unterschiede. Dort werden die Spurengasverteilungen stark durch die Lage der ITCZ, oder allgemeiner durch die Hadley-Zirkulation, beeinflusst (Abschnitt 2.1). Im Juli erstrecken sich hohe relative Beiträge durch die Stickoxide (mehr als 3 Prozent) und deutlich geringere durch die NMHC und durch Kohlenmonoxid (mehr als 0.5 Prozent) bis in die obere Troposphäre der tropischen Breiten (Abbildung 8.2). Ursache hierfür ist die rasche Aufwärtsbewegung von Luftmassen im Zentrum der ITCZ. Bei den Auswirkungen der NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs übersteigen die relativen Beiträge in tropischen Breiten in den oberen Schichten, insbesondere im Januar, teilweise die relativen Beiträge in darunterliegenden Schichten (Abbildung 8.2). Ursache hierfür ist, dass in den Tropen in der freien, unteren Troposphäre Ozon abgebaut wird und die Luftmassen im Zentrum der ITCZ rasch aufsteigen. In der Höhe fließen diese Luftmassen in höhere Breiten ab und sinken dann ab. Somit ergeben sich für die oberen Schichten in etwa 15° Nord und Süd kürzere Transportzeiten von den Quellregionen als für die darunterliegenden Schichten, wodurch diese oberen Schichten vergleichsweise stärker durch den Straßenverkehr beeinflusst werden.

Im Januar - Südsommer - verursacht der Straßenverkehr auch in den südlichen Extratropen hohe relative Beiträge. Die Ursachen für die im Sommer höheren relativen Beiträge des Straßenverkehrs zu Ozon als im Winter - die geringere Hintergrundkonzentrationen der Stickoxide und Ozon in Verbindung mit der nichtlinearen Photochemie - wurde bereits im Zusammenhang mit der Gesamtwirkung des Straßenverkehrs dargestellt (Abschnitt 8.1.1.1). Durch die Stickoxidemissionen finden sich im Januar auf der Südhemisphäre ebenso hohe relative Beiträge zu Ozon wie in den nördlichen Extratropen (zwischen 3 und 7 Prozent). Durch die NMHC-Emissionen werden

Tabelle 8.1: Absolute und relative Beiträge zu der **Ozonverteilung** in Bodennähe [1000 hPa] durch die einzelnen Spurengasemissionen und der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs für Januar und Juli in [ppb] und [%].

Komponente	Absoluter Beitrag [ppb]				Relativer Beitrag [%]			
	Januar		Juli		Januar		Juli	
	Min	Max	Min	Max	Min	Max	Min	Max
NO _x	-2.2	12.1	-2.1	20.9	-13.6	34.0	-5.4	37.2
CO	0.0	1.8	0.0	3.7	0.0	4.2	0.0	4.6
NMHC	-0.3	9.3	-0.1	14.2	-1.2	27.5	-0.2	22.3
Gesamt	0.2	12.2	0.1	23.3	1.0	34.2	0.2	39.0

Beiträge von mehr als 1 Prozent verursacht. Die relativen Beiträge der CO-Emissionen liegen unter 0.5 Prozent. Insgesamt liegen die Beiträge der Stickoxidemissionen allein zur zonal gemittelten Ozonkonzentration (Abbildung 8.2) also um etwa 2 bis 3 Prozentpunkte niedriger als die relativen Beiträge der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs (Abbildungen 8.1 und 8.1.1). Die NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs besitzen etwa die halbe Stärke der Beiträge der Gesamtemissionen. Die CO-Emissionen bewirken relative Beiträge, die um eine Größenordnung geringer sind. Erneut zeigt sich die Reihung der Wirkung der einzelnen Spurengase auf Ozon mit den Stickoxiden an erster Stelle, gefolgt von den NMHCs und schließlich CO, wobei die NMHC insbesondere in arktischen Breiten einen Einfluss besitzen und dort in der Stärke mit NO_x vergleichbar sind.

Um den regionalen Ursprung der Änderungen zu zeigen, wird nun die horizontale Verteilung der Wirkung des Straßenverkehrs dargestellt. Die Stärke der berechneten Einflüsse der einzelnen Spurengaskomponenten auf die Ozonverteilung (Abbildungen 8.17, 8.18 und 8.19) unterscheiden sich auch in der horizontalen Verteilung in Bodennähe (1000 hPa): Die Wirkung der NMHCs ist im Mittel etwa halb so groß wie die der Stickoxidemissionen. Der Einfluss der CO-Emissionen auf die Ozonkonzentration ist im Mittel um eine Größenordnung kleiner als der der Stickoxide. Die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs haben als einzelne Spezies somit den größten Einfluss auf die Verteilung des bodennahen Ozons.

In Tabelle 8.1 sind die Minima und Maxima zwischen denen sich die Veränderung der Ozonkonzentration durch die einzelnen Spurengase in Bodennähe (Januar und Juli) bewegt gegenübergestellt. Der maximale Beitrag zur Ozonverteilung durch die Stickoxide alleine macht etwa 90 Prozent der Wirkung der gesamten Emissionen in 1000 hPa aus. Der Beitrag der NMHC-Emissionen beträgt noch gut 60 Prozent des maximalen Beitrags der Gesamtemissionen. Die CO-Emissionen bewirken alleine nur 15 Prozent des maximalen Beitrags der Gesamtemissionen zur Ozonverteilung. Neben diesen stark unterschiedlichen Maximalwerten fallen deutlich negative Beiträge zur bodennahen Ozonverteilung durch die Stickoxide von mehr als 2 ppb auf (Abbildung 8.17), die durch die Titration von Ozon mit NO entstehen.

Die geographischen Verteilungen der Beiträge der einzelnen Spurengase zur Ozonverteilung (Abbildung 8.17, 8.18 und 8.19) unterscheiden sich neben der Stärke auch deutlich in den regionalen Mustern. Während die Stickoxidemissionen im Juli vorwiegend für hohe Beiträge in den Quellregionen verantwortlich sind, besitzen die NMHC- und die Kohlenmonoxidemissionen hohe

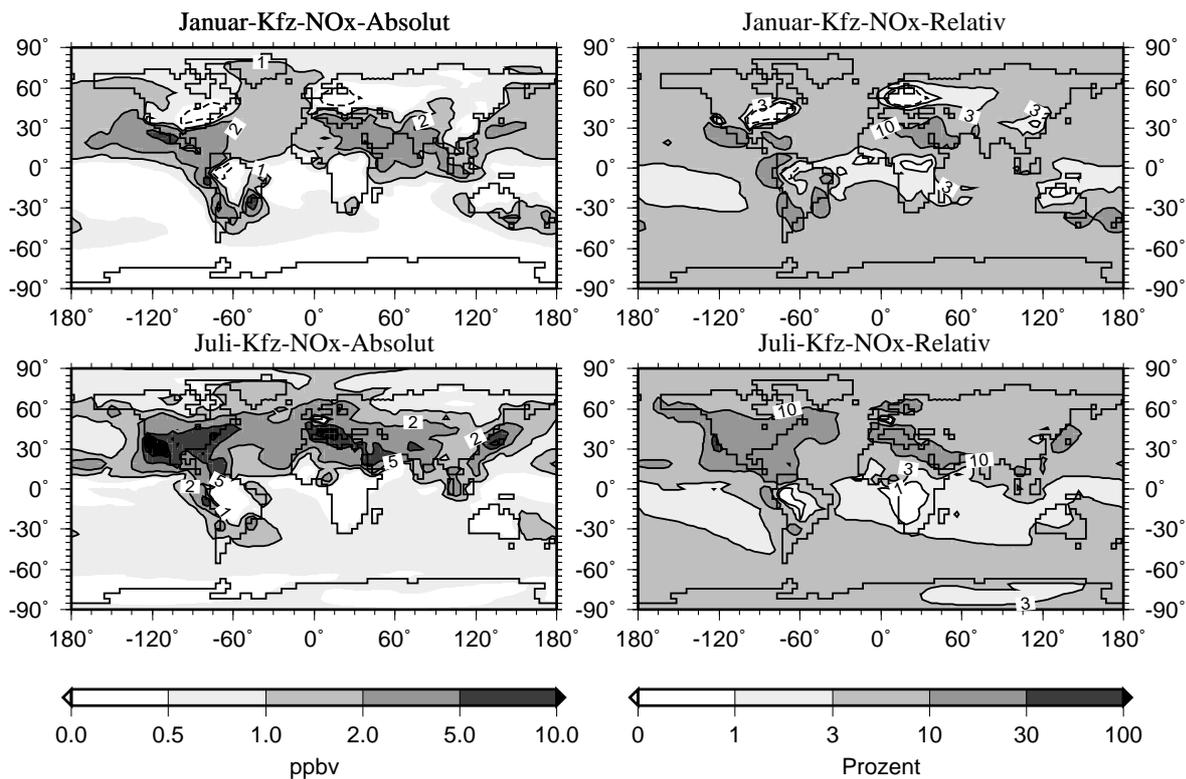


Abbildung 8.17: Einfluss der NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs auf die Verteilung des bodennahen **Ozons** (1000 hPa) in [ppb] (*links*) und in [%] (*rechts*) für die Monate Januar (*oben*) und Juli (*unten*), Differenz der Kontrollsimulation CTR90 und der Szenariosimulation NO_NOX.

Beiträge zur Ozonkonzentration gerade in den Nicht-Quellgebieten, über den Ozeanen und in der Arktis. Im Januar ist die Wirkung jeweils umgekehrt: die Stickoxidemissionen besitzen hohe Beiträge außerhalb der Quellregionen und die NMHC- und Kohlenmonoxidemissionen gerade in den Quellregionen. Die Wirkung der Gesamtemissionen (Abschnitt 8.1.1.2) besitzt die gleiche charakteristische Verteilung wie die Stickoxidemissionen: im Juli hohe Beiträge in den Quellregionen, im Januar in den Nicht-Quellregionen. Wie diese unterschiedliche Wirkung entsteht, wird in den Abschnitten 8.2.3, 8.2.4 und 8.2.5 dargestellt und zusammenfassend in Abschnitt 8.2.8 dargestellt.

8.2.2 Photochemische Ozonproduktion

Weiteren Aufschluss über die chemischen Vorgänge geben die Netto-Ozonproduktionsraten (vgl. Abschnitt 8.1.3). Auch hier unterscheidet sich die Wirkung der NMHCs deutlich von denen der Stickoxidemissionen (Abbildung 8.20). Zwar bewirkt der Straßenverkehr sowohl durch die einzelnen Spurengasemissionen als auch durch die gesamten Emissionen in 30°N in Bodennähe einen positiven Beitrag zur Ozonproduktion von mehr als $10 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$. Der Beitrag der Gesamtemissionen (mehr als $100 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$) wird dabei von den Stickoxidemissionen (knapp unter $100 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$) dominiert. Die NMHC-Emissionen tragen nur etwa $40 \cdot 10^4 \text{ Mol./cm}^3 \text{ s}$ bei. Jedoch unterscheidet sich in anderen Regionen der Atmosphäre das Muster der Beiträge der NMHCs deutlich von dem der Stickoxide und Gesamtemissionen. Die Stickoxidemissionen alleine

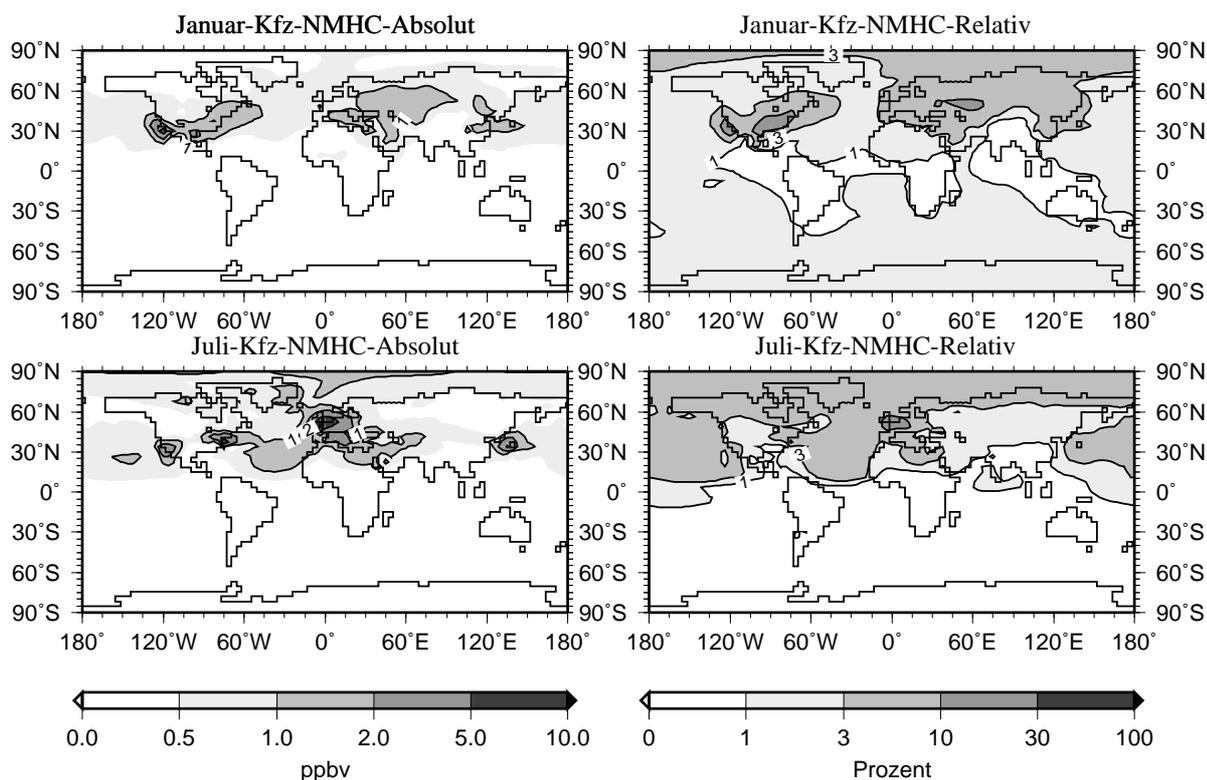


Abbildung 8.18: Einfluss der NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs in der Verteilung des bodennahen **Ozons** (1000 hPa) in [ppb] (links) und in [%] (rechts) für die Monate Januar (oben) und Juli (unten).

führen zu einer ähnlichen Wirkung wie die Gesamtemissionen auf die Netto-Ozonproduktionsraten mit den in Abschnitt 8.1.3 beschriebenen Charakteristika und nur etwas geringerer Stärke; die grundlegende Verteilung der Regionen mit Ozonproduktion und -abbau ist identisch. Die NMHC-Emissionen jedoch bewirken (außer in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre) einen Effekt mit meist entgegengesetztem Vorzeichen: in tropischen Breiten in Bodennähe bewirken sie eine Abnahme der Ozonproduktion, in der freien Troposphäre tropischer Breiten eine Zunahme und in der freien Troposphäre in mittleren Breiten wiederum ein Abnahme. Die Wirkung der NMHC-Emissionen ist um gut eine Größenordnung schwächer, so dass insgesamt bei den Gesamtemissionen die Wirkung der Stickoxide dominiert.

In den Quellregionen in nördlichen mittleren Breiten wirken sowohl NO_x als auch NMHC als Ozonvorläufersubstanzen, wodurch es zu einer Netto-Ozonproduktion kommt.

8.2.3 Wirkung der Stickoxidemissionen

Im Juli wirken die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs auf die Ozonverteilung (Abbildung 8.17) hinsichtlich der geographischen Verteilung der Einflüsse ähnlich wie die Gesamtemissionen (Abbildung 8.4): Es werden hohe absolute Beiträge in den Quellregionen der Nordhemisphäre (USA, Europa und Japan, mehr als 5 ppb) und signifikante Beiträge über den Ozeanen der Nordhemisphäre (Atlantik mehr als 2 ppb, Pazifik mehr als 1 ppb) simuliert. Im Januar wirken die

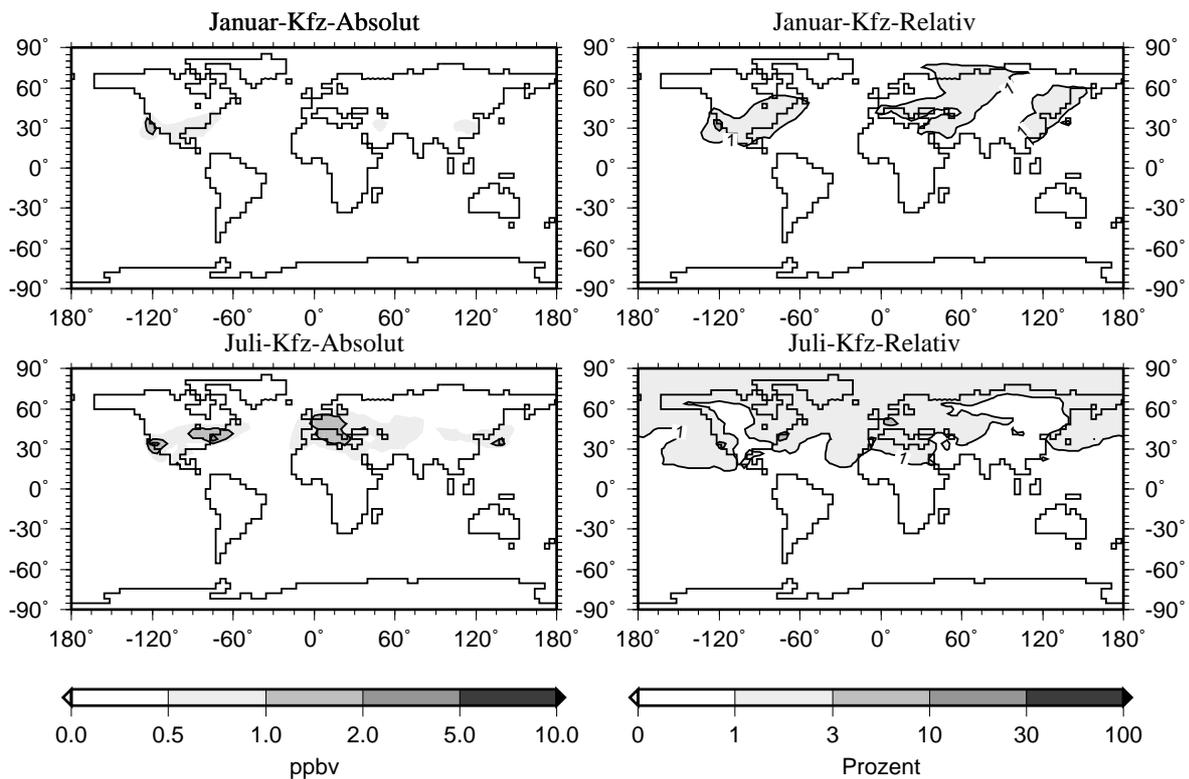


Abbildung 8.19: Einfluss der CO-Emissionen des Straßenverkehrs auf die Verteilung des bodennahen **Ozons** (1000 hPa) in [ppbv] (links) und in [%] (rechts) für die Monate Januar (oben) und Juli (unten).

NO_x -Emissionen nur über den Ozeanen mit signifikanten bis maximalen Beiträgen ähnlich wie die gesamten Emissionen des Straßenverkehrs. In den Quellgebieten jedoch unterscheidet sich im Januar die Wirkung der Stickoxide alleine deutlich von der Wirkung der gesamten Straßenverkehrsemissionen: Die Ozonverteilung wird durch die NO_x -Emissionen um mehr als 1 ppb verringert, während durch die gesamten Emissionen dort eine Erhöhung des Ozons von meist mehr als 1 ppb verursacht wird (Ausnahme: Mitteleuropa). Insgesamt bedeutet das, dass die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs (Abbildung 8.4) höhere Beiträge im Nordsummer in den Quellregionen (mehr als 5 ppb) und im Nordwinter in den Nicht-Quellregionen, beispielsweise den Ozeanen der Nordhemisphäre (mehr als 1 ppb), leisten. Die NMHC-Emissionen weisen dagegen gerade das umgekehrte Verhalten auf, wie in Abschnitt 8.2.4 gezeigt werden wird.

Entscheidend für die Wirkung der Stickoxide ist ihre grundlegende Bedeutung für die photochemische Ozonproduktion in der Atmosphäre. Zusätzlich findet in den Quellgebieten durch die NO -Emissionen des Straßenverkehrs und die damit verbundene erhöhte NO -Konzentration eine Titration von Ozon statt (Reaktion (2.4)). Im Juli ist auf Grund der hohen solaren Einstrahlung eine starke Photochemie und dadurch eine starke Ozonbildung gegeben, so dass im Juli i.d.R. die Bildung von Ozon dominiert. Diese Ozonbildung findet sowohl in den Quellregionen als auch in den Abluftgebieten (*downwind*) über den Ozeanen statt. Im Januar hingegen ist die photochemische Ozonproduktion durch die geringere solare Einstrahlung deutlich schwächer als im Juli, wodurch insgesamt in einzelnen Quellregionen der Ozonabbau überwiegt (Abbildung 8.4), bei-

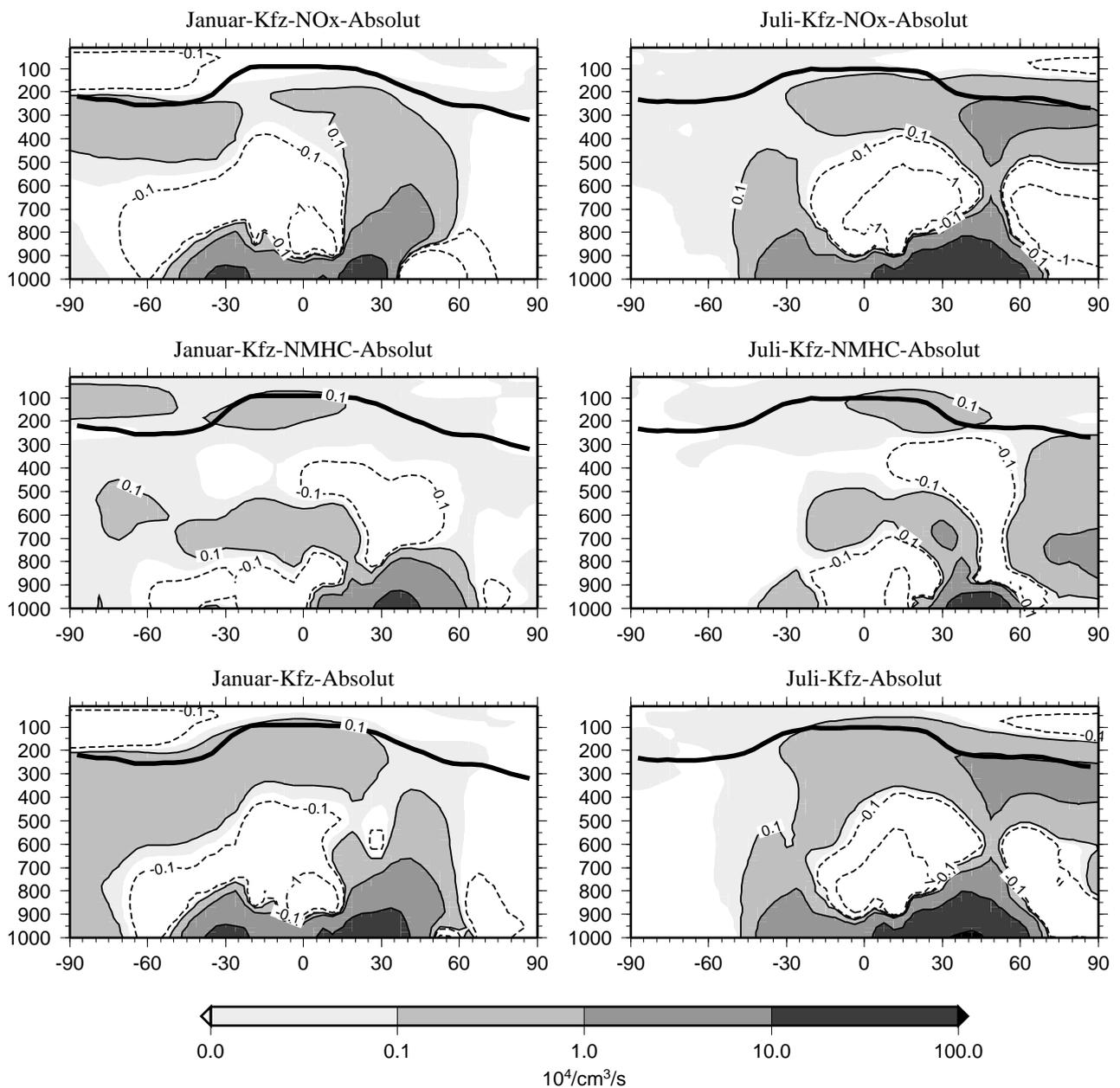


Abbildung 8.20: Beitrag der NO_x-, der NMHC- und der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs zu den zonal gemittelten Netto-Ozonproduktionsraten im Januar (*links*) und Juli (*rechts*) in Moleküle $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$, Achsen wie Abbildung 8.2.

spielsweise im Osten der USA (Abnahme um bis zu 10 Prozent) und Mitteleuropa (Abnahme um bis zu 5 Prozent). Erst außerhalb der Quellregionen in den Abluftgebieten dominiert im Januar schließlich durch die Stickoxidemissionen die photochemische Ozonproduktion: Beispiele hierfür sind Nordatlantik und Nordpazifik. An der Westküste der USA erhöhen die Stickoxidemissionen das Bodenzon um etwa 4 %. Eine Ausnahme bildet hier die Masche des Modellgitters, in der die Emissionen von Los Angeles berücksichtigt werden. Hier findet sich eine maximale Reduzierung des Bodenzons um 18 % (minus 2 ppb). Im Juli zeigt sich in Mitteleuropa noch ein weiterer

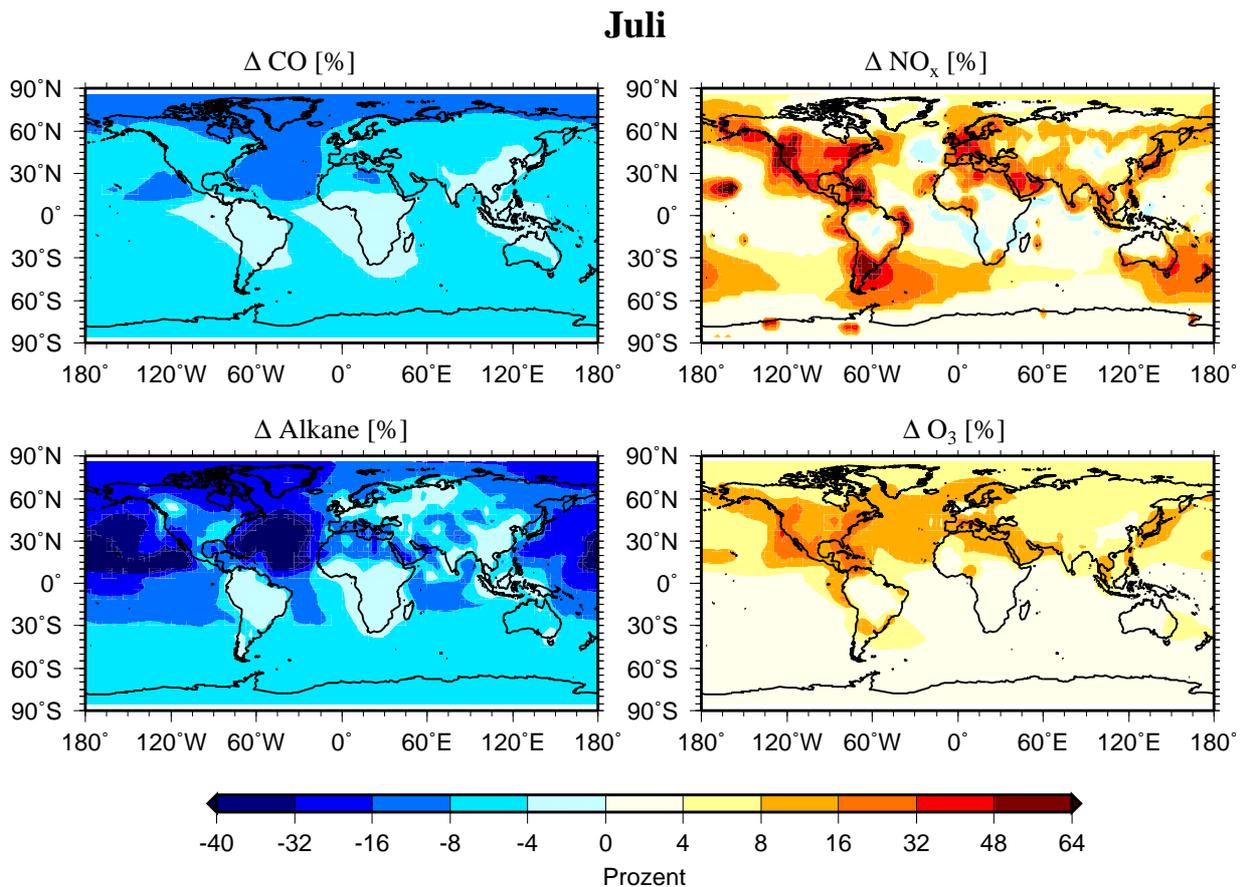


Abbildung 8.21: Relativer Beitrag [%] der NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs zu der horizontalen Verteilung (1000 hPa) der **primären Spezies** und **Ozon** im Juli (in %). Differenz der Kontrollsimulation CTR90 und der Szenariosimulation NO_NOX.

Effekt: Trotz der starken Photochemie wird durch die Stickoxidemissionen weiterhin - wie im Januar - Ozon abgebaut (Abbildung 8.4). Hier kommt die mit steigender Stickoxidkonzentration abnehmende Ozonproduktivität der Stickoxide zum Tragen (Abschnitt 1). Eine zusätzliche Menge an emittierten Stickoxiden führt dazu, dass zunächst Ozon zerstört wird (Titration). Gleichzeitig steht zwar mehr NO_x für die Reaktion mit HO_2 und RO_2 zur Verfügung, die Ozon-Produktivität der gesamten Stickoxide nimmt jedoch stärker ab, als die zusätzliche Menge an Stickoxiden ausgleicht. Im Ergebnis führt dies in Mitteleuropa zu geringeren Ozonkonzentrationen bei gleichzeitig höheren Stickoxidemissionen und -konzentrationen. Im Juli nimmt Ozon dort durch die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs um etwa 2 ppb ab (Tabelle 8.1).

Der Einfluss der Stickoxidemissionen alleine auf die atmosphärische Verteilung der Stickoxide (Abbildungen 8.21 und 8.22, *rechts oben*) weist die gleichen Charakteristika auf wie die der Gesamtemissionen (Abbildungen 8.3 und 8.1.1.2). Man erhält maximale Beiträge in den Quellgebieten, die Beiträge fallen jedoch mit zunehmender Entfernung von den Quellgebieten rasch um mehrere Größenordnungen ab. In den Quellgebieten finden sich relative Beiträge zu den Stickoxidkonzentrationen von mehr als 36 Prozent; in südlichen Breiten gilt dies auch für advehierte Luftmassen. Hohe Beiträge in advehierten Luftmassen sind nur bei einer schwachen Photochemie

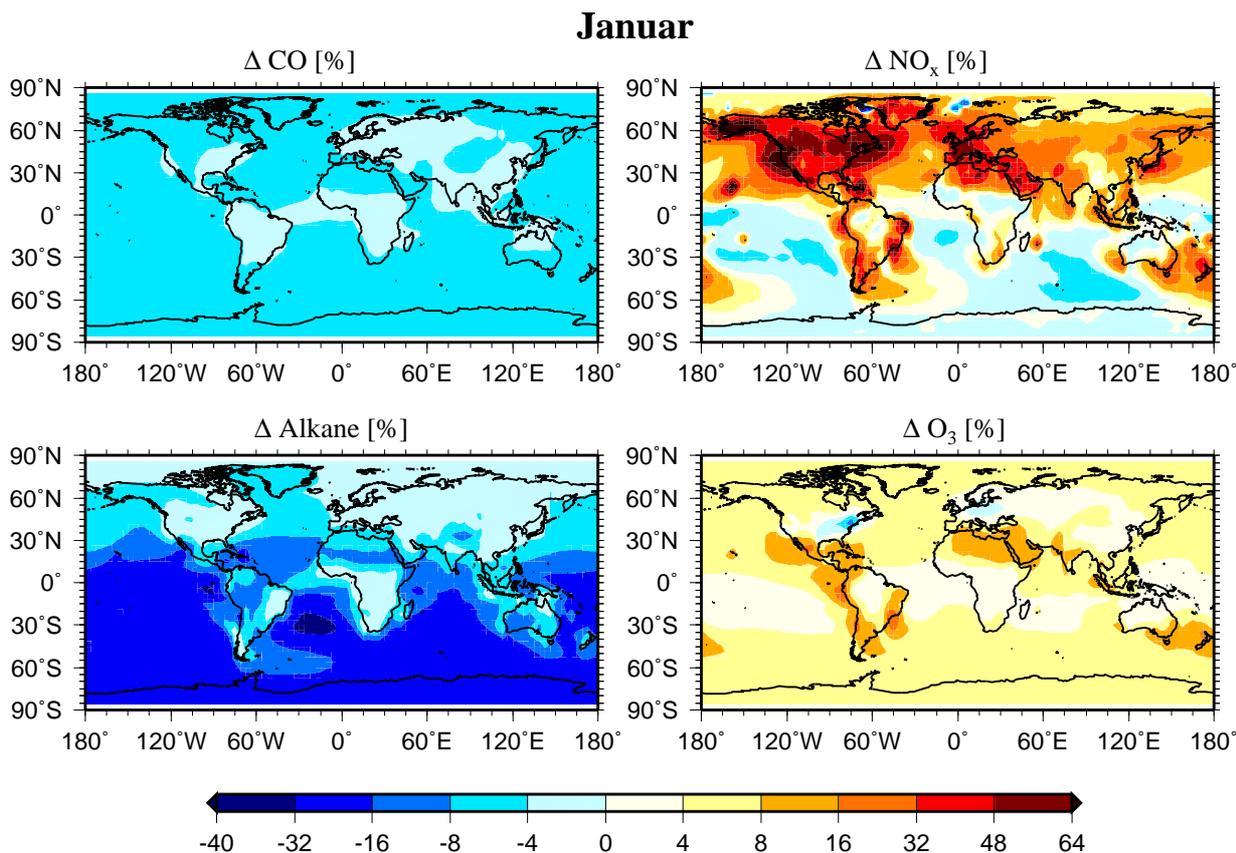


Abbildung 8.22: Relativer Beitrag der NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs zu der horizontalen Verteilung (1000 hPa) von CO (links oben), NO_x (rechts oben), Alkane (links unten) und Ozon (rechts unten) im Januar (in %).

in der Winterhemisphäre möglich.

Bei genauer Betrachtung zeigen sich in der Arktis und in Abluftgebieten Unterschiede der Wirkung der Stickoxide alleine von der Wirkung der Gesamtemissionen auf die atmosphärischen Stickoxide. Hier zeigt sich, dass - wie in der Einzelgasstudie ermittelt (Abschnitt 8.2.4) - die NMHCs die Verteilung der Stickoxide beeinflussen: Die NMHC verstärken durch die Bildung von PAN, den Transport von NO_x in entlegene Regionen. Die Stickoxidemissionen alleine führen somit in entlegenen Regionen im Juli zu geringeren Beiträgen zur atmosphärischen Stickoxidverteilung als die Gesamtemissionen. Die Stickoxide bewirken dort nur einen Beitrag von weniger als 10 Prozent zur PAN-Konzentrationsverteilung, während die Gesamtemissionen Beiträge zwischen 20 und 30 Prozent aufweisen (*nicht gezeigt*). PAN ist in diesen Regionen in Bodennähe thermisch instabil, wodurch die vergleichsweise höheren Beiträge zur PAN-Verteilung durch die gesamten Emissionen des Straßenverkehrs eine vergleichsweise stärkere Quelle für NO_x darstellen, als die Stickoxidemissionen alleine. Erst die Bildung der Reservoirspezies PAN ermöglicht es Stickoxide weite Strecken bis in polare Breiten zu transportieren. Im Juli zerfällt PAN in Bodennähe thermisch und stellt eine Quelle für NO_x dar. Die Stickoxidemissionen allein, die in diesen Breiten nur einen geringeren Beitrag zur bodennahen PAN-Verteilung liefern als die Gesamtemissionen, transportieren in Folge dessen weniger NO_x in arktische Breiten und verursachen folglich geringere

Beiträge zur atmosphärischen Stickoxidverteilung in arktischen Breiten. Im Januar besitzen die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs in der Arktis einen negativen Beitrag zur atmosphärischen NO_x - und NO_y -Verteilung, während die Stickoxidemissionen alleine zu geringen, meist positiven Beiträgen führen. Auch die NO_y -Verteilung zeigt in arktischen Breiten eine deutliche Abnahme. Hier zeigt sich in Abschnitt 8.2.4, dass durch die NMHC-Emissionen eine Abnahme im NO_y beobachtet werden kann. NO_y besitzt als Senke nur die Deposition von HNO_3 . Entsprechend bewirken die NMHC-Emissionen über eine Verschiebung der Partitionierung (engl. partitioning) in der NO_y -Familie einen verstärkten Verlust des NO_y . Die Abnahme der NO_y -Verteilung bedeutet in der Konsequenz auch eine Abnahme des NO_x . Im Einzelnen bedeutet dies, dass HNO_3 durch die Gesamtemissionen geringer zunimmt als durch die Stickoxidemissionen alleine. Diese Abnahme im NO_y durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs, die durch die Stickoxide alleine nicht zu beobachten ist, zeigt sich bis in ein Druckniveau von 700 hPa.

Die im Januar deutlich höheren Beiträge zu den Stickoxiden über den Ozeanen durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs können mit Hilfe von PAN erklärt werden: Die PAN-Bildung ist auf Grund der Stickoxidemissionen alleine deutlich schwächer als auf Grund der Gesamtemissionen, wodurch bei der Wirkung der Stickoxide alleine ein schwächerer Transport von NO_x in der temporären Reservoirspezies PAN stattfindet. So zeigen sich durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs in Zungen kontinentaler Luft über den Ozeanen hohe relative Beiträge von mehr als 16 Prozent (Ozeane vor den USA, Japan, Westafrika) (Abbildung 8.1.1.2). Die Stickoxidemissionen allein hingegen bewirken dort niedrigere Beiträge von weniger als 6 Prozent. In diesen Gebieten zeigt sich, dass die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs deutlich höhere relative Beiträge zur PAN-Verteilung (mehr als 48 Prozent) als die NO_x -Emissionen allein (weniger als 16 Prozent) bewirken. Da PAN im Juli in diesen Breiten in der Bodenschicht thermisch zerfällt, stellt es eine Quelle für NO_x dar. Da durch die Gesamtemissionen mehr PAN als durch die NO_x -Emissionen alleine gebildet wird, ergeben sich durch einen Transport in der freien Troposphäre und eine anschließende Einmischung in die PBL höhere Beiträge zur Stickoxidverteilung in der PBL in entlegenen Gebieten über den Ozeanen.

Schließlich bewirken die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs eine Abnahme der atmosphärischen Verteilung von Kohlenmonoxid und den NMHCs (Abbildungen 8.21 und 8.22). Ursache hierfür ist insbesondere die Zunahme der OH-Verteilung (v.a. in der Sommerhemisphäre), da OH den Abbau von CO und NMHCs einleitet.

Der Einfluss der troposphärischen Stickoxide des Straßenverkehrs auf die Ozonverteilung ist durch die nichtlineare Photochemie bestimmt. Wie die Einzelgasstudie der Stickoxidemissionen zeigte, gibt es sowohl Regionen, in denen sich die Ozonproduktivität im Produktionsregime befindet, als auch solche, in denen sie sich im Sättigungsregime befindet. Dies führt dazu, dass zusätzliche Stickoxide nicht zwingend zu einem Zustand mit höheren Ozonmischungsverhältnissen führen: In der Simulation der Wirkung der Stickoxide des Straßenverkehrs führen die zusätzlichen Emissionen des Straßenverkehrs nicht überall zu einem Ozonanstieg in der planetaren Grenzschicht. Im Osten der USA, in Europa und - weniger ausgeprägt - auch in China ist wie oben ausgeführt eine Reduzierung des Ozons durch die Stickoxidemissionen zu beobachten. Ursache hierfür ist die sinkende Ozonproduktivität bei steigenden Stickoxidkonzentrationen (Abschnitt 1) und die Titration von Ozon durch zusätzlich emittiertes NO (Reaktion (2.4)).

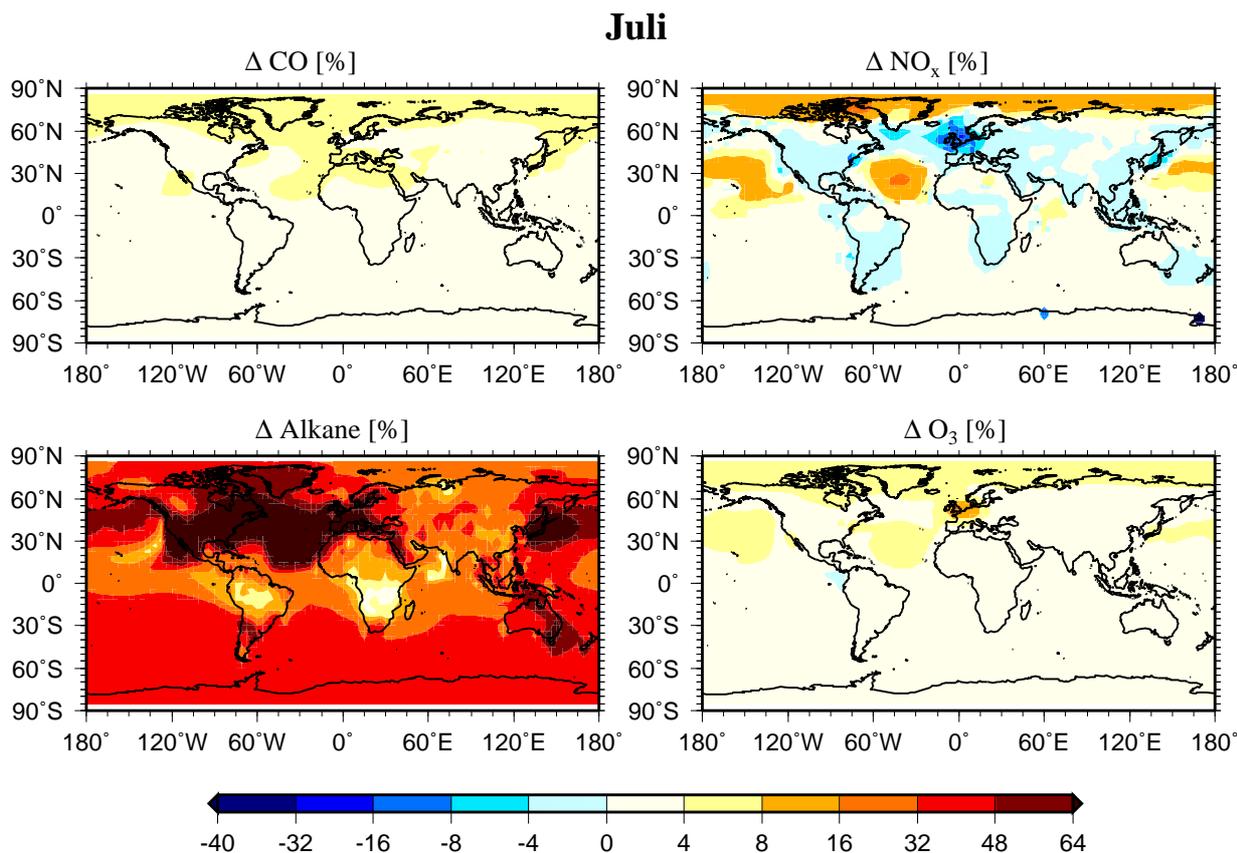


Abbildung 8.23: Relativer Beitrag [%] der NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs zu der horizontalen Verteilung (1000 hPa) der **primären Spezies** und **Ozon** im Juli (in %).

8.2.4 Wirkung der NMHC-Emissionen

In Abbildung 8.23 ist der Einfluss der NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs auf die Verteilung von Stickoxiden, Kohlenmonoxid, Ozon und - exemplarisch für die NMHCs - die Alkane gezeigt. Die NMHC-Emissionen beeinflussen direkt die atmosphärische Verteilung der einzelnen NMHC-Spezies. Bei den Alkanen trägt der Straßenverkehr bis zu 80 Prozent zur atmosphärischen Verteilung im Nordatlantik bei (Abbildung 8.23). In den Quellgebieten liegen die relativen Beiträge sogar noch höher. Bei den vergleichsweise reaktiveren NMHCs (Alkene, Formaldehyd) liegen im Juli die relativen Beiträge im Nordatlantik dagegen deutlich niedriger und teilweise unter 10 Prozent (*nicht gezeigt*). Ursache hierfür sind die kürzeren Lebensdauern (siehe Abschnitt 2.4), die einen Transport nur über kurze Entfernungen erlauben.

Zusätzlich beeinflussen die NMHC-Emissionen indirekt die Verteilung der Stickoxide und des Kohlenmonoxids (Abbildung 8.23). Die NMHC-Emissionen bewirken eine geringfügige Abnahme der Stickoxidverteilung, insbesondere in den Quellregionen. Dies geht einher mit einer Zunahme der PAN-Mischungsverhältnisse in diesen Gebieten. Diese Zunahmen von PAN sind im Sommer, auf Grund der kürzeren Lebensdauer als im Winter (Abschnitt 2.4), auf die Quellregionen beschränkt und betragen dort zwischen 10 und 300 ppt (*nicht gezeigt*). Weiterhin bewirken die NMHC-Emissionen in der Arktis und in Zungen kontinentaler Luft über den Ozeanen eine um mehr als 12 Prozent erhöhte Stickoxidverteilung (kleiner 10 ppt). Abgeschwächte Verlustpro-

zesse für die Stickoxide können diese Zunahme des NO_x nicht erklären, da HO_x , die wesentliche Senke für NO_x , dort erhöht ist (*nicht gezeigt*). Diese Gebiete mit Zunahmen der NO_x -Verteilung durch die NMHC-Emissionen sind entlegene Gebiete, in denen der thermische Zerfall des - nun erhöhten - PAN über die zusätzliche Bildung von PAN dominiert und es somit insgesamt zu einer Verstärkung der NO_x -Quelle (aus PAN) kommt. Dies bewirkt die Zunahme der bodennahen Stickoxidverteilung in diesen Gebieten. In Folge dessen wird in diesen Gebieten im Gegensatz zu der Wirkung der Gesamtemissionen weniger Ozon abgebaut (vgl. Gesamtwirkung Abschnitt 7.1) und die Netto-Ozon-Produktionsrate ist dort positiv.

Die NMHC-Emissionen bewirken hingegen eine Abnahme der Stickoxidkonzentration über weiten Teilen der kontinentalen Gebiete im Juli. Eine deutliche Abnahme der Stickoxide um mehr als 6 Prozent wird beispielsweise in Europa berechnet. In diesen Gebieten findet sich im Juli auch eine verringerte OH-Konzentration durch die Stickoxidemissionen (*nicht gezeigt*). Die NMHC-Emissionen führen hingegen zu einer Zunahme von OH. Hierdurch ist die Verlustreaktion von NO_2 (Bildung von HNO_3 , Reaktion (2.9)) abgeschwächt, wodurch die Stickoxidkonzentration höher ist. Dies stimmt mit den Gebieten überein, in denen eine Zunahme der Ozonkonzentration durch die NMHC-Emissionen alleine von mehr als 6 Prozent berechnet wird. Zusätzlich ist die PAN-Konzentration durch die NMHC-Emissionen erhöht. PAN stellt eine temporäre Senke für NO_x dar und reduziert folglich in diesen Gebieten die NO_x -Verteilung.

Die Wirkung der NMHC-Emissionen auf die Ozonverteilung ist insgesamt deutlich geringer als die Wirkung der Stickoxide. Nur in Europa werden im Juli lokal absolute Beiträge von 5 ppb überschritten. Ansonsten bewirken die NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs im Januar und Juli weniger als 2 ppb Ozon in der Nordhemisphäre und weniger als 0.5 ppb in der Südhemisphäre. Wie bereits erwähnt führen im Juli die NMHC-Emissionen in den Quellregionen zu einem niedrigeren Einfluss als in den Nicht-Quellregionen. Im Januar hingegen sind in den Quellregionen höhere Beiträge zu verzeichnen. So werden im Juli in weiten Teilen der USA niedrigere Ozonzunahmen berechnet als im Atlantik (mehr als 1 ppb). Relative Beiträge über den Ozeanen liegen in den nördlichen Extratropen bei mehr als 3 Prozent, über den Kontinenten meist unter 3 Prozent. Ausnahmen bilden nur einzelne Ballungsräume, in denen die NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs im Juli zu einer deutlichen Erhöhung des bodennahen Ozons führen: In der Region von Los Angeles und in Zentren an der Ostküste der USA (mehr als 2 ppb), in Mitteleuropa, England, den Niederlanden und Deutschland (lokal um mehr als 10 ppb) (Abbildung 8.18). Der Vergleich mit dem Einfluss der NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs zeigt, dass in eben diesen Gebieten über Europa eine Verringerung des Ozons durch die zusätzlichen NO_x -Emissionen um 4 ppb stattgefunden hat. In den USA wird durch die zusätzlichen NO_x -Emissionen hingegen eine Zunahme des Ozons um mehr als 10 ppb berechnet. Das bedeutet, dass in Europa und den durch Europa beeinflussten Gebieten (Ostatlantik, Osteuropa, Naher Osten) eine Reduzierung der NMHC-Emissionen ebenso effektiv oder sogar effektiver zur Reduzierung des Bodenozens beiträgt.

8.2.5 Wirkung der CO-Emissionen

Die CO-Emissionen des Straßenverkehrs tragen zur bodennahen Verteilung von CO in den nördlichen Extratropen mehr als 16 % bei. In Quellregionen werden hohe Beiträge von mehr als

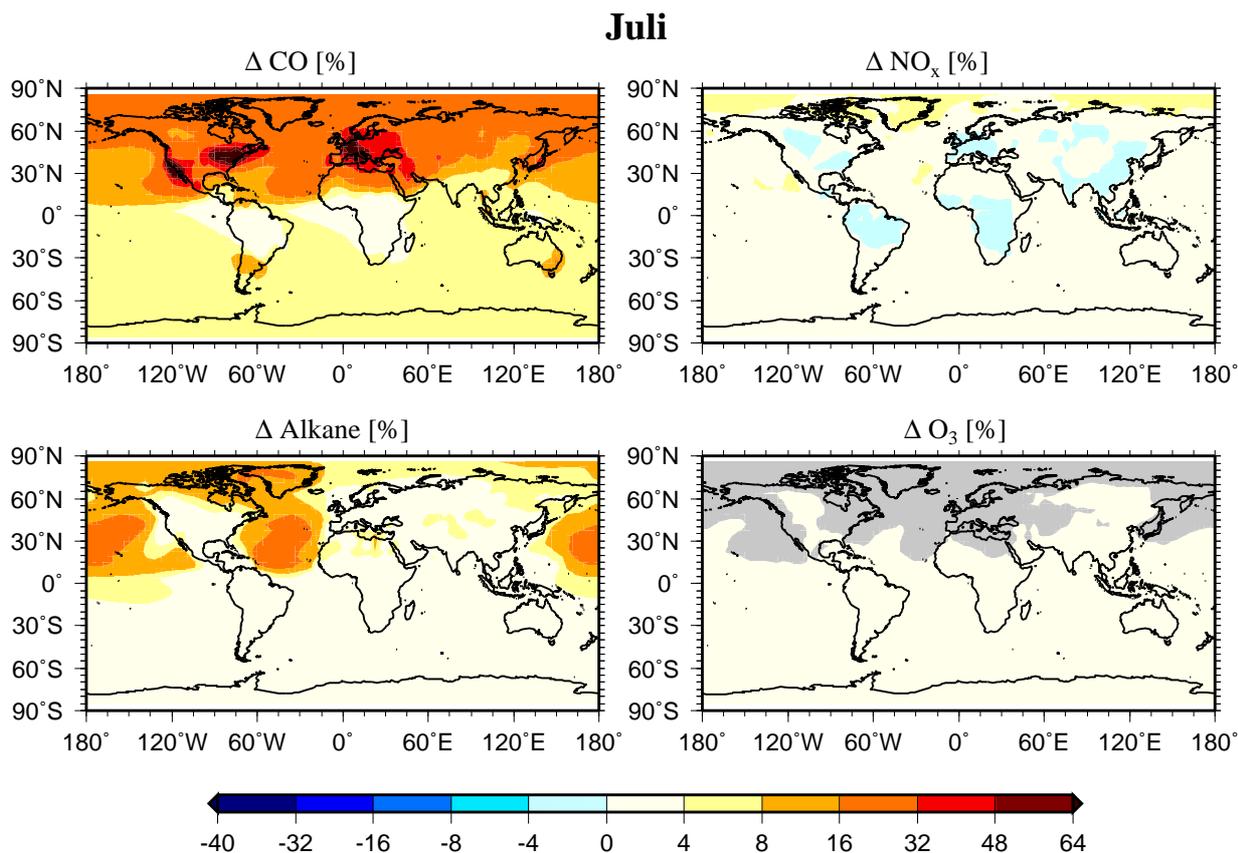


Abbildung 8.24: Relativer Beitrag [%] der CO-Emissionen des Straßenverkehrs zu der horizontalen Verteilung (1000 hPa) der **primären Spezies** und **Ozon** im Juli (in %). Regionen mit mehr als 1 % Beitrag zu Ozon sind grau schattiert.

32 % (bis 64 %) durch den Straßenverkehr geliefert. Die Wirkung der CO-Emissionen alleine ist damit in den Quellregionen höher als die Wirkung der Gesamtemissionen, die nur Beiträge von maximal 48 % zur CO-Verteilung liefern. Bei der Wirkung der CO-Emissionen auf die Alkane zeigt sich eine merkliche relative Zunahme in entlegenen Regionen. Da CO eine Senke für OH darstellt, verringert sich die OH-Konzentration, wodurch der Abbau der NMHCs schwächer und ihre Konzentration höher wird. Die Wirkung der CO-Emissionen auf Ozon ist im Vergleich zu den Gesamtemissionen um eine Größenordnung geringer (Abbildungen 8.19 und 8.24). Im Juli werden nur in industrialisierten Zentren der Nordhemisphäre (Los Angeles, Ostküste der USA, Europa) Beiträge von 1 ppb Ozon überschritten. Die relativen Beiträge liegen teilweise in den nördlichen Extratropen im Juli über 1 Prozent. Somit besitzen die CO-Emissionen für den Beitrag des Straßenverkehrs zur Ozonverteilung nur eine geringe Bedeutung.

Ein höhere Bedeutung kommt den CO-Emissionen hingegen bei dem Beitrag des Straßenverkehrs zu OH-Verteilung zu. Die CO-Emissionen des Straßenverkehrs bewirken im Juli eine Verringerung des Hydroxylradikals in der gesamten Troposphäre der nördlichen Hemisphäre (Abbildung 8.25). Maximale Abnahmen betragen bis zu $8 \cdot 10^{-6}$ ppb und werden in der oberen Troposphäre erreicht. CO stellt eine Senke für OH mittels Reaktion (2.16) dar. Kohlenmonoxid ist stabil genug, um bis in die obere Troposphäre transportiert zu werden und dort die OH-Konzentration zu ver-

ringern. Im Januar führt Kohlenmonoxid ebenfalls zu einer Verringerung von OH mit maximalen Abnahmen in der oberen Troposphäre der tropischen Breiten von $8 \cdot 10^{-6}$ ppb.

8.2.6 Einfluss des Ozonregimes

Ein Vergleich der Wirkung der einzelnen Spurengase in der horizontalen Ozonverteilung (1000 hPa) gibt Aufschluss über das chemische Regime in diesen Regionen (Abbildungen 8.17, 8.18 und 8.19). Die NMHC-Emissionen bewirken nur in einzelnen Regionen Ozonzunahmen in den bodennahen Schichten. Besonders auffällig sind die Regionen, in denen eine Erhöhung der Stickoxidemissionen (Abbildung 8.19) zu einer Verringerung der Ozonkonzentration führt (Mittleuropa und Ostküste der USA). Die NMHC-Emissionen allein (Abbildung 8.18) bewirken gerade in diesen Gebieten an der Ostküste der USA im Januar einen Anstieg des bodennahen Ozons (Abbildung 8.18) um 1 bis 2 ppb (mehr als 10 Prozent). Ebenso wird in Mitteleuropa in diesem Gebiet in der planetaren Grenzschicht eine Zunahme der Ozonkonzentration um 0.5 bis 1 ppb (mehr als 3 Prozent) durch die NMHC-Emissionen berechnet. Die CO-Emissionen haben in diesen Gebieten einen nahezu vernachlässigbaren Einfluss. In den USA ergibt sich durch die CO-Emissionen eine Ozonzunahme zwischen 0.4 und 0.6 ppb, in Europa eine Zunahme zwischen 0.2 und 0.4 ppb in den Regionen der Ozonabnahme durch die Stickoxidemissionen. Insgesamt bewirken die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs in diesen Regionen einen Ozonbeitrag, der nicht bedeutend über der Wirkung der NMHC-Emissionen allein liegt. In den USA ist eine Zunahme um 1 bis 2 ppb zu beobachten. In Europa unter 1 ppb. Dies entspricht einer Änderung von weniger als 10 Prozent. Ursache hierfür ist, dass die Ozonproduktion in diesen Gebieten VOC-limitiert ist (vgl. Abschnitt 1). Dieser Fall ist im Januar bei geringen Netto-Ozonproduktionsraten in den USA und in Europa zu beobachten. Im Juli findet sich dieses Regime nur noch in Europa mit einer Ozonabnahme durch die Stickoxidemissionen von 5 Prozent. Die Abnahme durch die NMHC-Emissionen und die Gesamtemissionen beträgt hier zwischen 18 und 24 Prozent. Das bedeutet, dass die gleichzeitige Reduzierung aller drei Spurengase in diesen Regionen keine wesentliche Ozonreduzierung im Vergleich zu der alleinigen Reduktion der NMHC-Emissionen bringt. Ursache hierfür sind die hohen Stickoxidemissionen anderer Quellen, die dafür verantwortlich sind, dass hohe atmosphärische Konzentrationen der Stickoxide vorliegen, eine Titration von Ozon stattfindet und die Ozonproduktivität der Stickoxide im Sättigungsregime ist.

8.2.7 Einfluss auf das Hydroxylradikal (OH)

Die Konzentration des Hydroxylradikals bestimmt die Oxidationskapazität der Atmosphäre. Eine Änderung der atmosphärischen Verteilung durch den Straßenverkehr ändert folglich die Oxidationskapazität und somit die Lebensdauer strahlungsaktiver Spurengase, wie beispielsweise Methan. Je nach untersuchtem, emittiertem Spurengas wird sowohl eine Zu- als auch eine Abnahme der Konzentration im zonalen Mittel berechnet (Abbildung 8.25). Im Juli bewirken die Gesamtemissionen und die Stickoxidemissionen eine Zunahme der OH-Konzentration um bis zu $8 \cdot 10^{-6}$ ppb bzw. bis zu $12 \cdot 10^{-6}$ ppb. Die NMHCs alleine bewirken hier wiederum einen negativen Beitrag zur OH-Verteilung von $-5 \cdot 10^{-6}$ ppb. Ebenso führen auch die Kohlenmonoxidemissionen zu einem

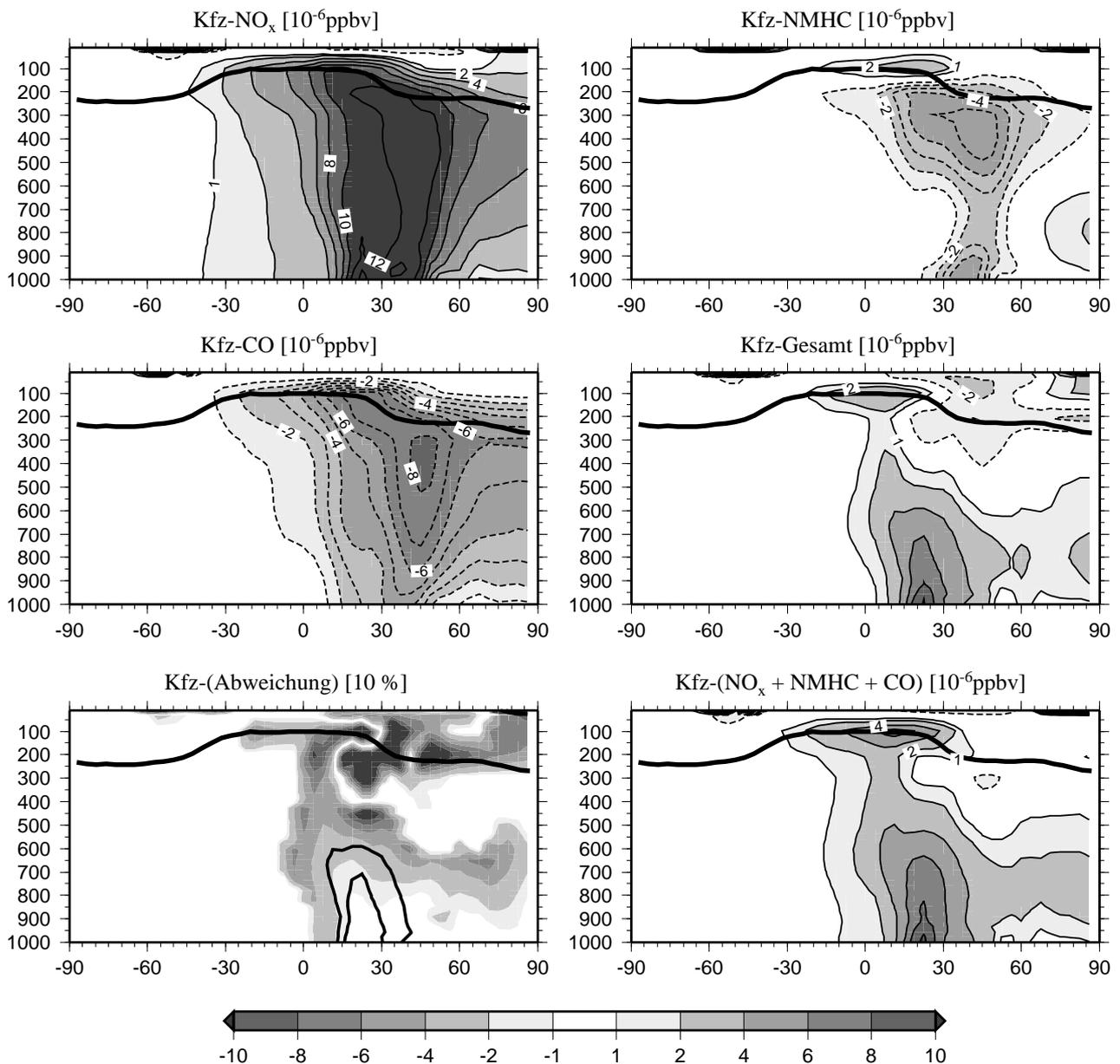


Abbildung 8.25: Einfluss der einzelnen Spurengaskomponenten NO_x (oben links), NMHC (oben rechts) und CO (Mitte links) und der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs (Mitte rechts) in der zonal gemittelten **OH-Verteilung** im Juli verglichen mit der Summe der Einflüsse der einzelnen Gase (unten rechts) und die Abweichung der Summe von dem Gesamteffekt (in %) (unten links). Bei der Abweichungen werden nur für Regionen Werte gezeigt, in denen der Gesamteffekt mehr als 10^{-6} ppb ausmacht. Zum Vergleich sind die 4 und $6 \cdot 10^{-6}$ ppb Isolinien (dicke Linie) des Gesamteffekts gezeigt.

negativen Beitrag von bis zu $-8 \cdot 10^{-6}$ ppb. Bei den Stickoxidemissionen werden die maximalen Änderungen in der gesamten Troposphäre in den Breiten 30°N bis 45°N berechnet. Die CO- und NMHC-Emissionen bewirken maximale Änderungen der OH-Konzentration in der oberen Troposphäre. Die maximale Änderung durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs und durch den Gesamteffekt aller Spurengase hingegen wird erneut in Bodennähe bei etwa 30°N berechnet

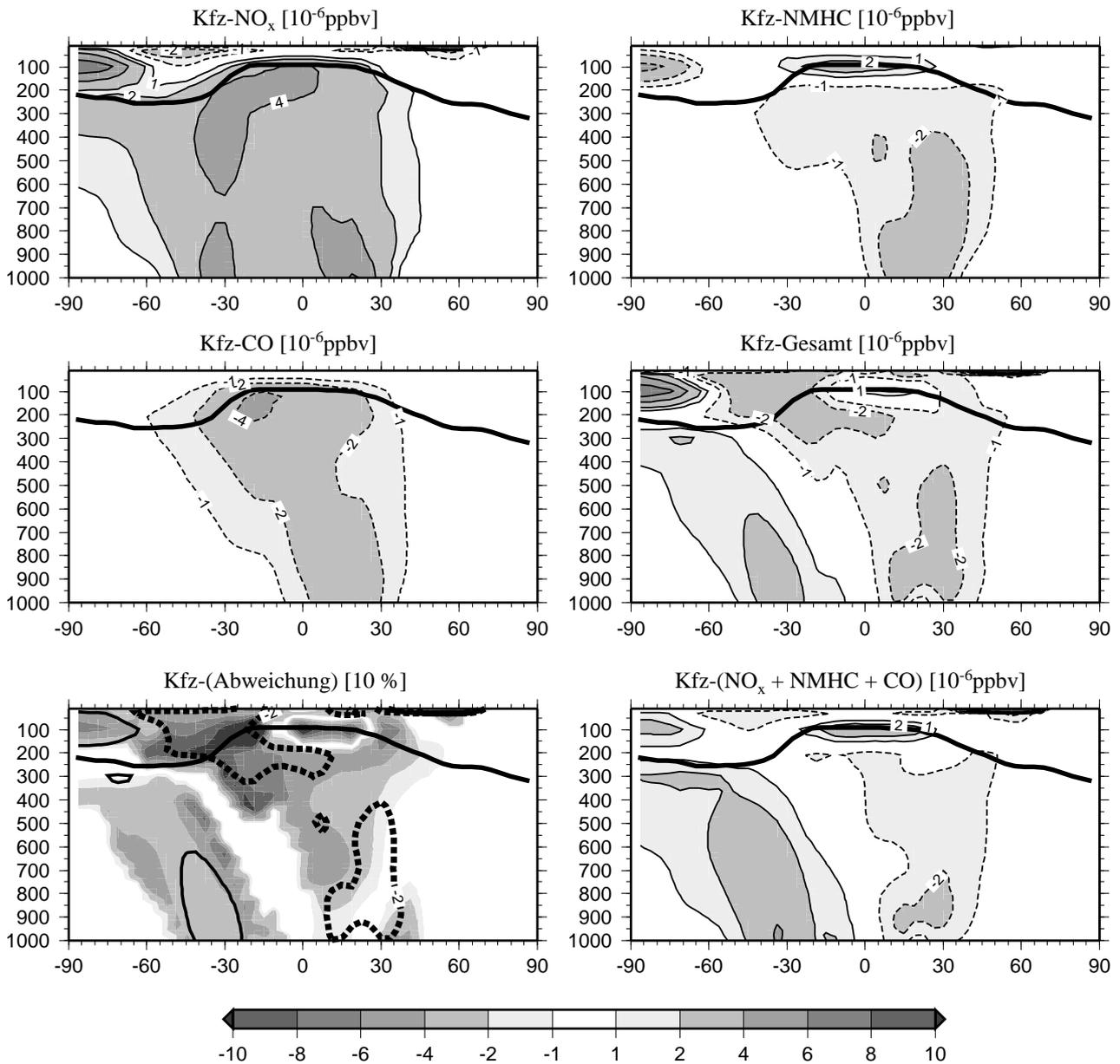


Abbildung 8.26: Einfluss der einzelnen Spurengaskomponenten NO_x (oben links), NMHC (oben rechts) und CO (Mitte links) und der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs (Mitte rechts) in der zonal gemittelten **OH-Verteilung** im Januar verglichen mit der Summe der Einflüsse der einzelnen Gase (unten rechts) und die Abweichung der Summe von dem Gesamteffekt (in %) (unten links). Bei den Abweichungen werden nur für Regionen Werte gezeigt, in denen der Gesamteffekt mehr als 10^{-6} ppb ausmacht. Zum Vergleich sind die $2 \cdot 10^{-6}$ ppb Isolinien (dicke Linie) des Gesamteffekts gezeigt.

(Abbildung 8.25). Die angeführten absoluten Beiträge entsprechen relativen Beiträgen durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs zwischen 1 und 10 Prozent (nicht gezeigt) in der unteren und mittleren Troposphäre, vor allem in der Nordhemisphäre. Die relativen Beiträge durch die Stickoxide in der nördlichen Hemisphäre betragen mehr als 5 Prozent, in mittleren Breiten mehr als 12 Prozent. Die relativen Beiträge durch die NMHC-Emissionen liegen dort bei 2 bis

10 Prozent. Ursache für die Zunahme der OH-Verteilung auf Grund der Stickoxidemissionen ist die maximale Zunahme der Ozonkonzentration in diesen Breiten (Abbildung 8.1). Ozon wiederum bildet bei seiner Photolyse ein angeregtes Sauerstoffradikal, welches mit Wasserdampf zu OH reagieren kann (Reaktion (2.13)). Dies stellt die wesentliche troposphärische Produktionsreaktion von OH dar. Das negative Vorzeichen bei der Wirkung der NMHCs und CO zeigt, dass diese Verbindungen im Juli eine Senke für OH darstellen (Reaktion (2.14) und (2.16)). Bei diesen Reaktionen wird zwar HO₂ gebildet, wodurch wiederum Ozon gebildet wird. Doch zeigt die Abnahme der atmosphärischen OH-Konzentration, dass die Produktion von OH durch Ozon schwächer erhöht ist als die Senke durch zusätzliche NMHCs und CO aus dem Straßenverkehr verstärkt wird. Der Vergleich mit der Gesamtwirkung zeigt, dass alle drei Spurengase einzeln eine deutlich Veränderung der OH-Konzentration (mehr als $4 \cdot 10^{-6}$ ppb) und damit der Oxidationsstärke besitzen. Die OH-Zunahme durch die Stickoxide ist jedoch stärker als die OH-Abnahme durch die beiden anderen Komponenten (NMHC, CO), so dass die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs insgesamt eine Zunahme der OH-Verteilung bewirken.

Im Januar ergibt sich ein deutlich anderes Bild (Abbildung 8.26). Die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs weisen in nördlichen Breiten eine Abnahme der atmosphärischen Verteilung des Hydroxylradikals um mehr als $-2 \cdot 10^{-6}$ ppb auf. Das entspricht einer Abnahme um mehr als 10 Prozent (Abbildung 8.14). In südlichen Breiten hingegen ist eine Zunahme um mehr als $2 \cdot 10^{-6}$ ppb bzw. als 3 Prozent zu verzeichnen. Die Stickoxidemissionen allein bewirken in der gesamten Troposphäre erneut eine Zunahme des OH-Radikals. Ursache hierfür ist erneut die verstärkte Produktion von Ozon und folglich von OH: Im Januar werden in den südlichen und nördlichen Tropen bis zu $4 \cdot 10^{-6}$ ppb OH durch die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs verursacht. Ebenso kommt es in der oberen Troposphäre in tropischen Breiten zu einer Zunahme um mehr als $4 \cdot 10^{-6}$ ppb. Die NMHC- und die CO-Emissionen bewirken erneut eine Abnahme der OH-Verteilung in der selben Größenordnung wie die Stickoxide. Im Januar dominiert nun in der Nordhemisphäre, im Gegensatz zum Juli, die Wirkung der NMHC-Emissionen: die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs führen zu einer verringerten OH-Konzentration. In südlichen Breiten ist die Wirkung der NMHC- und CO-Emissionen deutlich kleiner (weniger als $1 \cdot 10^{-6}$ ppb) als die der NO_x-Emissionen (mehr als $4 \cdot 10^{-6}$ ppb). So dominiert in südlichen Breiten - Südsommer - erneut die Wirkung der Stickoxide. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass in der Sommerhemisphäre das Vorzeichen der OH-Änderung durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs mit dem der Stickoxide übereinstimmt. In der Winterhemisphäre hingegen ist das vorwiegend beobachtete Vorzeichen der OH-Änderung tendenziell eine Folge der NMHC- und CO-Emissionen des Straßenverkehrs.

Linearität der Einflüsse

Um die Unsicherheit der Ergebnisse dieser Einzelgasstudien abzuschätzen, wurde die Linearität der Einflüsse überprüft: Inwiefern entspricht die Summe der in den Einzelgasstudien berechneten Wirkung der Gesamtwirkung? Dies ist besonders für die sekundären Spezies (OH und Ozon) wichtig, um die Unsicherheit der getroffenen Aussagen abzuschätzen. In Abbildung 8.25 ist der in den Einzelgasstudien ermittelte Einfluss der einzelnen Spurengase auf die OH-Verteilung dem

Effekt der Gesamtemissionen gegenübergestellt. An Hand des Vergleichs kann neben der nicht-linearen Photochemie auch analysiert werden, inwiefern die Einzelgasstudien die Wirkung der Gesamtemissionen wiedergeben.

Die summierte Wirkung der einzelnen Gase (aus den Einzelgasstudien) im Juli ergibt in der zonal gemittelten Darstellung ein ähnliches Muster wie die Wirkung der Gesamtemissionen (Abbildung 8.25). Die Abweichung der Wirkungen zeigt (Abbildung 8.25) in Regionen mit deutlichem Beitrag zur OH-Verteilung (größer als $6 \cdot 10^{-6}$ ppb) eine Überschätzung unter 20 Prozent. In Regionen mit geringeren Beiträgen zur OH-Verteilung (4 bis $6 \cdot 10^{-6}$ ppb) übersteigt die summierte Wirkung dagegen um 10 bis 40 Prozent die Wirkung der Gesamtemissionen. In den Regionen, in denen es durch die Gesamtemissionen zu einer Abnahme der OH-Konzentration kommt, findet tendenziell eine Unterschätzung durch die Summe der Wirkung der Einzelgase um mehr als 60 Prozent statt. Im Januar zeigt sich wie auch im Juli, dass in Regionen mit einer deutlichen Änderung der OH-Konzentration (Abnahme um mehr als $2 \cdot 10^{-6}$ ppb) die Abweichungen unter 40 Prozent betragen (Abbildung 8.26).

Für die in den Einzelgasstudien ermittelte Wirkung der Stickoxide auf OH bedeutet dies, dass sie in den unteren Schichten der Atmosphäre eine Unsicherheit von weniger als 20 Prozent besitzt. In Regionen, in denen dort maximale Beiträge verzeichnet werden, tritt eine Überschätzung von maximal 20 Prozent auf. Bei der Wirkung der NMHC- und CO-Emissionen im Juli besitzen die in den Einzelgasstudien berechneten maximalen Änderungen der OH-Konzentration eine höhere Unsicherheit, da gerade in der oberen Troposphäre eine Überschätzung durch die Summe der Wirkung der Einzelgase von mehr als 40 Prozent auftritt. Ursache hierfür ist, dass in diesen Regionen die Wirkung der Stickoxidemissionen ähnlich stark, wie die Wirkung der CO- und NMHC-Emissionen aus den Einzelstudien gemeinsam ist, jedoch mit entgegengesetztem Vorzeichen. Im Januar hingegen besitzen ebenfalls die Änderungen in der oberen Troposphäre - nun für die Stickoxide und CO wesentlich -eine deutlich höhere Unsicherheit, da hier Unterschätzungen um mehr als 80 Prozent auftreten. In der unteren Troposphäre (bis 500 hPa) liegen die Unter- und Überschätzungen bei weniger als 40 Prozent, wodurch die Unsicherheit der dort berechneten Änderung der OH-Konzentration in den Einzelgasstudien geringer als in der oberen Troposphäre ist. Hier verhindert die Nichtlinearität der Photochemie Einflüsse aus Einzelgasstudien mit geringeren Unsicherheiten zu erhalten.

8.2.8 Grundlegende Prozesse für die Wirkung der Straßenverkehrsemissionen

In Abbildung 8.27 sind die grundlegenden Prozesse für die Wirkung der einzelnen Spezies der Straßenverkehrsemissionen in Quell-, Abluft- und entlegenen Regionen dargestellt. In den Quellregionen sind insbesondere die Stickoxidemissionen für die Bildung von Ozon im NO_x - HO_x -Zyklus verantwortlich. Durch das vermehrte Ozon wird mehr OH über Reaktionen (2.10) und (2.13) gebildet. Die NMHC-Emissionen führen in den Quellregionen bei der Oxidation vermehrt OH in HO_2 über. Zusätzlich produzieren sie mehr HO_x als sie in der Eingangsreaktion verbrauchen. Das vermehrte HO_2 erhöht die Ozonproduktivität der Stickoxide. Im Winter nimmt HO_x so stark in den Quellregionen der Nordhemisphäre zu, dass OH trotz der relativen Abnahme im HO_x zunimmt.

Die vermehrte OH-Konzentration stellt eine verstärkte Senke für NO_x dar und es wird HNO_3 gebildet. Die Kohlenmonoxidemissionen tragen in den Quellregionen nur schwach zur Ozonbildung bei.

Aufgrund der NMHC-Emissionen wird in den transportierten Luftmassen quellenah PAN gebildet, NO_x nimmt folglich ab. HNO_3 , das aufgrund der NMHC verstärkt gebildet wurde, wird ausgewaschen, wodurch sich die NO_y -Konzentration verringert. Das entstandene PAN kann in den Abluftgebieten, insbesondere in oberen Schichten der Atmosphäre, über weite Entfernungen transportiert werden. In den Abluftgebieten zeigt sich eine durch den Straßenverkehr - insbesondere NO_x -Emissionen - erhöhte Ozonkonzentration. Die Hydroxylkonzentration wird durch die einzelnen Komponenten der Straßenverkehrsemissionen sowohl erhöht (NO_x) als auch verringert (NMHC und CO). Wenn die transportierten Luftmassen in entlegenen Regionen absinken, zerfällt PAN thermisch und NO_x wird gebildet. Dieser Prozess findet, außer in der Arktis, auch im Winter statt. Die NO_y -Konzentration ist folglich in den entlegenen Regionen durch die NMHC-

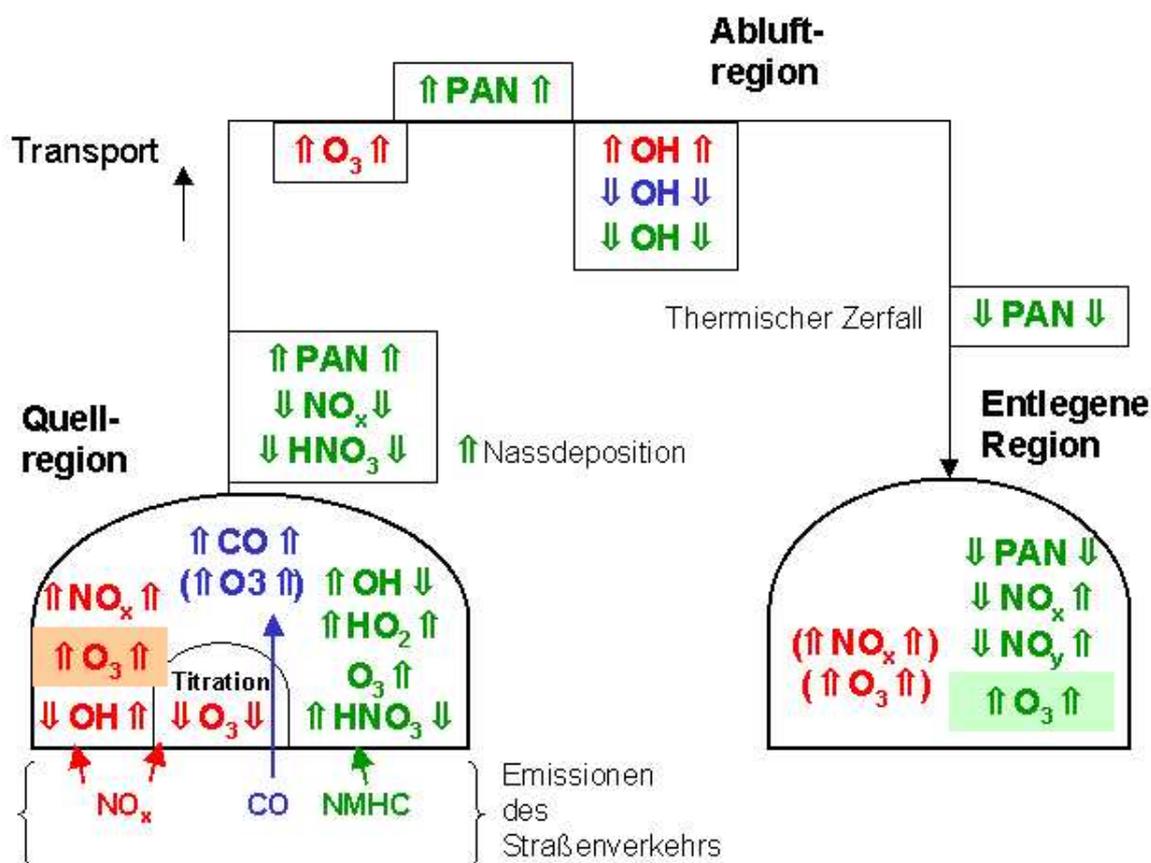


Abbildung 8.27: Prinzipielle Wirkung der Straßenverkehrsemissionen auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre in den Quell-, Abluft- und entlegenen Regionen: NO_x (rot), NMHC (grün) und CO (blau). Pfeile nach oben stellen eine Zunahme, nach unten eine Abnahme der Spezies dar. Der Pfeil rechts von der Spezies gibt den Einfluss im Januar, links von der Spezies im Juli an. Schwache Prozesse sind in Klammern gesetzt, dominierende Prozesse unterlegt.

Emissionen erhöht, da diese den indirekten Transport von NO_x (in PAN) aus den Quellregionen ermöglichen. Die freigesetzten Stickoxide besitzen in entlegenen Regionen auf Grund der geringen NO_x -Hintergrundkonzentration eine hohe Ozonproduktivität und bewirkt die Bildung von Ozon. Da NO_x auf Grund ihrer geringen Lebensdauer nur kurze Strecken transportiert werden können, ist in entlegenen Regionen die Ozonbildung auf Grund der NMHC-Emissionen deutlich stärker.

8.3 Einfluss der Aromaten

Hintergrund

Die Aromaten und deren Chemie sind in dem von *Roelofs und Lelieveld* [2000] verwendeten reduzierten Chemieschema CBM-IV nicht mehr explizit enthalten (Abschnitt 3.4). Die Emissionen des Straßenverkehrs bestehen jedoch zu einem Anteil von etwa einem Viertel aus Aromaten (Abschnitt 5.5.2). Um nun die Wirkung der nicht explizit im Schema enthaltenen Aromaten abzuschätzen, müssen diese Emissionen auf andere Weise in das Modell integriert werden. *Houweling et al.* [1998] emittieren anstatt der chemischen Spezies Trimethylbenzol (Xylen) in ihrem Schema Methylglyoxal und Alkane. Dies ist in den bereits dargestellten Simulationen und somit auch in den Ergebnissen enthalten, womit ein Anteil von etwa 20 Prozent der Aromaten implizit berücksichtigt wurde. Von den restlichen Aromaten stellt Methylbenzol (Toluol) mit knapp 30 Prozent die häufigste Komponente dar. Um nun die Wirkung der Toluolemissionen im Modell abzuschätzen, wird eine Sensitivitätsstudie gemacht, in der die stabilen Abbauprodukte der Toluoloxidation nach *Gery et al.* [1989] als Emissionen in das Modell integriert werden. Hierfür werden Methylglyoxal, Formaldehyd und höhere Aldehyde als Ersatz emittiert. Im folgenden wird in der Darstellung die Wirkung Toluol zugeschrieben, auch wenn dieses nur in Form seiner stabilen Abbauprodukte in der Simulation emittiert wurden.

Wirkung der Aromaten

Die substituierten Toluol-Emissionen bewirken im Juli eine Zunahme der Ozonkonzentration insbesondere in den Quellregionen der Nordhemisphäre (mehr als 30 ppt in Mitteleuropa, Nordindien und Ostchina). Dort stellt dies einen Anteil der Gesamtwirkung des Straßenverkehrs zwischen 0.3 und 3 Prozent dar. In obigen Regionen betragen die Anteile der durch Toluol des Straßenverkehrs gebildeten NMHCs, wie beispielsweise Formaldehyd, zwischen 0.1 und 1 Prozent. In den Regionen in denen die Toluolemissionen weniger als 0.3 Prozent (30 ppt) beitragen, liegen die Anteile dieser NMHCs niedriger als 0.1 Prozent. Das heißt, nur in Regionen mit niedrigen NMHC-Konzentrationen - im Vergleich zu den durch den Straßenverkehr gebildeten NMHC-Konzentrationen - liefern die Toluolemissionen einen Beitrag von mehr als 30 ppt (Abbildung 8.28). Die Netto-Ozonproduktionsrate nimmt in der selben Weise wie die Ozonkonzentration (*nicht gezeigt*) zu. Dies ist die Konsequenz der gleichzeitig abnehmenden Brutto-Ozonproduktion und des Brutto-Ozonabbaus. Die Brutto-Ozonproduktions- und -abbauraten ändern sich mit der abnehmenden NO_x -Konzentration (Abbildung 8.28, *rechts oben*) und zunehmenden HO_2 -Konzentration (Abbildung 8.28, *links unten*). Die Änderung der Netto-Ozonproduktionsrate be-

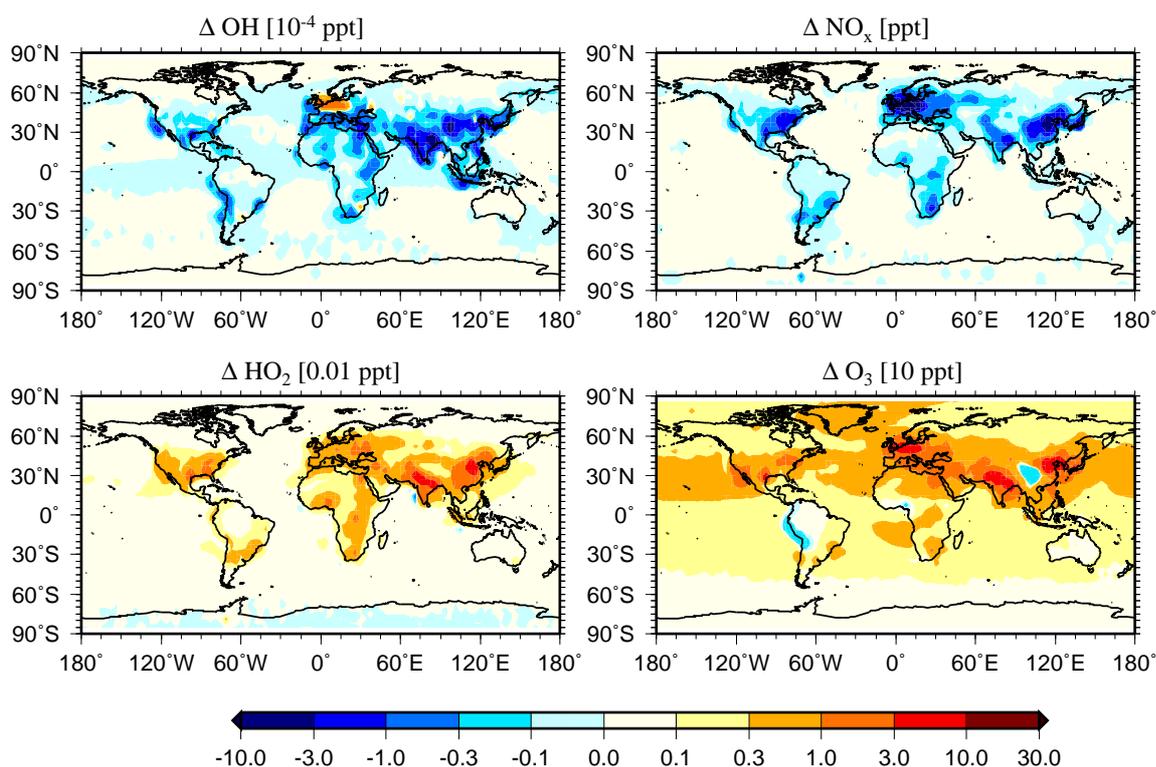


Abbildung 8.28: Wirkung der Toluolemissionen auf OH (in 10^{-4} ppt), HO₂ (in 0.01 ppt), NO_x (in ppt) und Ozon (in 10 ppt) im Juli.

trägt meist zwischen 1 und 3 Prozent, vereinzelt zwischen 3 und 10 Prozent, beispielsweise in Indien und Ostchina des durch den Straßenverkehr verursachten Gesamteffekts. Im Vergleich zur Gesamt-Netto-Ozonproduktionsrate bewirken die Ersatz-Toluol-Emissionen meist unter 1 Prozent Anteil, vereinzelt bis zu 3 Prozent. In einzelnen Regionen nimmt die Ozonkonzentration und auch die Ozonproduktionsrate auf Grund der Aromaten ab (Abbildung 8.28). Dies geschieht in Regionen, in denen durch die Aromaten zwar mehr Ozon vorhanden ist, jedoch keine verstärkte Bildung von Ozon stattfindet. Dort nimmt die zur Ozonkonzentration proportionale Brutto-Ozonabbaurate stärker zu, als die Brutto-Ozonproduktionsrate steigt, wodurch es netto zu einem Abbau von Ozon kommt (negative Netto-Ozonproduktionsrate). Dies zeigt sich beispielsweise im Himalaya.

In Mitteleuropa fällt auf, dass die OH-Konzentration in dieser Region zunimmt und nicht wie ansonsten weltweit abnimmt. Die Abnahme von OH weltweit ist durch die vermehrte Umwandlung von OH in HO₂ begründet (Abbildung 8.28, *links unten*), auf Grund der Oxidation der Kohlenwasserstoffe mit OH (Reaktion (2.14)). In Europa dominiert jedoch die vermehrte Produktion von OH durch die erhöhte Ozonkonzentration (Reaktion (2.13)). Die Toluolemissionen bewirken eine weitere Verringerung der OH-Konzentration um 3 bis 10 Prozent mehr als die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs.

Bewertung der Wirkung der Aromaten

Die in dieser Arbeit vorgenommene Abschätzung der Wirkung der Aromaten stellt eine untere Abschätzung dar. In Anbetracht des Anteils von 25 Prozent an den NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs (Massenanteil, Abschnitt 5.5.2) ist es jedoch wichtig, eine Größenordnung der Unsicherheit anzugeben, die durch ihre Nichtberücksichtigung entsteht. So zeigte sich, dass je nach Region der Einfluss des Straßenverkehrs noch um bis zu 3 Prozent höher liegen kann. Hier sind insbesondere die Regionen Europa, Indien und China beeinflusst, in denen die substituierten Toluol-Emissionen zwischen 0.1 und 1 % der Gesamtkonzentration ausmachen.

Derwent et al. [1996] schätzen den Einfluss von Aromaten für Bedingungen in Großbritannien mit 30 Prozent Beitrag zur Ozonbildung. Diese hohen Beiträge konnten in der vorgenommenen globalen Modellierung nicht berechnet werden. Die vorgenommene Abschätzung unterschätzt tendenziell die Ozonbildung auf Grund der substituierenden Emission der ersten stabilen Abbauprodukte, da die Eingangsreaktionen der Aromatenoxidation nicht abbildet werden. Weiterhin ist das Transportschema numerisch diffusiv, so dass photochemische 'Smog'-Bedingungen, wie sie beispielsweise in einer Großstadt herrschen, nicht abgebildet werden können. Der Schwerpunkt einer globalen Modellierung ist es u.a. die Fernwirkung und verantwortliche Mechanismen auf globaler Skala abzubilden. Variationen von lokalen und regionalen Verteilungen, wie z.B. der Netto-Ozonproduktion, die unterhalb der Modellauflösung liegen, können nicht bzw. nur unvollständig abgebildet werden. Somit stellt die vorgenommene Abschätzung der Wirkung von Toluol-Emissionen eine untere Grenze dar.

8.4 Einfluss auf die troposphärischen Ozonsäulendichten

8.4.1 Saisonale Änderung der Säulendichten

Die Betrachtung der Änderungen der Ozonsäulendichten erlaubt eine Quantifizierung des Einflusses des Straßenverkehrs auf die gesamte troposphärische Ozonverteilung. In Abbildung 8.29 sind die Änderungen der Ozonsäulendichten durch die Emissionen des Straßenverkehrs für die Monate Januar und Juli dargestellt. Die Beiträge der CO-Emissionen aus der Einzelgasstudie weisen maximale Beiträge von nur 0.2 DU (Dobson Einheiten) im Januar und 0.6 DU im Juli auf (Tabelle 8.2) und werden daher nicht gezeigt.

Die Änderung der troposphärischen Ozonsäulendichten ist im Nordsummer (Juli) deutlich höher als im Nordwinter (Januar). Im Juli ist die Änderung der troposphärischen Säulendichten maximal (Tabelle 8.2). Ursache hierfür ist die hohe solare Einstrahlung in den nordhemisphärischen Quellregionen, die die Photochemie verstärkt. Die Quellregionen maximaler Stärke liegen in den nördlichen Extratropen, wo etwa 75 Prozent der Emissionen freigesetzt werden (Kapitel 4). Es wird eine maximale Zunahme von 5.2 DU an der Ostküste der USA und in Mitteleuropa berechnet (Tabelle 8.2). In den Breiten nördlich von 20°N zeigen sich durch die Straßenverkehrsemissionen meist Zunahmen von mehr als 2.4 DU. Absolute Beiträge über 3.2 DU finden sich in einem zusammenhängenden Gebiet das von der Westküste der USA, über den Nordatlantik, und Europa bis nach Russland reicht. Im April und Oktober liegen die Werte deutlich niedriger (Tabelle 8.2). und

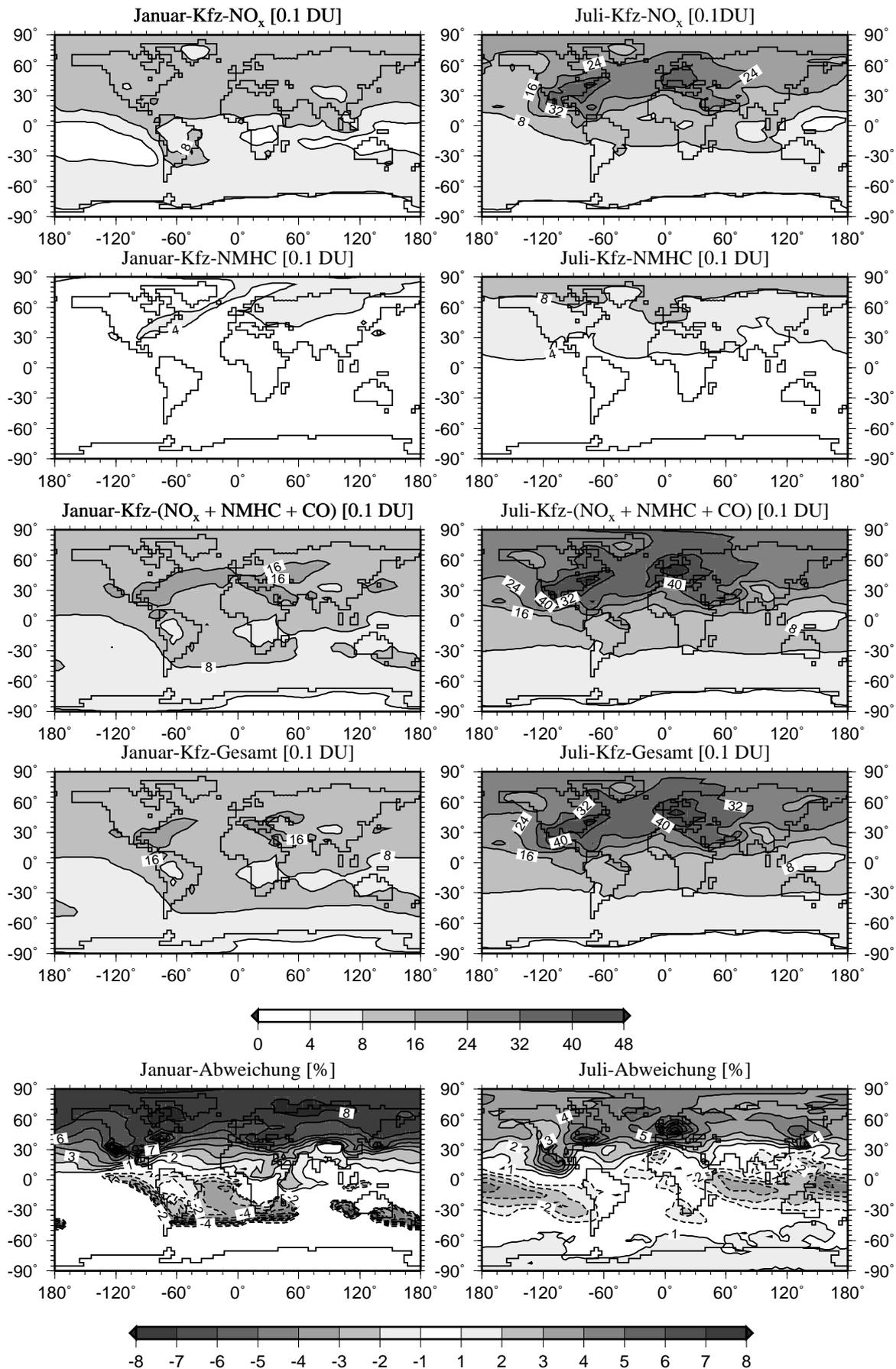


Abbildung 8.29: Vergleich der Wirkung der einzelnen Spurengase auf die Ozonsäulendichten in [0.1 DU] mit der Gesamtwirkung des Straßenverkehrs im Januar (*links*) und Juli (*rechts*). Die Abweichung (*unten*) der Summe der Einzelwirkungen von der Gesamtwirkung (in %) ist gezeigt.

es werden nur noch Werte über 2.4 DU erreicht, wobei die regional zusammenhängende Verteilung vom Osten der USA bis nach Russland erhalten bleibt (*nicht gezeigt*). Im Januar sind die Beiträge zu den Ozonsäulendichten minimal, nur noch in einzelnen Abluftregionen in den nördlichen Tropen sind Werte größer als 1.6 DU zu verzeichnen. Im regionalen Mittel liegt die Zunahme der Ozonsäulendichte durch die Gesamtemissionen im Januar bei 1.4 DU in den nördlichen Extratropen (Tabelle 8.2). Das ganze Jahr über verursacht der Straßenverkehr in der gesamten nördlichen Hemisphäre einen Beitrag von mindestens 0.8 DU. In den südlichen Extratropen zeigt die Zunahme in den Ozonsäulen einen deutlichen Nord-Süd-Gradienten. Im Juli liegen die Werte im zonalen Mittel zwischen 0.3 DU am Südpol und 0.8 DU bei 30°S. Dies sind die geringsten Werte, die zu verzeichnen sind. Im April liegen die Werte bei 40°S geringfügig um 0.1 DU höher. Im Januar liegen die Werte dort generell etwa 0.2 DU höher. Die regional gemittelten Beiträge im Januar und Juli unterscheiden sich mit Werten von 3 DU im Juli in den nördlichen Extratropen und nur 1.4 DU im Januar ebenfalls deutlich (Tabelle 8.2). Die Ausbildung von regional zusammenhängenden Gebieten mit starker Zunahme der Ozonsäulendichten weist erneut auf die hohe Bedeutung des Transports ozonreicher Luftmassen hin (vgl. Abschnitt 8.2.3): Ozon kann über mehrere Tausend Kilometer effektiv transportiert werden. So kann der Straßenverkehr auch in Nicht-Quellgebieten wie dem Nordatlantik Beiträge zu den Ozonsäulendichten von mehr als 3.2 DU im Juli bewirken. Es zeigt sich auch ein deutlicher hemisphärischer Unterschied zwischen den nördlichen (NHEx) und südlichen (SHEX) Extratropen (Tabelle 8.2) von einem Faktor 2 im Januar und einem Faktor 6 im Juli. Der Nord-Süd-Gradient ist im Januar aufgrund des südhemisphärischen Sommers und der damit verbundenen Photochemie deutlich geringer als im Juli. Im Januar (südhemisphärischer Sommer) zeigen sich in südlichen Breiten Gebiete mit einer Zunahme über 0.8 DU ausgehend von Südamerika in Richtung Osten durchgehend bis in den Südpazifik (170°W). Hierbei werden Quellregionen in Südafrika und Südwestaustralien umschlossen.

8.4.2 Wirkung in den Einzelgasstudien

In Abbildung 8.29 ist die Wirkung der NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs einerseits und der NMHC-Emissionen andererseits auf die troposphärischen Ozonsäulendichten aus den Einzelgasstudien dargestellt. Maximale Werte werden hier - wie auch bei den Gesamtemissionen - im Juli verzeichnet. Die Zunahme liegt nun niedriger bei maximal 4.0 DU, die im Osten der USA erreicht werden. Das zusammenhängende Gebiet einer durchgehenden Zunahme der Ozonsäulen erstreckt sich wiederum vom Westen der USA bis nach Russland und es werden Zunahmen bis über 2.4 DU erreicht. Im April, Juli und Oktober (*nicht gezeigt*) werden in der Regel Beiträge von 1.6 DU in allen Gebieten der nördlichen Extratropen berechnet. Im Januar dagegen wird dort nur ein Beitrag von mehr als 0.8 DU erreicht. Im regionalen Mittel sind die Stickoxidemissionen allein für etwa 70 Prozent der für die Gesamtemissionen berechneten Wirkung verantwortlich.

Die Änderung durch die NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs liegt wiederum deutlich niedriger als die Änderung durch die Gesamtemissionen oder die NO_x -Emissionen allein. Die NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs verursachen in den nördlichen Extratropen und in den Breiten 15°N bis 30°N im Juli einen Beitrag von noch mindestens 0.4 DU. Im Juli wird lokal in Europa und in nördlichen polaren Breiten eine Zunahme von mehr als 0.8 DU berechnet. Im Januar wird

Tabelle 8.2: Beitrag des Straßenverkehrs zu den Ozonsäulendichten in den Monaten Januar, April, Juli und Oktober; Maximalwert der Änderung in Dobson Einheiten [DU]; regional gemittelte Beiträge absolut und relativ für die nördlichen (NHE_x) und südlichen (SHE_x) Extratropen und die Tropen (Tro). Die Summe ist die summierte Wirkungen aus den Einzelgasstudien.

Maximaler Beitrag des Straßenverkehrs zur Ozonsäulendichte [DU]									
	Januar		April		Juli		Oktober		Mittel
Gesamt	2.1	100%	3.5	100 %	5.2	100 %	3.6	100 %	2 - 5
NO _x	1.8	86 %	2.8	80 %	4.2	81 %	3.2	89 %	80% - 90%
NMHC	0.6	29 %	0.9	26 %	1.4	27 %	0.7	19%	20 % - 30 %
CO	0.2	10 %			0.6	12 %			~ 10 %
Summe	2.1	100 %			5.7	110 %			

Regional gemittelte Beiträge des Straßenverkehrs							
	<i>Januar</i>			<i>Juli</i>			Mittel
	NHE _x	Tro	SHE _x	NHE _x	Tro	SHE _x	global
<i>Säulendichten [DU]</i>							
Gesamt	1.4	1.0	0.7	3.0	1.6	0.5	0.5 - 3.0
NO _x	1.0	0.7	0.5	2.1	1.1	0.5	0.5 - 2.1
NMHC	0.4	0.2	0.1	0.7	0.3	0.0	0 - 0.7
CO	0.1	0.1	0.0	0.4	0.2	0.0	0 - 0.4
Summe	1.5	1.0	0.6	3.2	1.6	0.5	0.5 - 3.2
<i>Relativer Beitrag aus Einzelgasstudien</i>							
NO _x	73 %	68 %	68 %	69 %	70 %	87 %	68 - 87 %
NMHC	26 %	18 %	17 %	24 %	17 %	7 %	7 - 26 %
CO	7 %	13 %	6 %	12 %	13 %	6 %	6 - 13 %
Summe	107 %	99 %	93 %	104 %	100 %	100 %	

lokal über den Quellregionen und in den Abluftgebieten der nördlichen Hemisphäre eine Zunahme der Ozonsäule von mehr als 0.4 DU berechnet. Auf der südlichen Hemisphäre werden Zunahmen in den Ozonsäulen im Mittel von 0.1 DU berechnet. Dies entspricht einem Anteil an der Wirkung der Gesamtemissionen zwischen 7 und 17 Prozent. Je nach Region schwankt dieser Anteil ansonsten zwischen 17 und 26 Prozent. Im Juli werden in den Tropen im Mittel 0.3 DU und in den nördlichen Extratropen 0.7 DU erreicht.

Die Kohlenmonoxidemissionen alleine verursachen Änderungen der Säulendichten von meist unter 0.2 DU, maximal werden 0.4 DU (nördliche Extratropen im Juli) erreicht. Der relative Beitrag zu den regionalen Beiträgen schwankt zwischen 6 und 13 Prozent (Tabelle 8.2).

Ein Vergleich der Zunahmen durch die einzelnen Spezies allein mit den Zunahmen durch die gesamten Straßenverkehrsemissionen zeigt den zentralen Einfluss der Stickoxide bei der Ozonbildung. Der Vergleich der lokalen Zunahmen zeigt absolute Unterschiede bis 0.8 DU. Diese großen

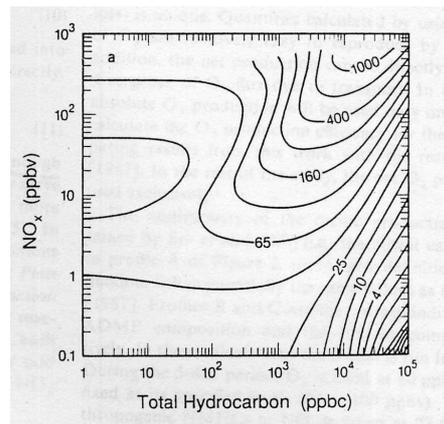


Abbildung 8.30: Isoplethendiagramm des Ozonmischungsverhältnisses (in ppb) für eine Zusammensetzung, die typisch für Gebiete mit anthropogenen Emissionen ist (nach Lin *et al.* [1988]).

Unterschiede treten in Gebieten einer starken Zunahme der Ozonsäulen auf. Dies entspricht einem relativen Unterschied von etwa 30 Prozent. Das bedeutet, dass die Stickoxide allein etwa 70 Prozent der Zunahme der Ozonsäulen verursachen. Die restlichen beiden Komponenten, NMHC und CO, bewirken deutlich geringere Beiträge zu dem Gesamteffekt der Straßenverkehrsemissionen auf die troposphärischen Ozonsäulendichten.

Linearität der Einflüsse

Die Einzelgasstudien erlauben zusätzlich, das nichtlineare Verhalten der Photochemie im Hinblick auf die Ozonsäulen zu analysieren. Auf diese Weise wird die Unsicherheit der mit den Einzelgasstudien berechneten Einflüsse auf die troposphärische Ozonverteilung abgeschätzt. Es wird betrachtet, inwiefern die Summe der Beiträge durch die Einzelkomponenten dem Beitrag durch die Gesamtemission entspricht.

In Abbildung 8.29 (*unten*) wird die Summe der Beiträge der einzelnen Spurengase mit dem Gesamtbeitrag des Straßenverkehrs verglichen. Es zeigt sich, dass es sowohl Gebiete gibt, in denen die Summe der Einzelbeiträge den Gesamteffekt überschätzt als auch solche, in denen sie den Gesamteffekt unterschätzt. Über den Quellregionen der Nordhemisphäre liegt die Summe um maximal 10 Prozent über dem Gesamtbeitrag. Im Juli findet in Regionen in denen die Gesamtemissionen einen Beitrag zu den troposphärischen Ozonsäulendichten von mehr als 3 DU besitzen eine Überschätzung um mehr als 5 Prozent statt. In tropischen Breiten hingegen, mit Beiträgen von maximal 2 DU, liegt die Summe der Beiträge um bis zu 6 Prozent unter dem Gesamtbeitrag. Diese hohe Unterschätzung wird nicht in den Quellregionen erreicht sondern in den Abluftgebieten. Regional gemittelt ist in den Tropen und den südlichen Extratropen im Juli die Summe der Einzelwirkungen so groß wie die Gesamtwirkung. Im Januar zeigt sich eine generelle Unterschätzung südlich des Äquators und eine Überschätzung von mehr als 5 Prozent in den nördlichen Extratropen. Hierbei liegt die Überschätzung im Januar in den nördlichen Extratropen bei 7 Prozent, somit höher als im Juli (4 Prozent). In den südlichen Extratropen liegt die Unterschätzung im Januar mit 7 Prozent ebenfalls deutlich höher.

In Abbildung 8.29 wird ein systematischer Zusammenhang zwischen der berechneten Über- oder Unterschätzung mit den Ozonzunahmen und Stickoxidkonzentrationen im Juli deutlich: In Regionen mit hohen Ozonzunahmen und hohen Stickoxidkonzentrationen ist im Juli die Summe der einzelnen Ozonbeiträge geringer als der Gesamtbeitrag. In Regionen mit niedrigen Ozonzunahmen und geringen Stickoxidkonzentrationen, ist die Summe der einzelnen Ozonbeiträge höher als der Gesamtbeitrag. Eine Erklärung hierfür bietet die Betrachtung eines Isopletendiagramms (Abbildung 8.30), das die Ozonproduktion als Funktion der Stickoxid- und NMHC-Konzentrationen darstellt. In stickoxidreichen Gebieten, dem oberen Regime der Graphik, zeigt sich, dass durch die alleinige Reduktion von NO_x nur eine geringe Ozonabnahme stattfindet, bis hin zu einer Ozonzunahme. Somit ist die Summe der Ozonänderungen geringer als die bei gleichzeitiger Reduktion von NO_x und NMHC mögliche Ozonänderung. Im unteren Teil der Graphik hingegen, ist durch die sinkende Steigung der Isopleten bei niedrigen Stickoxidwerten eine geringere Ozonabnahme bei gleichzeitiger Reduktion zu verzeichnen, als die Summe der einzelnen Ozonabnahmen.

Insgesamt kann man festhalten, dass die Emissionen des Straßenverkehrs Zunahmen der Ozonsäulendichten über den Quellregionen von bis zu 5.2 DU verursachen. Die Wirkung ist maximal im Juli, signifikante Beiträge zu den Ozonsäulendichten sind jedoch auch in anderen Monaten zu verzeichnen. Hauptverursacher der Ozonzunahme sind die Stickoxidemissionen, die alleine bereits etwa 70 Prozent der Zunahmen bewirken. Einen geringeren Einfluss von knapp 30 Prozent besitzen die NMHC-Emissionen und der Einfluss der CO-Emissionen des Straßenverkehrs ist mit etwa 10 % noch geringer. In den nordhemisphärischen Extratropen wird der Gesamteffekt der Emissionen durch die Summe der Einzeleffekte überschätzt (Tabelle 8.2).

8.5 Einfluss inhomogen verteilter Spezies auf die Strahlungsbilanz

Die Strahlungsbilanz der Atmosphäre wird durch die Konzentration der strahlungswirksamen Spurengase, der sogenannten Treibhausgase, bestimmt (Abschnitt 2.2). Die durch den Straßenverkehr geänderte chemische Zusammensetzung der Atmosphäre beeinflusst somit das Klima. Um diesen Einfluss zu quantifizieren wird das Konzept des Strahlungsantriebs (RF, engl. *radiative forcing*) verwendet.

Für den Strahlungsantrieb sind einerseits direkt emittierte Spezies - CO_2 , N_2O und CH_4 - verantwortlich, andererseits sekundär gebildete Spurengase, wie Ozon und Hydroxylradikal, die direkt oder indirekt die Strahlungsbilanz beeinflussen. Der direkte Strahlungsantrieb durch die Emission dieser vergleichsweise langlebigen Spurengase ist nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit. Für die Berechnung ihres Strahlungsantriebs müssten Annahmen über die Emissionen der nächsten Jahrzehnte gemacht werden. In der vorliegenden Arbeit werden die direkten Strahlungsantriebe durch CO_2 und N_2O nicht berechnet, da hierfür auf einem Zeithorizont von mindestens 100 Jahren Annahmen für die zukünftigen Hintergrundverteilungen dieser Spezies gemacht werden müssen.

Ozon ist strahlungsaktiv, wodurch die berechnete Ozonänderung durch die Emissionen des Straßenverkehrs einen direkten Strahlungsantrieb bewirkt. Das sekundäre Hydroxylradikal besitzt einen indirekten Einfluss auf die Strahlungsbilanz: Da die Verteilung des Hydroxylradikals die

Tabelle 8.3: Jahresmittel des indirekten Strahlungsantriebs durch Ozon und OH (in W/m^2) auf Grund der straßenverkehrs-induzierten Konzentrationsänderung; für Ozon an der Tropopause sind kurz- und langwelliger Anteil getrennt angegeben. Antrieb durch die Gesamtemissionen und die Emissionskomponenten des Straßenverkehrs einzeln.

Indirekter Strahlungsantrieb durch Ozon			
	Netto	Langwellig	Kurzweilig
Gesamtemissionen	0.058	0.040	0.018
Stickoxidemissionen	0.042	0.029	0.013

Indirekter Strahlungsantrieb durch OH		
	Relative Änderung der CH ₄ -Lebensdauer	Strahlungsantrieb W/m ²
Gesamtemissionen	- 0.7 %	+ 0.006
Stickoxidemissionen	- 6.1 %	+ 0.056
NMHC-Emissionen	+ 1.6 %	- 0.014
CO-Emissionen	+ 1.2 %	-0.011

Lebensdauer von Klimagasen beeinflusst, hat es indirekt einen Einfluss das Klima.

Es werden im Folgenden die indirekten Strahlungsantriebe des Straßenverkehrs durch Ozon und das Hydroxylradikal berechnet. Da es sich bei diesen beiden sekundären Spurengasen um inhomogen verteilte Spezies handelt und die Wirkung einer OH-Störung von der Temperatur und der Methankonzentration abhängt, muss bei beiden Spurengasen für die Berechnung des Strahlungsantriebs der Ort der Konzentrationsänderung durch den Straßenverkehr berücksichtigt werden.

Ozon

Da Ozon eine inhomogen verteilte Spezies darstellt muss der Strahlungsantrieb mit einer Modellsimulation berechnet werden. Für die Berechnung wird der Beitrag der Ozonkonzentration, der durch den Straßenverkehr produziert wird, als Störung im Strahlungshaushalt betrachtet. Der Unterschied zwischen den Strahlungsflüssen im gestörten Zustand (mit Straßenverkehr) und im ungestörten Zustand (ohne Straßenverkehr) gibt den Einfluss des Straßenverkehrs an. In der vorliegenden Arbeit wird der stratosphären-adjustierte Strahlungsantrieb berechnet, d.h. die Temperatur der Stratosphäre befindet sich Strahlungsgleichgewicht mit der neuen, gestörten Ozonverteilung. Das Berechnungsverfahren ist im Detail in *Stuber et al.* [2001] beschrieben.

Der Strahlungsantrieb wurde sowohl für Ozon bestimmt, das durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs gebildet wird, als auch für Ozon, das nur durch die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs gebildet wird (Tabelle 8.3). Der kurz- und der langwellige Anteil des Strahlungsantriebs sind getrennt angegeben. Im Jahresmittel ergibt sich durch die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs ein Strahlungsantrieb von 0.058 W/m^2 . Der kurzweilige Strahlungsantrieb ist etwa um den Faktor 2 kleiner als der langwellige Anteil. Die Stickoxidemissionen alleine bewirken einen um 0.016 W/m^2 kleineren Antrieb, der gut 70 Prozent des Antriebs des gesamten Straßen-

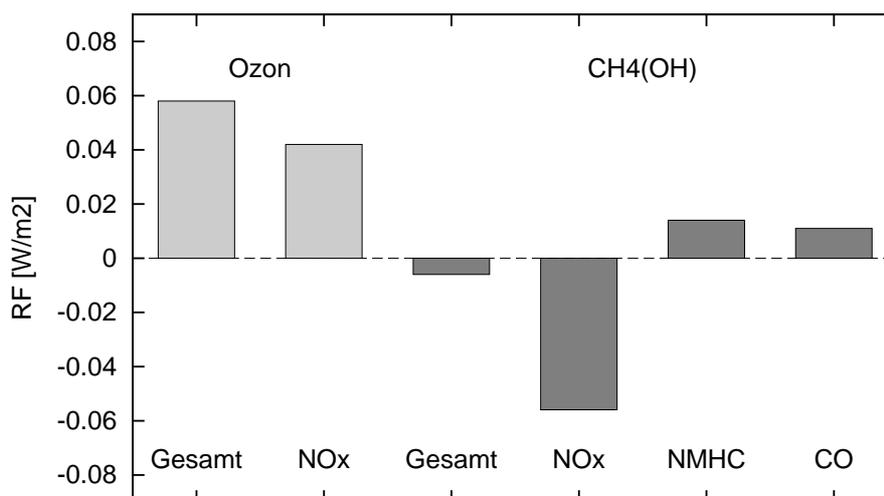


Abbildung 8.31: Strahlungsantrieb des Straßenverkehrs durch die Änderung der Ozon- und OH-Verteilung. Die Gesamtwirkung und die Wirkung der einzelnen Spezies ist (in W/m^2) dargestellt.

verkehrs-induzierten Ozons beträgt.

Hydroxylradikal

Das Hydroxylradikal besitzt einen indirekten Einfluss auf den Strahlungshaushalt, da es die Oxidation strahlungsaktiver Spezies, insbesondere auch von Methan einleitet. Dieser indirekte Strahlungsantrieb kann mit verschiedenen Methoden abgeschätzt werden. *Lawrence et al.* [2001] diskutieren in ihrer Arbeit die Notwendigkeit Konzentrationsänderungen von OH, um ihre Bedeutung bewerten zu können, mit der Reaktionsrate einer dominanten atmosphärischen Abbaureaktion zu gewichten. Entsprechend wird für die Bewertung in der vorliegenden Arbeit dem von *IPCC* [2001] vorgeschlagenen Verfahren gefolgt. Es wird die - auf Grund der durch den Straßenverkehr geänderten OH-Verteilung - neue globale Lebensdauer von Methan berechnet. Diese ist definiert als troposphärische CH_4 -Masse geteilt durch die jährliche CH_4 -Abbaumenge. In der vorliegenden Arbeit wird diese Berechnung für die Troposphäre bis zu einer Obergrenze von 200 hPa durchgeführt. Als Ergebnis zeigt sich eine prozentuale Änderung der Lebensdauer von Methan (Tabelle 8.3), die für die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs - 0.7 % beträgt. Wie die Einzelgasstudien zeigen, ist die Gesamtwirkung das Resultat des Zusammenspiels der entgegengesetzten Wirkung der einzelnen Spurengase (Tabelle 8.3). Die Stickoxidemissionen bewirken eine Abnahme der Methanlebensdauer (- 6.1 %), während die CO- und NMHC-Emissionen einzeln eine Zunahme der Lebensdauer um 1.2 bzw. 1.6 % bewirken. Um aus dieser geänderten Lebensdauer den Einfluss auf die Strahlungsbilanz zu bestimmen, wird für den Gleichgewichtszustand mit einem vereinfachten Zusammenhang nach *IPCC* [2001] der Strahlungsantrieb berechnet. Um der festen unteren Randbedingung von Methan - die Methankonzentration wird an der Erdoberfläche im Modell vorgeschrieben - Rechnung zu tragen (also der abgeschwächten Reaktion des chemischen Zusammensetzung) wird die berechnete prozentuale Änderung von Methan nach *IPCC* [2001] mit dem Faktor 1.4 multipliziert. Der hieraus resultierende Strahlungsantrieb des Straßenverkehrs beträgt im globalen Jahresmittel $0.006 \text{ W}/\text{m}^2$.

Die Beiträge der einzelnen Spezies besitzen unterschiedliche Vorzeichen und Stärken: während die Stickoxidemissionen zu einem negativen Strahlungsantrieb führen, bewirken die CO- und NMHC-Emissionen einen positiven Strahlungsantrieb auf die Atmosphäre. Es ist für die Berechnung des Gesamteffekts also wichtig, die einzelnen Komponenten - NO_x, CO und NMHC - der Straßenverkehrsemissionen zu berücksichtigen (Abbildung 8.31). Der Strahlungsantrieb der einzelnen Komponenten ist am stärksten für die Stickoxide alleine, die einen positiven Strahlungsantrieb von 0.056 W/m² besitzen. Die NMHC- und CO-Emissionen bewirken auf Grund der verkürzten Lebensdauer von Methan einen negativen Strahlungsantrieb von 0.014 bzw. 0.011 W/m². Die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs besitzen im Jahresmittel nur einen geringen gemittelten Strahlungsantrieb von etwa 0.006 mW/m². Wichtig ist es jedoch hierbei zu notieren, dass dieser Strahlungsantrieb der Gesamtemissionen, also der Einfluss auf die Bodentemperatur räumlich und zeitlich inhomogen ist. So bewirken beispielsweise die Gesamtemissionen im Januar eine Abnahme der OH-Konzentration in der Nordhemisphäre und eine Zunahme in der Südhemisphäre. Zeitlich inhomogen heisst in diesem Fall, dass die Gesamtemissionen sowohl zu einem positiven - Januar bis Mai - als auch zu einem negativen - Juni bis Dezember - Strahlungsantrieb auf die Atmosphäre führen. Die Wirkung solch inhomogener Strahlungsantriebe ist derzeit noch unbekannt, doch werden zumindest regionale Unterschiede in der Reaktion der Bodentemperatur, und eventuell Unterschiede in der global gemittelten Reaktion des Klimasystems, erwartet [Prather und Sausen, 1999].

Kapitel 9

Diskussion und Bewertung

Zur Beantwortung der Frage nach dem globalen Einfluss der Straßenverkehrsemissionen auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre und auf das Klima, muss auf Simulationen mit einem globalen Modell und auf Abschätzungen der Emissionsmengen zurückgegriffen werden. Diese Vorgehensweise beinhaltet Unsicherheiten, die im Folgenden eingehender untersucht werden sollen. Diese Erkenntnisse über die Unsicherheit der Ergebnisse und der Vergleich mit existierenden Arbeiten bilden die Grundlage für eine Bewertung. Für eine Bewertung der mit dem Klima-Chemie-Modell erzielten Ergebnisse ist somit eine Fehlerbetrachtung nötig. In diesem Zusammenhang wird die Frage diskutiert, inwiefern das Modell ein realistisches Abbild der Atmosphäre und damit des tatsächlichen Einflusses des Straßenverkehrs wiedergibt.

Auf Grund der hohen Komplexität des Modellsystems ist keine Fehlerrechnung im klassischen Sinne möglich, weshalb die Unsicherheit der berechneten Wirkung abgeschätzt wird, indem Unsicherheiten der wichtigsten Komponenten der Simulation diskutiert und bewertet werden. Die Betrachtung in dieser Diskussion geht von der Unsicherheit der Eingangsdaten, über die Abbildung der nichtlinearen Photochemie im Modell und der Modellauflösung bis hin zu den berechneten Strahlungsantrieben.

Für die berechneten globalen Emissionsmengen des Straßenverkehrs (NO_x , CO, NMHC) wurden relative Unsicherheiten im Bereich von 25 bis 50 Prozent abgeschätzt. Die Stickoxidemissionen (etwa 8 Tg [N]) sind mit der geringeren Unsicherheit von 25 Prozent behaftet, während die Formaldehydemissionen gut 50 Prozent Unsicherheit aufweisen. Da diese Emissionen als Randbedingungen in das Modell einfließen, setzt sich diese Unsicherheit im Modell fort. In Quellregionen bedeutet dies (bei Annahme eines linearen Verhaltens) eine Unsicherheit des Beitrags zur NO_x -Konzentration von generell 25 bis 50 ppt und in Zentren mit sehr hohen NO_x -Konzentrationen bis zu 250 ppt Unsicherheit. Ebenso besitzt der CO-Beitrag eine Unsicherheit von einigen ppb. Der Einfluss der primären Spezies (wie NO_x , CO, NMHC) auf die sekundären Spezies (wie Ozon, OH) ist auf Grund der komplexen Troposphärenchemie nichtlinear. Eine Analyse des Einflusses der Unsicherheiten in den primären Spezies auf die sekundären Spezies Ozon und Hydroxylradikal ist mit erneuten umfangreichen Szenariosimulationen als Sensitivitätsstudien möglich. Eine weniger rechenzeitintensive Variante für eine Abschätzung beruht auf der Analyse des photochemischen Gleichgewichts. Hierzu wird der mit Chemiemodellen ermittelte Zusammenhang der Ozonproduktion mit der Stickoxidkonzentration verwendet, um die durch typische Änderungen der Spu-

rengaskonzentrationen entstehenden Ozonvariation zu bestimmen. Hieraus wird die Unsicherheit der berechneten Ozonkonzentration auf Grund einer Unsicherheit der verwendeten Stickoxidkonzentration abgeschätzt. Für diese Abschätzung werden die in den Arbeiten von *Lin et al.* [1988] dargestellten Ozonproduktivitäten der Stickoxide als Funktion der Stickoxidkonzentration herangezogen. *Lin et al.* [1988] berechneten mit einem 1-dimensionalen Chemiemodell den Verlauf der Ozonproduktivität der Stickoxide für typische ländliche und städtische Bedingungen. Eine Unsicherheit der Stickoxidkonzentration von 25 % bedingt bei einer Stickoxidkonzentrationen von 100 ppt auf Grund der sich ändernden Ozonproduktivität eine maximale Änderung der Stickoxide um 30 %. Die Unsicherheit der NMHC-Emissionen bewirkt je nach Hintergrundkonzentration der Stickoxide und der NMHCs stark unterschiedliche Unsicherheiten für Ozon, wie mit Hilfe des Isoplethendiagramms (Abbildung 8.30) abgeschätzt wird. Bei mittleren Konzentrationen ergibt sich eine resultierende Unsicherheit der Ozonkonzentration die geringer ist als die Unsicherheit der NMHCs. Da die Wirkung der NMHCs und CO auf Ozon um den Faktor 2 bzw. 10 geringer ist (Abschnitt 8.4), ist insbesondere der Einfluss der Unsicherheit auf Grund der Stickoxidkonzentrationen von 30 % für die Ozonkonzentration wesentlich.

Das Schicksal der emittierten Spurenstoffe im Modell wird entscheidend von dynamischen Prozessen beeinflusst. Ein Vergleich des Modells ECHAM4 mit Beobachtungsdaten [*Reithmeier et al.*, 2001] zeigte, dass eine zu geringe Durchmischung der Grenzschicht besteht. Diese geringe Durchmischung führt zu einer Überschätzung der Konzentrationen in der Bodenschicht der Quellregionen um einen Faktor 2. In Abluftregionen, in denen Absinkbewegungen stattfinden, bewirkt dies hingegen eine Unterschätzung von Konzentrationen von Spurengasen die in die Grenzschicht eingemischt werden. Für Quellregionen hat dieser Effekt in zweierlei Hinsicht Konsequenzen: Erstens finden sich auf Grund der geringen Durchmischung höhere Konzentrationen aller emittierten und auch gebildeten (sekundären) Spezies in der Grenzschicht. Zweitens führen die erhöhten Stickoxidkonzentrationen zu einer Veränderung der Ozonproduktivität der Stickoxide im Modell (Abbildung 8.30). Die Ozonproduktivität kann sowohl überschätzt (bei geringen NO_x -Konzentrationen) als auch unterschätzt (bei hohen NO_x -Konzentrationen) werden. Hierbei kann nur mit obiger Betrachtung der nichtlinearen Ozonproduktivität eine Unsicherheit der Ozonkonzentration abgeschätzt werden. In Quellregionen werden im Mittel etwa 1 bis 3 ppb NO_x durch Emissionen verursacht. Dieser Beitrag zur Konzentration kann um den Faktor 2 überschätzt werden, wodurch sich in Quellregionen (bei etwa 3 ppb NO_x) eine Überschätzung der Ozonproduktivität von 20 Prozent und in Abluftregionen (10 bis 30 ppt) eine Überschätzung von etwa 25 Prozent nach *Lin et al.* [1988] ergibt. Diese Abschätzung gibt hiermit eine obere Grenze für die Über- und Unterschätzung der Ozonkonzentration von maximal 1 ppb in Bodennähe (1000 hPa) an. Außerdem erweist sich ECHAM4 [*Reithmeier et al.*, 2001] in der oberen Troposphäre als zu diffusiv. Da jedoch der Schwerpunkt der Betrachtung der Wirkung des Straßenverkehrs auf der unteren und freien Troposphäre liegt, kann die starke Diffusivität in der oberen Troposphäre hier vernachlässigt werden.

Der Vergleich von Beobachtungsdaten mit den durch den GOME-Sensor gemessenen Säulendichten von NO_2 zeigte, dass in industrialisierten Regionen eine Unsicherheit der Modelldaten von 20 Prozent besteht (Abschnitt 4.2.4). Hierbei lässt sich im Vergleich nicht abschließend klären, ob das Modell grundsätzlich zu hohe oder der Satellit grundsätzlich zu niedrige Konzen-

trationen angibt. Ursache für Unterschätzungen in den Satellitenmessungen sind die verwendeten optischen Verfahren, die in der Troposphäre bzw. in Bodennähe die geringste Sensitivität besitzen, da Absorptionslinien im Spektrum teilweise nahe der Sättigung liegen. Außerdem sind die Absorptionslinien in den unteren Schichten der Atmosphäre durch den höheren Druck stärker verbreitert, wodurch sie bei gleicher absorbierender Spurengasmenge weniger stark ('tief') sind und somit vermehrt im Rauschen liegen. Der Vergleich der Ozonmischungsverhältnisse im Modellsystem ECHAM4/CBM-IV mit Radiosonden [Roelofs und Lelieveld, 2000] zeigte die grundlegende Abbildung der Verteilungen im Modellsystem.

Das im Modellsystem eingesetzte Chemiemodul bestimmt entscheidend den im Modell berechneten Einfluss von emittierten Spezies auf die simulierte chemische Zusammensetzung der Atmosphäre. In der vorliegenden Arbeit wurde das Chemiemodul CBM-IV [Gery *et al.*, 1989] in modifizierter Form eingesetzt [Houweling *et al.*, 1998], welches die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe umfasst (Abschnitt 3.4). Auch Studien mit dem Chemiemodul CHEM [Hein *et al.*, 2001] in Verbindung mit ECHAM4 [Matthes *et al.*, 2001] zeigten die im Winter deutlich erhöhten relativen Beiträge der Stickoxidverteilung des Straßenverkehrs zu den Stickoxidkonzentrationen in oberen Schichten der Troposphäre. Ebenso zeigten sich in tropischen Breiten Beiträge zu den Massenmischungsverhältnissen mit der gleichen Stärke wie in den nördlichen Breiten. Das Chemieschema CHEM umfasst jedoch nicht die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe, wodurch wesentliche Reaktionen für die Ozonbildung vernachlässigt werden. So zeigten Houweling *et al.* [1998] den Einfluss der NMHC-Chemie auf die Ozonbildung und geben in Quellregionen eine Änderung der berechneten Ozonwerte um mehr als 30 Prozent allein durch die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe an. Dies verlangt, dass die Berechnung der Wirkung der Straßenverkehrsemissionen auf die chemische Zusammensetzung der Troposphäre mit einem Chemiemodul mit höheren Kohlenwasserstoffen vorgenommen wird. In der vorliegenden Arbeit ist dies durch Verwendung von CBM-IV in ECHAM4 [Roelofs und Lelieveld, 2000] geschehen, wodurch die erzielten Ergebnisse den Effekt der NMHC-Chemie beinhalten.

In der vorliegenden Arbeit wird die Wirkung des Straßenverkehrs auf globaler Skala analysiert. Hierbei zeigte sich in Quellregionen der Nordhemisphäre (Ostküste der USA, Mitteleuropa) im Januar und in Europa ebenfalls im Juli eine Titration von Ozon ($NO + O_3 \rightarrow NO_2 + O_2$) auf Grund der emittierten Stickoxide (Abschnitt 8.2.3): Verringerte Stickoxidemissionen (des Straßenverkehrs) führten in Mitteleuropa nicht zu einer Ozonreduzierung, sondern zur einer Ozonzunahme. Diese im globalen Modell berechnete Ozonzunahme muss in Anbetracht der numerischen Diffusivität im Modell (siehe Abschnitt 3.3) weitergehend bewertet werden. Fraglich ist nun, inwiefern dieser Effekt durch die verwendete horizontale Modellauflösung von ECHAM4 beeinflusst ist. Die numerische Diffusivität verursacht, je nach chemischem Regime der Ozonproduktion, eine Über- oder Unterschätzung der Ozonproduktivität im Modell: Im Produktionsregime wird die Ozonproduktivität unterschätzt, im Sättigungsregime jedoch überschätzt. Ursache ist die stärkere Verteilung der Stickoxide im Modellgitter und die daraus resultierenden geringeren Stickoxidkonzentrationen, die wiederum die Ozonproduktivität der Stickoxide beeinflusst (Abschnitt 2.4). Diese Titration von Ozon wird jedoch auch in höher auflösenden - mesoskaligen - Modellsimulationen gefunden. Schell *et al.* [2000] finden durch mesoskalige Modellierung für Norddeutschland eine Ozonzunahme auf Grund einer 35-prozentigen Reduktion der NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs (Ab-

schnitt 2.6). Das in dieser Arbeit gefundene Ergebnis steht im Einklang mit der in mesoskaligen Modellen berechneten Wirkung. Dennoch sind die Ergebnisse nicht austauschbar, da ECHAM4 nur in der Lage ist solche Phänomene auf einer Skala von einigen hundert Kilometern (wie z.B. in industrialisierten Regionen in der nördlichen Hemisphäre) abzubilden, regionale Effekte beispielsweise in Stadtnähe können jedoch nicht aufgelöst werden. Somit macht das Ergebnis der in dieser Arbeit durchgeführten Modellierung deutlich, dass auf globaler Skala eine alleinige Verringerung der Stickoxide nicht in allen Gebieten - insbesondere nicht im Osten der USA und in Mitteleuropa - eine Ozonreduzierung bewirkt. Für die in der vorliegenden Arbeit gemachten Aussagen zur Wirkung des Straßenverkehrs stellt die grobe Modellauflösung auch in den industrialisierten Regionen der Nordhemisphäre keine Einschränkung für die Gültigkeit dar, da sie ausreichend ist, um die geographischen Variationen abzubilden. Dennoch werden in einem globalen Modell beispielsweise keine regional, zeitlich und räumlich begrenzten Ozonkonzentrationsmaxima abgebildet.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden quantitative Aussagen über die Beeinflussung der atmosphärischen Verteilung von Ozon auf globaler Skala durch den Straßenverkehr gemacht. Für den Vergleich der mit ECHAM4/CBM-IV berechneten Wirkung des Straßenverkehrs auf die Atmosphäre mit anderen globalen Modellstudien stehen nur die Arbeit von *Valks und Velders* [1999] und *Granier und Brasseur* [2003] zur Verfügung. *Valks und Velders* [1999] geben für den Einfluss der Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs im Januar einen Beitrag zur zonal gemittelten Ozonverteilung von maximal 2 ppb in der freien Troposphäre und insgesamt mehr als 1 ppb in der gesamten Troposphäre der nördlichen Extratropen an. Sie berechnen im Juli eine maximale Änderung der troposphärischen Ozonverteilung von 2.5 ppb in Bodennähe und mehr als 2 ppb in der freien Troposphäre. Die im Rahmen dieser Arbeit berechneten maximalen Beiträge liegen in beiden Monaten höher: im Januar bei mehr als 2 ppb in Bodennähe und im Juli bei mehr als 4 ppb bis in die freie Troposphäre (Abbildung 8.2). Das von *Valks und Velders* [1999] verwendete Modell MOGUNTIA besitzt eine horizontale Auflösung von $10^\circ \times 10^\circ$ Breite und Länge, wodurch es zu der oben beschriebenen Über- und Unterschätzung der Ozonproduktivität kommt. So wird mit ECHAM4 in Mitteleuropa beispielsweise Titration von Ozon in etwa 20 Gitterzellen durch die Stickoxidemissionen berechnet. In MOGUNTIA entsprechen 20 Gitterzellen von ECHAM4 (T30) gut zwei Gitterzellen, da die Auflösung deutlich gröber ist. Mit dieser groben Auflösung können kleinskalig strukturierte Phänomene und Prozesse in Regionen (wie z.B. Europa) nicht befriedigend abgebildet werden. Außerdem verwendet MOGUNTIA nicht wie ECHAM4 'online' berechnete Photolyseraten, sondern verwendet vorberechnete 15-Tage-Mittelwerte. Da die realitätsnahe Abbildung von Photolyseprozessen wesentlich für die Berechnung photochemischer Reaktionen ist, werden in ECHAM4 diese Prozesse realistischer abgebildet. Die verringerte Ozonbeiträge sind vermutlich durch die in MOGUNTIA vorberechneten Photolyseraten zu erklären. Die Regionen mit maximalen Beiträgen finden sich - im Januar und Juli - in Übereinstimmung in beiden Modellen bei etwa 30°N . Im Januar reichen die maximalen Beiträge bei *Valks und Velders* [1999] jedoch nicht bis in Bodennähe (400 hPa bis 800 hPa), während sie sich bei den in dieser Arbeit vorgestellten Berechnungen in einem Höhenbereich vom Boden bis in die freie Troposphäre (600 hPa) erstrecken. Eine mögliche Ursache hierfür kann erneut die vereinfachte Abbildung der Photochemie sein, die die insbesondere in der Grenzschicht ablaufende komplexe Photochemie nur unzureichend abbildet. Eine andere mögliche Ursache - nun für eine Überschätzung durch ECHAM4

- ist die zu schwache Durchmischung in der Grenzschicht, die eine zu hohe Akkumulation in Bodennähe bewirkt. Im Juli finden sich bei *Valks und Velders* [1999] - wie auch in dieser Arbeit - die maximalen Beiträge in Bodennähe. Erneut liegen die absoluten Beiträge in ECHAM4/CBM-IV deutlich höher (4 ppb) als in MOGUNTIA (nur 2.5 ppb) [*Valks und Velders*, 1999]). *Granier und Brasseur* [2003] geben für die NO_x- und CO-Emissionen des Straßenverkehrs einen Einfluss auf die Ozonverteilung in Bodennähe von 10 bis 15 % (5–10 ppb) in Nordamerika, Europa und Ostasien an. In der vorliegenden Arbeit wurde auf Grund der Gesamtemissionen und der Stickoxidemissionen alleine eine etwas höhere Ozonzunahme in diesen Gebieten von mehr als 16 % berechnet. Stärkere Unterschiede in der Wirkung auf die Ozonverteilung zwischen NO_x- und Gesamtemissionen zeigen sich insbesondere im Pazifik und regional im Atlantik. Dort werden auf Grund der Gesamtemissionen deutlich höhere Beiträge (mehr als 8 %) als durch die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs (mehr als 4 %) berechnet. Die unterschiedliche Wirkung der NO_x-Emissionen alleine und der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs findet sich auch in den Ergebnissen von *Granier und Brasseur* [2003] wieder. Auch sie finden - wie in der vorliegenden Arbeit bei der Wirkung der Stickoxidemissionen - deutlich geringere Beiträge über den Ozeanen der Nordhemisphäre. Ursache hierfür ist die fehlende Berücksichtigung der NMHCs, die über die Bildung von PAN die Ozonkonzentration in entlegenen Regionen erhöhen. Der Vergleich mit *Granier und Brasseur* [2003] zeigt, dass die in der vorliegenden Arbeit für den Einfluss der Stickoxidemissionen berechneten Ozonbeiträge durch den Straßenverkehr vergleichbare Werte liefert. Die Gesamtwirkung des Straßenverkehrsemissionen (einschließlich NMHCs) unterscheidet sich insbesondere in entlegenen Regionen. Es wird deutlich, dass für die vollständige Modellierung des Einflusses des Straßenverkehrs, die NMHC-Emissionen in geeigneter Weise berücksichtigt werden müssen.

Für den Beitrag zu den NO_x-Konzentrationen über den Ozeanen geben *Granier und Brasseur* [2003] typischerweise 0 bis 4 % (etwa 1 ppt) an. In der Nähe von Küsten und Inseln werden bis zu 35% Zunahme berechnet. Der Vergleich mit der in dieser Arbeit berechneten Wirkung zeigt, dass die Stickoxidemissionen alleine eine vergleichbare Wirkung auf die NO_x-Konzentrationsverteilung besitzen. Nur in der Südhemisphäre werden in den Abluftgebieten der Quellregionen in der vorliegenden Arbeit deutlich höhere Beiträge berechnet, beispielsweise mehr als 16 % vor der Küste von Südamerika und Ozeanien. Der Vergleich mit der Wirkung der Gesamtemissionen (im Unterschied zu *Granier und Brasseur* [2003] inklusive NMHC-Emissionen) zeigt jedoch deutliche Unterschiede über den Ozeanen. Regionen mit Beiträgen unter 4 % verschwinden in der Nordhemisphäre im Atlantik und Ostpazifik fast vollständig und in weiten Teilen werden Beiträge zwischen 16 und 32 % berechnet. Die geringeren Ozonzunahmen kommen dadurch zustande, dass der wesentliche Prozess für die Ozonbildung in entlegenen Regionen - die Bildung von PANs auf Grund der NMHC-Emissionen - in *Granier und Brasseur* [2003] nicht berücksichtigt wird.

Nun wurde mittels der Simulationen ein Anstieg des troposphärischen Ozons auf Grund des Straßenverkehrs berechnet. Fraglich ist, inwiefern der berechnete Anstieg dem Einfluss des Straßenverkehrs in der realen Atmosphäre entspricht. Hier können Simulationen von präindustriellen Verhältnissen Aufschluss geben, in dem sie mit dem in Messungen beobachteten Anstieg innerhalb der letzten 100 Jahren verglichen werden. Hiermit kann geklärt werden, inwiefern die Modelle in der Lage sind, eine Atmosphäre mit geringeren Spurengaskonzentrationen

abzubilden. Dies ist entscheidend, um Änderungen der chemischen Zusammensetzung der Modellatmosphäre auf die reale Atmosphäre übertragen zu können. Mit dem in dieser Arbeit verwendeten Modell ECHAM4 wurde von *Roelofs et al.* [1997] die Ozonkonzentrationsverteilung einer Simulation der präindustriellen mit der der heutigen Zusammensetzung verglichen. Sie finden im Jahresmittel Zunahmen des Bodenozone in Payerne (47°N, 7°O) von 13 ppb auf 31 ppb. An weiteren Stationen finden sie Zunahmen des Jahresmittels um etwa 13 ppb in der Nordhemisphäre, in Mauna Loa (20°N, 156°W) und in Mace Head (53°N, 10°W). Dies stellt eine Verdopplung der Ozonkonzentrationen dar, vereinzelt sogar mehr. In der Südhemisphäre finden *Roelofs et al.* [1997] Zunahmen um 9 ppb (Cape Grim, 41°S, 145°O). Messungen vom Ende des letzten Jahrhunderts zeigen, dass die Bodenkonzentrationen in Europa bei etwa 10 ppb lag [*Volz und Kley*, 1988] und somit seitdem mindestens um den Faktor 2 zugenommen hat. *Marenko et al.* [1994] finden an hochgelegenen Messstationen (etwa 2000 m über NN) eine Zunahme auf Werte von nahezu 50 ppb, also einen Faktor fünf im Vergleich zu den Messungen aus Montsouris [*Volz und Kley*, 1988]. Für den Vergleich der Bodenmessungen wird Payerne ausgewählt, da diese Station die europäische Hintergrundverteilung widerspiegelt. *Roelofs et al.* [1997] finden eine ähnlich starke Zunahme der heutigen im Vergleich zu der präindustriellen Ozonverteilung. Die von *Marenko et al.* [1994] angegebene Zunahme um den Faktor fünf wird in ähnlicher Stärke in Radiosondenmessungen über Boulder, USA wiedergegeben. Das Modell ist also in der Lage, die Größenordnung des beobachteten Anstiegs wiederzugeben. Somit kann die berechnete Ozonzunahme durch den Straßenverkehr als Größenordnung für die tatsächlich dem Straßenverkehr als zusätzliche Quelle zuzuordnenden Beitrag gesehen werden. In der vorliegenden Arbeit wurde an den oben genannten drei Stationen eine Ozonänderung um etwa 5 ppb berechnet, somit etwa ein Drittel der mit Simulationen berechneten troposphärischen Zunahme des Ozons. In Mace Head liegt der Beitrag durch den Straßenverkehr bei knapp 40 Prozent, in Trivandrum bei mehr als 80 Prozent und in Mauna Loa bei 50 Prozent. Somit liegt der relative Anteil des Straßenverkehrs an der gesamten Änderung der Ozonsäulen tendenziell höher als der Anteil der Emissionen an den Gesamtemissionen.

Auch die Radiosondenmessungen der letzten Jahrzehnte zeigen einen Anstieg des troposphärischen Ozons. Dieser beträgt in der Troposphäre (Messung über der Station in Hohenpeißenberg) in der Größenordnung von 10 Prozent pro Dekade (1967-1997) [*Claude*, 2000; *Oltmans et al.*, 1998]. Auf 40 Jahre hochgerechnet entspricht dies in der unteren Troposphäre Zunahmen in der Größenordnung von etwa 20 ppb und in der oberen Troposphäre von etwa 80 ppb. Die Modellsimulation errechnete nun für den Straßenverkehr eine Zunahme von mehr als 5 ppb in Bodennähe und den oberen Schichten, entsprechend 10 Prozent relativem Beitrag. In den oberen Schichten werden ebenfalls etwa 5 ppb Beitrag berechnet, dies entspricht jedoch einem relativen Beitrag von weniger als 10 Prozent. Der Straßenverkehr verursacht etwa 40 Prozent der Stickoxidemissionen und etwa 30 Prozent der anthropogenen NMHC-Emissionen. Somit spiegelt der am Boden berechnete Einfluss des Straßenverkehrs in etwa den 30-prozentigen Anteil des Straßenverkehrs an den Stickoxidemissionen wider. In der oberen Troposphäre besitzt der Straßenverkehr jedoch nur einen geringeren Einfluss auf die atmosphärische Ozonverteilung. Wie im Vergleich von präindustrieller und aktueller Konzentration gezeigt, bildet das Modell historische Ozonzunahmen realistisch ab. Somit können die für den Straßenverkehr berechneten Beiträge in dieser Größenordnung als realitätsnah - für das Szenario einer vollständigen Einstellung des Straßenverkehrs und somit dessen

Tabelle 9.1: Einfluss des Straßenverkehrs auf das Klima: Strahlungsantrieb durch straßenverkehrs-induziertes Ozon (in W/m^2) am Oberrand der Tropopause, Änderung der CH_4 -Lebensdauer (in %) durch straßenverkehrs-induzierte Hydroxylradikaländerung und daraus resultierender Strahlungsantrieb (in W/m^2).

Strahlungsantrieb durch Ozon			
	Januar	Juli	Referenz
	W/m^2	W/m^2	
Gesamtemissionen	0.040	0.078	diese Arbeit
Stickoxidemissionen	0.028	0.056	diese Arbeit
Stickoxidemissionen	0.022	0.023	[<i>Valks und Velders, 1999</i>]
Global gemittelter Strahlungsantrieb durch Hydroxylradikale			
	Änderung der	Strahlungs-	Referenz
	CH_4 -Lebensdauer	antrieb	
	[%]	W/m^2	
Gesamtemissionen	- 0.7 %	- 0.006	diese Arbeit
NO_x -Emissionen	- 6.1 %	- 0.056	diese Arbeit
NMHC-Emissionen	+ 1.6 %	+ 0.014	diese Arbeit
CO-Emissionen	+ 1.2 %	+ 0.011	diese Arbeit
NO_x - und CO-Emissionen	- 3 %	-	[<i>Granier und Brasseur, 2003</i>]

Emissionen - eingeschätzt werden.

Für die Höhe dieses Beitrages spielt weiterhin das chemische Regime eine wichtige Rolle. Bei der in dieser Arbeit angewendeten Methode erhalten zusätzliche Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs in stickoxidreichen Regionen eine geringere Ozonproduktivität als die im Hintergrund verbleibenden. Diese Methode ist gerechtfertigt, wenn der Frage nachgegangen wird, welchen isolierten Einfluss der Straßenverkehr auf die chemische Zusammensetzung hat. Es werden Aussagen erzielt, die nicht von hypothetischen Annahmen über mögliche Zu- oder Abnahmen der Emissionen aus anderen Quellen abhängen. Die Frage, die beantwortet wurde heißt also konkret: über welche Mechanismen beeinflussen die Straßenverkehrsemissionen die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre.

In der vorliegenden Arbeit wurde aus der Änderung der Konzentrationsverteilung von Ozon und OH der indirekte Strahlungsantrieb des Straßenverkehrs abgeschätzt. Es ergab sich für Ozon ein Jahresmittel von $0.058 \text{ W}/\text{m}^2$ (Gesamtemissionen) bzw. $0.042 \text{ W}/\text{m}^2$ (Stickoxidemissionen) (Tabelle 9). Die Monatsmittel für Januar und Juli sind in Tabelle 9 zusammengestellt. *Valks und Velders* [1999] berechneten einen Strahlungsantrieb von $0.022 \text{ W}/\text{m}^2$ im Januar und $0.023 \text{ W}/\text{m}^2$ im Juli. In der vorliegenden Arbeit wurde im Januar ein Strahlungsantrieb durch die durch die NO_x -Emissionen induzierte Ozonstörung berechnet, der gut 25 Prozent höher ist. Im Juli ist der in dieser Arbeit berechnete Wert doppelt so hoch, wie von *Valks und Velders* [1999] angegeben. *Roelofs et al.* [1997] schätzten den Strahlungsantrieb des auf Grund der gesamten anthropogenen Emissionen gebildeten Ozons mit $0.42 \text{ W}/\text{m}^2$ ab. Der Strahlungsantrieb durch Ozon, der in der

vorliegenden Arbeit für die Emissionen des Straßenverkehrs (NO_x , NMHC, CO) berechnet wurde, liegt mit einem Jahresmittelwert von 0.058 W/m^2 (0.040 W/m^2 im Januar und 0.078 W/m^2 im Juli) noch einmal 30 Prozent höher. Dies lässt den Schluss zu, dass auch die NMHC-Emissionen einen wesentlichen Beitrag zum troposphärischen Ozon und folglich zum Strahlungsantrieb des Straßenverkehrs liefern.

Neben Ozon bewirkt der Straßenverkehr einen weiteren indirekten Strahlungsantrieb auf Grund der Änderung des Hydroxylradikals. Dieser Antrieb kann in Form der geänderten Lebensdauer von Methan angegeben werden. Andererseits stellt dies ein Maß für die Oxidationskapazität der Atmosphäre dar. Für die Stickoxid- und CO-Emissionen des Straßenverkehrs geben *Granier und Brousseau* [2003] eine um etwa 3 Prozent verringerte Lebensdauer für Methan an. In der vorliegenden Arbeit wurde die Abnahme der Lebensdauer um -6.1% durch die Stickoxidemissionen und um $+1.2\%$ durch die CO-Emissionen berechnet. Insgesamt ergibt sich - unter Berücksichtigung der NMHC-Emissionen - eine Änderung der Lebensdauer um -0.7% . Hier zeigt sich, dass der Einfluss des Straßenverkehrs durch die Berücksichtigung der NMHC-Emissionen deutlich geringer wird. Wesentliches Ergebnis dieser Berechnung ist, dass sich durch die beiden Spurengase - CO und NMHC - das ganze Jahr hindurch jeweils eine Abnahme der OH-Konzentration und damit eine Zunahme der Lebensdauer von Methan ergibt. Somit besitzt auch der Strahlungsantrieb das umgekehrte Vorzeichen und ist in Folge dessen positiv. Die gesamten Straßenverkehrsemissionen verringern die Lebensdauer von Methan geringfügig (um -0.7%) und bewirken so einen negativen Strahlungsantrieb des Straßenverkehrs. Die Beiträge der einzelnen Spurengase belaufen sich auf Strahlungsantriebe zwischen -0.056 W/m^2 und 0.014 W/m^2 . Der resultierende Strahlungsantrieb der Gesamtemissionen Straßenverkehrs ist jedoch zeitlich und räumlich inhomogen: in den Monaten Januar bis Mai ist er positiv und von Mai bis Dezember ist er negativ. Zusätzlich ist er räumlich inhomogen dahingehend, dass beispielsweise im Januar auf der Nordhemisphäre ein deutliche Zunahme auf der südlichen Hemisphäre jedoch eine Abnahme zu verzeichnen ist.

Kapitel 10

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die Wirkung von Straßenverkehrsemissionen auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre auf globaler Skala bestimmt. Hierbei wurden erstmals in einer globalen Untersuchung, neben den Stickoxid- und Kohlenmonoxidemissionen, die Nicht-Methan-Kohlenwasserstoff (NMHC)-Emissionen des Straßenverkehrs mitberücksichtigt.

Für die Beantwortung dieser Fragestellung wurden Experimente mit dem globalen Modell der Allgemeinen Zirkulation ECHAM4 in Verbindung mit dem Chemiemodul CBM-IV durchgeführt. Das Chemiemodul CBM-IV basiert auf einem strukturellen Kohlenstoffbindungsschema und erlaubt so die Berücksichtigung der Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe in einem globalen Atmosphärenmodell. Die als Eingangsparameter für die Simulationen benötigten Straßenverkehrsemissionen der Stickoxide, des Kohlenmonoxids und der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe wurden auf der Grundlage von Treibstoffverbrauchsdaten abgeschätzt. Die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs betragen $(8.8 \pm 1.8) \text{ Tg [N] a}^{-1}$, die Kohlenmonoxidemissionen $(206 \pm 86) \text{ Tg [CO] a}^{-1}$ und die NMHC-Emissionen $(34.4 \pm 18.9) \text{ Tg a}^{-1}$ weltweit. Die Unsicherheiten dieser Emissionsmengen betragen somit 25 Prozent für Stickoxide, 52 % für Kohlenmonoxid und 65 % für die Gruppe der NMHCs. Die Emissionen des Straßenverkehrs besitzen einen Anteil von 20 bis 30 Prozent an den anthropogenen Emissionen von Stickoxid, Kohlenmonoxid, Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffen, Ruß und Kohlendioxid.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Emissionsprojektionen bis zum Jahr 2030 zeigen, dass die weltweiten Emissionen - zumindest in einzelnen Regionen - weiter ansteigen. Hierbei zeigt sich eine Umverteilung der Emissionen von industrialisierten Regionen zu den derzeit weniger industrialisierten Regionen: beispielsweise werden für Asien in der Projektion für 2020 mindestens doppelt so hohe Stickoxidemissionen wie im Jahr 1990 berechnet. Der Grund hierfür ist das stärkere Wirtschaftswachstum in diesen Regionen. Die auf diese Weise durchgeführten Abschätzungen stellen tendenziell untere Grenzen dar, da auch in den weniger industrialisierten Regionen eine Effektivitätssteigerung beim Treibstoffverbrauch in Höhe der Steigerung der Produktionsfaktorproduktivitäten angenommen wurde.

Der Vergleich der simulierten Verteilungen der NO_2 -Säulendichten mit den Messungen des GOME-Sensors zeigte, dass die grundlegenden atmosphärischen Verteilungen im Modell im Rahmen der Fehlerquellen (Bewölkung, Bodenschicht) wiedergegeben werden. Die Amplitude des Jahresverlaufs von regional gemittelten troposphärischen NO_2 -Säulendichten beträgt etwa 20 Prozent

im Sommer. Die im Winter gefundenen höheren Abweichungen können mit der höheren Variabilität und einer stark begrenzten Grenzschicht begründet werden. Höhere Unterschiede - mehr als 50 Prozent - zeigen sich nur in Gebieten in denen sehr geringe troposphärische Säulendichten von weniger als $10 \cdot 10^{14}$ Mol./cm² in den Satellitendaten vorliegen.

Die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs bewirken eine Zunahme des troposphärischen Ozons nicht nur in den Quellregionen der Nordhemisphäre (um mehr als 20 Prozent) sondern auch in den entlegenen Regionen der Nordhemisphäre (um mehr als 12 Prozent). Mit Hilfe zusätzlicher Simulationen, in denen die Wirkung einzelner Spurengasemissionen untersucht wurde, konnte gezeigt werden, dass die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs insbesondere in den Quellregionen für die Ozonzunahme verantwortlich sind. Die Ozonbildung erfolgt über den NO_x-HO_x-Zyklus. Für Ozonbeiträge in Abluftregionen und in entlegenen Regionen sind jedoch die NMHC-Emissionen verantwortlich: Sie bewirken die vermehrte Bildung von PAN (Peroxyacetylnitrat), einer temporären Reservoirspezies des NO_x, die bei niedrigen Temperaturen (in der freien Troposphäre) thermisch stabil ist. Sinken diese Luftmassen in entlegenen Regionen ab, steigt die Temperatur und PAN zerfällt thermisch, wobei NO_x freigesetzt wird. Somit ermöglichen NMHC-Emissionen den Transport der Stickoxide aus den Quellregionen in entlegene Regionen. Diese zusätzliche NO_x-Quelle führt typischerweise in etwa 700 hPa zu einer Netto-Ozonproduktion.

Der Straßenverkehr bewirkt somit eine Erhöhung der Ozonkonzentration im zonalen Mittel im Juli um bis zu 16 Prozent in der unteren Troposphäre der nördlichen Breiten. In der südlichen Hemisphäre liegt der relative Beitrag unter 4 Prozent. Im Januar liegen die relativen Beiträge in der Nord- und Südhemisphäre bei mehr als 8 Prozent. Damit werden in den südlichen Extratropen Ozonbeiträge in der gleichen Größenordnung wie in nördlichen Breiten verursacht, obwohl dort nur 3 Prozent der globalen Emissionen des Straßenverkehrs freigesetzt werden. Ursache hierfür ist erstens die solare Einstrahlung, die die Photochemie im südhemisphärischen Sommer verstärkt. Zweitens liegen in der südlichen Hemisphäre die Hintergrundwerte deutlich niedriger als in der Nordhemisphäre, wodurch kleine absolute Beiträge, hohe relative Anteile darstellen. Drittens bewirkt die nichtlineare Photochemie, dass die Ozonproduktivität bei niedrigen Stickoxidwerten (jedoch erst ab einer Grenze von etwa 30 ppt liegen) höher ist.

Zu den primären Spezies in der Atmosphäre (NO_x, CO, NMHC) trägt der Straßenverkehr bis zu 60 Prozent bei. In den Einzelgasstudien - NO_x, CO, NMHCs - zeigte sich, dass etwa 70 Prozent der Ozonzunahme alleine durch die Stickoxidemissionen verursacht werden. Die restlichen 30 Prozent werden vorwiegend durch die NMHC-Emissionen verursacht, wobei die geographische Verteilung der Beiträge hier deutlich einen Schwerpunkt der Wirkung in arktischen Breiten aufweist. Die NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs besitzen also insgesamt einen nicht zu vernachlässigenden Effekt auf die Ozonbildung.

Ein besonderer Effekt, der auch in Regionalmodellen wiedergegeben wird, ist die Abnahme des Ozons in industrialisierten Zentren durch die Stickoxidemissionen alleine. Ursache hierfür ist die im Sättigungsregime mit steigender NO_x-Konzentration abnehmende Ozonproduktivität und die Titration von Ozon. Die hieraus resultierende Ozonabnahme wird in Europa das ganze Jahr und in den USA im Juli berechnet.

Die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs tragen je nach Jahreszeit zu einer deutlichen Erhöhung der troposphärischen Ozonsäulendichten bei: bis zu 2.1 DU (im Januar) und bis zu

5.2 DU (im Juli). Die Stickoxidemissionen alleine bewirken geringfügig schwächere Zunahmen von 1.8 DU im Januar und 4.2 DU im Juli. Regional gemittelt trägt der Straßenverkehr in den nördlichen Extratropen 1.4 DU im Januar und 3.0 DU im Juli bei. Aus Modellberechnungen ergibt sich eine Ozonzunahme seit präindustriellen Zeiten zwischen 10 und 14 ppb an Stationen in der Nordhemisphäre [Roelofs *et al.*, 1997]. Hiervon werden, wie in der vorliegenden Arbeit berechnet, etwa 5 ppb durch den Straßenverkehr verursacht.

Da die vorliegende Arbeit gezeigt hat, dass der Straßenverkehr einen deutlichen Einfluss auf die Ozonverteilung besitzt, sind für die Planung möglicher Maßnahmen für Reduzierung des Bodenzons sowohl die Einzelgasstudien, als auch die regionalen Studien von Interesse. So zeigte die alleinige Reduktion der Stickoxidemissionen nicht überall eine Ozonreduzierung. In den regionalen Studien zeigte sich die Fernwirkung auch der Straßenverkehrsemissionen. Für eine erfolgreiche Vermeidungsstrategie ist es daher notwendig, sowohl eine Berücksichtigung des chemischen Regimes, als auch international koordinierte Maßnahmen zu ergreifen.

In den Sensitivitätsstudien, in denen regionale Emissionen einzeln betrachtet wurden, zeigte sich die Fernwirkung des Straßenverkehrs. Über dem Nordatlantik werden etwa 2 ppb durch den Straßenverkehr der USA und 0.5 ppb durch den Europas verursacht. Auch wird durch in den USA verursachte Emissionen Ozon über den europäischen und vorderasiatischen Kontinent transportiert. Das bedeutet, die Emissionen aus den USA beeinflussen den europäischen Kontinent. In Europa durch den Straßenverkehr emittierte Stickoxide werden - über die Bildung von PAN - in den südöstlichen Mittelmeerraum und nach Vorderasien transportiert. Dort bewirken sie eine deutlich Ozonzunahme in der freien Troposphäre.

Neben der Wirkung auf Ozon beeinflusst der Straßenverkehr die atmosphärische OH-Konzentration erheblich. Im Januar findet eine Abnahme um mehr als 10 Prozent und im Juli eine Zunahme um bis zu 10 Prozent in der Nordhemisphäre statt. In den Einzelgasstudien zeigte sich, dass nur die Stickoxidemissionen eine Erhöhung des OH-Radikals bewirken. Die Kohlenmonoxid- und NMHC-Emissionen hingegen bewirken eine Abnahme der OH-Konzentration in der gesamten Troposphäre, insbesondere in nördlichen Breiten. Somit ist für die Wirkung der Gesamtemissionen des Straßenverkehrs entscheidend, wie stark die einzelnen Effekte jeweils sind. So überwiegt in der Nordhemisphäre im Juli die Wirkung der Stickoxidemissionen - insgesamt wird OH gebildet - im Januar hingegen überwiegt die Wirkung der NMHCs und CO - insgesamt wird durch die Straßenverkehrsemissionen OH abgebaut.

Auf Grund der Änderung der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre beeinflusst der Straßenverkehr die Strahlungsbilanz. Sowohl Ozon auch als das Hydroxylradikal verursachen einen Strahlungsantrieb auf die Klimasystem. Die Zunahme des troposphärischen Ozons durch die Emissionen des Straßenverkehrs bewirkt wie in der vorliegenden Arbeit berechnet einen jahresgemittelten Strahlungsantrieb von 0.058 W/m^2 . Ebenso wurde der indirekte Strahlungsantrieb durch die Änderung der Konzentrationsverteilung des Hydroxylradikals berechnet. Der indirekte Strahlungsantrieb wurde über die Wirkung von OH auf Methan abgeschätzt. Somit ergibt sich das globale Jahresmittel des indirekte Strahlungsantriebs durch die Gesamtemissionen in Höhe von 0.006 W/m^2 (Änderung der Oxidationskapazität um -0.7 %). Wichtig ist es hierbei zu bemerken, dass sich dieser geringe Effekt als Summe der drei Einzeleffekte (NO_x , NMHC und CO) ergibt. Der resultierende Strahlungsantrieb ist räumlich und zeitlich inhomogen. Räumlich inhomogen

insofern, dass beispielsweise im Januar ein positiver Antrieb in der Nordhemisphäre und ein negativer Antrieb in der Südhemisphäre berechnet wird. Zeitlich inhomogen bedeutet konkret, dass die Gesamtemissionen im Laufe eines Jahres sowohl zu einem positiven - Januar bis Mai - als auch zu einem negativen - Juni bis Dezember - Strahlungsantrieb auf die Atmosphäre führen. Somit kann der in der vorliegenden Arbeit berechnete Strahlungsantrieb zwar als Berechnungsgrundlage dienen, die geographische Verteilung beispielsweise des bodennahen Temperaturresponses auf solch inhomogene Störungen der Strahlungsbilanz ist jedoch derzeit noch nicht vollständig bekannt [IPCC, 2001].

Wie die vorliegende Arbeit gezeigt hat, ist die Berücksichtigung von höheren Kohlenwasserstoffen auch in globalen Modellen entscheidend für die Wirkung der Emissionen des Straßenverkehrs. Wichtig ist es nun, die Unsicherheit der globalen NMHC-Emissionskataster - auch für einzelne emittierte Spezies - deutlich zu verringern. Wie die in der vorliegenden Arbeit durchgeführte Vorstudie gezeigt hat, spielen Aromaten zumindest regional eine Rolle für die photochemische Ozonproduktion. Somit ist es für die Berechnung der Auswirkungen des Straßenverkehrs wünschenswert, die Gruppe der Aromaten explizit im Modellschema zu berücksichtigen.

Der Straßenverkehr besitzt auf Grund der Bildung von troposphärischem Ozon und von Hydroxylradikalen einen indirekten Strahlungsantrieb auf die Atmosphäre, der dem des Flugverkehrs vergleichbar ist [Prather und Sausen, 1999]. Wesentlich für den Vergleich unterschiedlicher Verkehrsträger ist es nun, geeignete Maßzahlen zu entwickeln, die wesentliche Parameter, wie beispielsweise die Verkehrsleistung, berücksichtigen.

Aktuell rücken Partikelemissionen des Straßenverkehrs in das Zentrum der Aufmerksamkeit. Sie besitzen eine direkte und eine indirekte Wirkung auf die Strahlungsbilanz. Ein wichtiger Eingabeparameter für Studien zur Wirkung dieser Emissionen sind Emissionskataster für Partikelemissionen und deren Vorläufersubstanzen. Mit einem verbrauchsorientierten Ansatz, wie er hier in der Arbeit vorgestellt wurde, kann ein solcher Datensatz erzeugt werden. Hier herrscht sowohl bei den Emissionsangaben als auch bei der Entwicklung eines Atmosphärenmodells, das ein Aerosolmodul umfasst, ein hoher Forschungsbedarf. Zukünftige Studien zur möglichen Vermeidungsstrategien sollten berücksichtigen, dass eine Reduzierung von Partikelemissionen i.d.R. mit einem Anstieg der Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs verbunden ist, so dass eine neue Bewertung der Auswirkungen der NO_x -Emissionen notwendig wird.

Anhang A

Verzeichnisse

A.1 Abkürzungsverzeichnis

AMF	Luftmassenfaktor (engl. <i>Air Mass Factor</i>)
BSP	Bruttosozialprodukt
CBM-IV	Chemieschema (engl. <i>Carbon-Bond-Mechanism-IV</i>)
DOAS	Messmethode (engl. <i>Differential Optical Absorption Spectroscopy</i>)
ECHAM	Atmosphärenmodell des ECMWF, HAMBURGER Version
ECMWF	Europ. Zentrum für Mittelfristvorhersage (<i>Europ. Cent.f.Medium-range weather forecast</i>)
EDGAR	Emissionsdatenbank (engl. <i>Emission Database for global atmospheric research</i>)
EIT	Übergangsökonomien (engl. <i>economies in transition</i>)
GEIA	Emissionsdatenbank (engl. <i>Global Emission Inventory Activity</i>)
GOME	Ozonmessprogramm (engl. <i>Global Ozone Monitoring Experiment</i>)
GUS	Gemeinschaft unabhängiger Staaten (ehem. Sowjetunion)
HC	Kohlenwasserstoffe (engl. <i>hydrocarbons</i>)
IEA	Int. Energieagentur (engl. <i>Int. Energy Agency</i>)
IEO	Int. Energieprognose (engl. <i>International Energy Outlook</i>)
IPCC	Regierungsübergreifende Komm. zum Klimawandel (engl. <i>Int. Panel for Climate Change</i>)
ITCZ	Innertropische Konvergenzzone
LS	Untere Stratosphäre (engl. <i>lower stratosphere</i>)
NMHC	Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (engl. <i>non-methane-hydrocarbons</i>)
OECD	Organisation für wirtschaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung
PBL	Planetare Grenzschicht (engl. <i>planetary boundary layer</i>)
RF	Strahlungsantrieb (engl. <i>radiative forcing</i>)
TEM	Troposphärischer Überschuss Methode (GOME)
TFP	Produktivität der Produktionsfaktoren (engl. <i>total factor productivity</i>)
UNSTAT	Statistikabteilung der Vereinten Nationen (<i>United Nations Statistic Division</i>)
UT	Obere Troposphäre (engl. <i>upper troposphere</i>)

A.2 Verzeichnis der chemischen Spezies

Aceton	$\text{CH}_3\text{C}(\text{O})\text{CH}_3$
Aldehyde	RHO
Ethan	C_2H_6
Formaldehyd	CH_2O
Hydroperoxyradikal	HO_2
Hydroxylradikal	OH
Kohlenmonoxid	CO
Methan	CH_4
Methylhydroperoxid	CH_3OOH
Peroxyradikal	RO_2
Peroxyacetylnitrat	$\text{CH}_3\text{COO}_2\text{NO}_2$
Salpetersäure	HNO_3
Stickstoffdioxid	NO_2
Stickstoffmonoxid	NO
Stickoxide	NO_x
Toluol	Methylbenzol (C_7H_8)
Wasserstoffperoxid	H_2O_2
Xylen	Trimethylbenzol (C_8H_{10})

Anhang B

Technische Beschreibungen

B.1 Emissionen des Straßenverkehrs

B.1.1 Zusammensetzung des Abgases

Für die Verbrennung fossiler Treibstoffe im Straßenverkehr können mittlere Emissionsindices in Gramm pro kg verbranntem Treibstoff angegeben werden. Hierfür wurden die Emissionsfaktoren (pro GJ verbranntem Treibstoff) nach *Olivier et al.* [1996] und *Köhler et al.* [2001] umgerechnet (Tabelle B.1). Für die Berechnung wurde eine mittlere Zusammensetzung des verbrauchten Treibstoffs von 55 % Benzin und 45 % Diesel angenommen [UNSTAT, 1997]. Rußemissionen entstehen nur durch die Verbrennung von Dieseltreibstoff. Für die Berechnung wurde ein Verbrauch von 73 Prozent des weltweiten Verbrauchs in OECD-Ländern angenommen. Die in Tabelle B.1 zusammengestellten Emissionsindices sind in Abbildung 2.3 graphisch dargestellt.

Tabelle B.1: Mittlere Emissionsindices (EI) der Verbrennung fossiler Treibstoffe im Straßenverkehr in g pro verbrauchtem kg Treibstoff .

	EI pro kg Treibstoff	Masse- einheit
Kohlendioxid	850	g[C]
Lachgas	0.1	g [N]
Methan	0.5	g [C]
Kohlenmonoxid	73.0	g [C]
Stickoxide	9.2	g [N]
Schwefeldioxid	2.3	g [S]
NMHCs	27.8	g [HC]
Ruß	4.2	g[C]

B.1.2 Kohlendioxidemissionen des Straßenverkehrs nach IMAGE 2.1

Wie in Abschnitt 5.1 erwähnt, wird bei [Alcamo *et al.*, 1998] für die CO₂-Emissionen der Sektor Straßenverkehr nicht separat angegeben, sondern nur der Transportsektor explizit ausgewiesen. Der Transportbereich produziert etwa ein Viertel der gesamten anthropogenen fossilen CO₂-Emissionen. Gemäss den EDGAR 2.0 Daten beträgt der relative Anteil des Straßenverkehrs an den Emissionen des Transportsektors etwa 60 Prozent. Dieser Wert wurde verwendet, um den Anteil des Straßenverkehrs in den Daten nach [Alcamo *et al.*, 1998] auszuweisen. Die auf diese Weise berechneten CO₂-Emissionen des Straßenverkehrs für den Zeitraum 1970 bis 1990 sind in Tabelle B.2 dargestellt. Auf diese Weise ergibt sich eine CO₂-Emissionsmenge durch den Straßenverkehr im Jahr 1990 von 0.9 Pg [C]. Bei den EDGAR 2.0 Daten wurde für die Gegenüberstellung zusätzlich ein Teil der beim Transport in Pipelines entstehenden Emissionen zum Transportbereich addiert, da diese üblicherweise in der IEA-Statistik und damit bei [Alcamo *et al.*, 1998] ebenfalls diesem zugerechnet werden.

B.1.3 Geographische Verteilungen der Emissionen

Da die Stickoxidemissionen aller Quellen die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre wesentlich beeinflussen, sind die für die Modellsimulationen zusammengestellten Datensätze in Abbildung B.1.3 graphisch dargestellt. In Afrika und Südamerika zeigen sich im Juli deutlich höhere Emissionen aus der Biomasseverbrennung. Biogene Stickoxidemissionen, aus Mikroorganismen in Böden, weisen maximale Emissionsraten in den warmen Monaten des Jahres auf.

B.1.4 Emissionen der NMHCs: Bindungstypen

Das verwendete Chemieschema CBM-IV Schema (engl. *carbon-bond-mechanism*) nach Gery *et al.* [1989] basiert auf einem strukturellen Kohlenstoffbindungsschema. Hierbei werden die Spezies Ethen, Formaldehyd, Methylglyoxal und Isopren explizit angegeben. Die Einfach- (Alkane), Doppelbindung (Alkene) und die funktionelle Gruppe der Aldehyde werden als strukturelle Platzhalter verwendet. Entsprechend müssen NMHC-Emissionen von den expliziten Spezies in diese Gruppen

Tabelle B.2: Anthropogene CO₂-Emissionen aus der Verbrennung fossiler Treibstoffe: Gesamtemissionen und Anteil des Transportsektors nach [Alcamo *et al.*, 1998] und Anteil des Straßenverkehrs nach obiger Berechnung (*kursiv*). Mengen in Pg [C] pro Jahr und relativer Anteil an den gesamten anthropogenen Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe.

Zeitraum	Gesamt- emission	Transportsektor		Straßenverkehr	
		Emission	Anteil	Emission	Anteil
1970	4.3	1.0	23 %	<i>0.6</i>	<i>14 %</i>
1975	4.6	1.1	24 %	<i>0.7</i>	<i>14 %</i>
1980	5.3	1.2	23 %	<i>0.7</i>	<i>14 %</i>
1985	5.4	1.3	24 %	<i>0.8</i>	<i>14 %</i>
1990	6.1	1.5	25 %	<i>0.9</i>	<i>15 %</i>

umgerechnet werden. Zusätzlich werden schnelle Abbaureaktionen, die unterhalb des Zeitschritts liegen, auf die Weise berücksichtigt, dass direkt das Abbauprodukt emittiert wird. Aceton wird bei der Oxidation von Propan gebildet. Da Propan jedoch nicht explizit im Chemie-Schema dargestellt ist, wird dem Ansatz von Wang *et al.* [1998] gefolgt und eine direkte Quelle für Aceton angenommen, mit einer 80 % Effizienz der Oxidation von Propan, das eine anthropogene Quellstärke von 7.8 Tg C pro Jahr besitzt. In Tabelle B.3 sind die in der Simulation integrierten Emissionen den ursprünglichen Werten einander gegenübergestellt. Es ergeben sich schließlich die in Tabelle

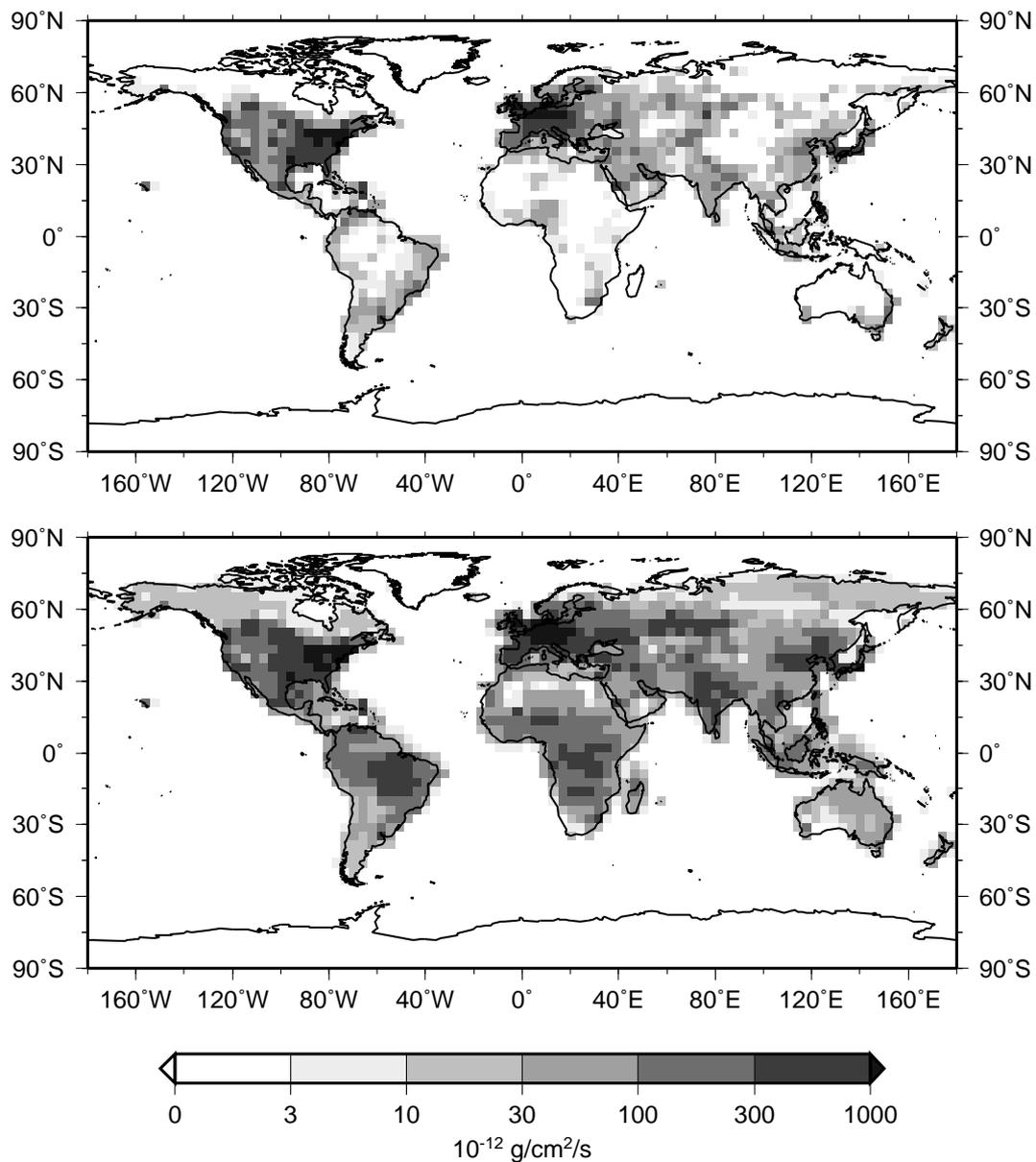


Abbildung B.1: NO_x-Emissionen im Jahr 1990 (Juli): Straßenverkehr (*oben*) und alle Quellen ohne Blitze (*unten*) in Moleküle/m²s (Referenzen siehe Tabelle 2.2). Globalmengen pro Jahr: Straßenverkehr 8.8 Tg [N], alle Quellen (ohne Blitze) 33.1 Tg [N]. Die verwendete Pixelgröße entspricht der geographischen Modellauflösung.

B.3 zusammengestellten Straßenverkehrsemissionen in den Kategorien Einfachbindung, Doppelbindung, Ethen, Formaldehyd, höherkettige Aldehyde, Methylglyoxal und Aceton. Der Vergleich der beiden unterschiedlichen Angaben zeigt deutliche Differenzen, insbesondere bei den Alkanen und bei Methylglyoxal. Auf Grund der substituierten Emissionen für beispielsweise Xylen unterscheiden sich die in das Chemieschema umgerechneten Datensätze teilweise erheblich. Bei den Alkenen, Ethen, Aldehyden und Formaldehyd betragen die Abweichungen rund 40 Prozent.

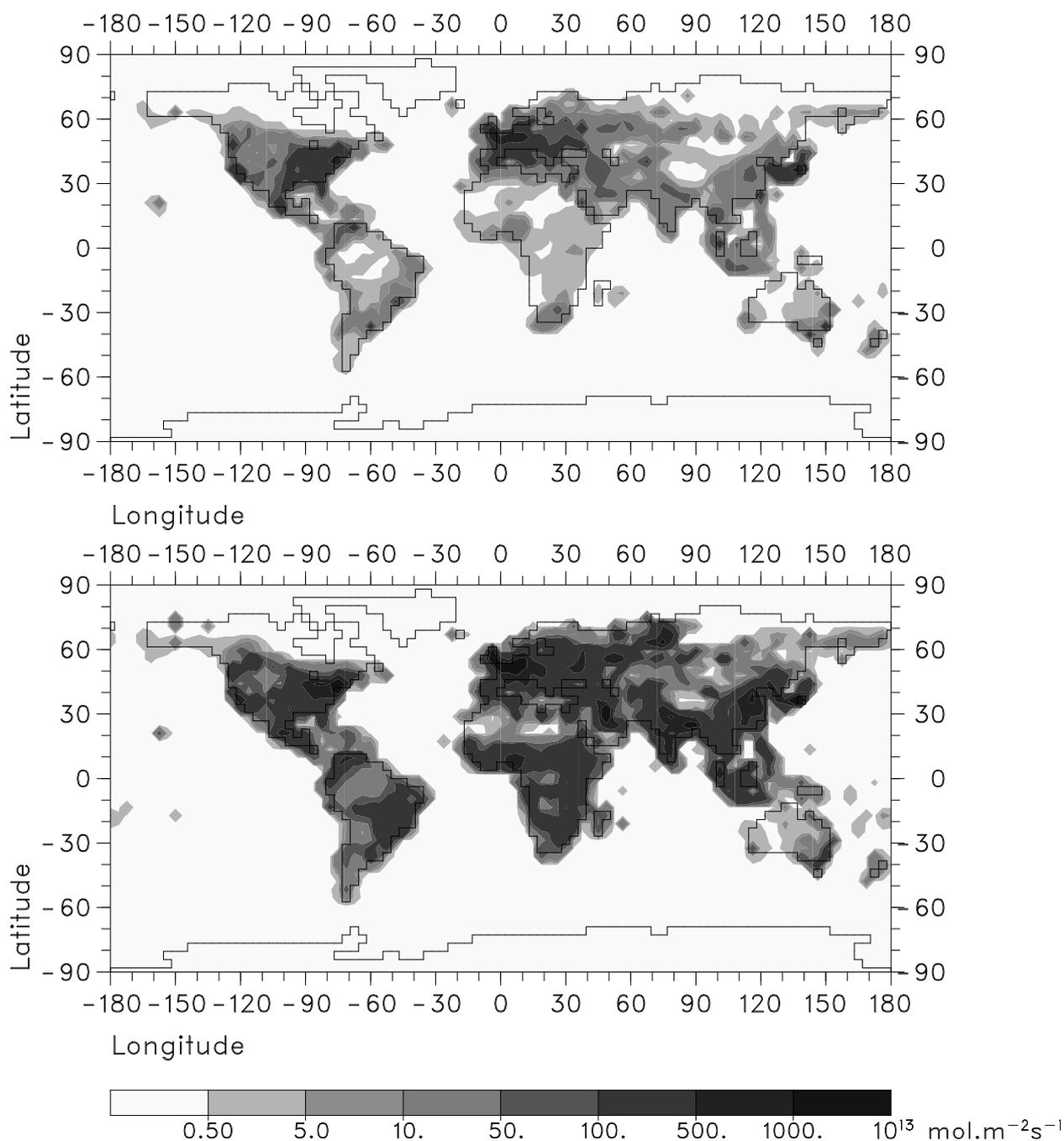


Abbildung B.2: NMHC-Emissionsrate im Jahr 1990, Straßenverkehr 34.4 Tg [C] (oben) und alle Quellen 175.9 Tg [C] (unten) in Moleküle m⁻².s⁻¹ [Olivier *et al.*, 1996].

Tabelle B.3: Jährliche NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs für die Modellierung mit ECHAM4 mit höheren Kohlenwasserstoffen in Tg [C] pro Jahr.

Gruppe	Typ	Emissionen im Modell		EDGAR 2.0	Verhältnis Modell/Daten
		Fossil Tg [C]/yr	Straße Tg [C]/yr	Straße Tg [C]/yr	
Einfachbindung	PAR	54042	33098	14743	2.24 ^a
Doppelbindung	OLE	1429	1287	1853	0.69
Ethen	ETH	2519	1047	1484	1.42
Höhere Aldehyde	ALD2	182	161	220	0.73
Formaldehyd	CH2O	210	165	249	0.66
Andere (Rest)				8060	
Gesamt		58989	36277	28310	1.28

^aohne PAR aus XYL

B.1.5 Emissionen der Sensitivitätsstudie Aromaten

In der Modellversion von [Houweling *et al.*, 1998] werden die Xylenemissionen durch die ersten stabilen Abbauprodukte Methylglyoxal und Alkane substituiert. Um den Einfluss der Methylbenzolemissionen zu untersuchen, werden in einer Sensitivitätsstudie alternativ Methylglyoxal, Formaldehyd und höhere Aldehyde emittiert.

B.2 Berechnung eines verbrauchsorientierten Katasters

Bei einem verbrauchsorientiertem Ansatz berechnet sich die Emission $E_{i,j}$ einer Spurengaskomponente i durch die Verbrennung des Treibstoffs j aus dem Produkt des Verbrauchs des Treibstoff b_j mit einem spezifischen, aggregierten Emissionsfaktor $EF_{i,j}^{agg}$:

$$E_{i,j} = b_j \cdot EF_{i,j}^{agg}. \quad (\text{B.1})$$

Der aggregierte Emissionsfaktor $EF_{i,j}^{agg}$ gibt hier die mittlere pro Energieeinheit freigesetzte Emissionsmenge an, die durch die Gewichtung der Emissionsfaktoren der unterschiedlichen Fahrzeugtypen und Geschwindigkeiten entsteht. $EF_{i,j}^{agg}$ spiegelt somit die in einem Land übliche Flottenzusammensetzung, Abgasstandards und den Modal-Split (Aufteilung der gefahrenen Strecken auf unterschiedliche Straßentypen und damit Geschwindigkeiten) wider. Das Produkt aus national verbrauchter Treibstoffmenge und aggregiertem Emissionsfaktor gibt die nationale Emissionsmenge an. Die im Straßenverkehr eingesetzten Energieträger sind fossile Brennstoffe, die in einem Verbrennungsmotor oxidiert werden. Somit wird der Verbrauch b_j als Menge der verbrannten fossilen Treibstoffe angegeben. Als Einheit für diese Treibstoffmenge wird die in ihr enthaltene Energie gemessen.

Angaben über den Verbrauch an Treibstoffen liegen meist auf nationaler Ebene vor. Um nun diese nationale Emissionsmenge, das Produkt aus aggregiertem Emissionsfaktor und verbrauchter

Treibstoffmenge, geographisch verteilen zu können, wurden geographisch aufgelöste Informationen über die Verteilung des Straßenverkehrs benötigt. Die Bevölkerungsverteilung stellt eine geeignete Angabe für die geographische Verteilung der nationalen Straßenverkehrsemissionen dar.

In der vorliegenden Arbeit wird ein Emissionskataster des Straßenverkehrs mit einem verbrauchsorientierten Ansatz nach *Olivier et al.* [1996] berechnet. Als Grundlage für den Verbrauch der fossilen Brennstoffe wird die Statistik der Vereinten Nationen *UNSTAT* [1997] herangezogen. Sie gibt die national verbrauchten Treibstoffmengen weltweit an. Die Verbrauchsdaten werden mit aggregierten Emissionsfaktoren multipliziert, die die regionalen Verbrauchscharakteristika widerspiegeln. Geographische Regionen werden bei ähnlichem Entwicklungsstand in den Ländern mit einem einheitlichen Emissionsfaktor berechnet [*Olivier et al.*, 1996]. Fehlen für ein Land statistische Angaben über den Treibstoffverbrauch im Straßenverkehr, so werden diese Lücken mit Hilfe von Daten für andere Jahre oder Angaben über den Gesamtverbrauch aufgefüllt. Fehlen für ein Land die Daten vollständig, werden Daten der internationalen Energieagentur (IEA) herangezogen. Um diese nationalen Emissionsmengen schließlich geographisch zu verteilen, wird die weltweite Bevölkerungsverteilung mit einer Auflösung von $1^\circ \times 1^\circ$ nach *GEIA-Datensatz et al.* verwendet.

B.2.1 Globale Emissionsmengen des Straßenverkehrs

Für die einzelnen Spezies sind in diesem Abschnitt die Emissionsmengen des verbrauchsorientierten Berechnungsansatzes für die unterschiedlichen Regionen zusammengestellt. Für diese berechneten Emissionen wird im nächsten Abschnitt eine Fehleranalyse durchgeführt. Hierbei werden auch die regionalen Emissionsmengen für 15 Regionen der Welt getrennt angegeben. Das Ergebnis der Analyse ist in Tabelle B.4 für die Stickoxid- und in Tabelle B.5 für die Kohlenmonoxidemissionen dargestellt.

Mit Hilfe des verbrauchsorientierten Ansatzes wurden aus den Energieverbrauchsdaten die globalen Emissionen in verschiedenen Jahren berechnet. Um den Einfluss der sich verändernden Verbrauchsmenge zu zeigen, wurde die Emissionsberechnung in allen Jahren mit dem Emissionsfaktor für das Jahr 1990 durchgeführt. Diese Umrechnung der Verbräuche erlaubt eine bessere Einordnung, da der Vergleich mit anderen Emissionsangaben möglich ist (und nicht mit globalen Treibstoffverbräuchen). In Tabelle B.6 sind die Ergebnisse für die Jahre 1985, 1990 und 1995 dargestellt. Insgesamt wachsen die Stickoxidemissionen auf Grund des gestiegenen Treibstoffverbrauchs im Zeitraum 1985 bis 1990 um knapp 4 Prozent pro Jahr, im Zeitraum 1990 bis 1995 um fast 5 Prozent pro Jahr. Eine deutlich stärkere Zunahme wird bei den dieseltreibenden Kraftfahrzeugen im selben Zeitraum beobachtet. Sie liegt von 1985 bis 1985 bei etwa 6.5 Prozent pro Jahr, und damit deutlich über der Zunahme durch benzinbetriebene Fahrzeuge von etwa 2 Prozent (1985 bis 1990) bzw. etwa 3.5 Prozent (1990-1995). Im Zeitraum 1990 bis 1995 wächst der Benzinverbrauchs stärker als in den fünf vorangegangenen Jahren (1985-1990). Diese Zunahme ist für die insgesamt gestiegene Menge dieser abgeschätzten Emissionen verantwortlich. im Zeitraum 1990 bis 1995.

Tabelle B.4: **Stickoxidemissionen** des Straßenverkehrs im Jahr 1990 und deren Unsicherheit. Für die GUS waren keine Verbrauchsdaten in *UNSTAT* [1997] enthalten.

Region	NO _x -Emission			Unsicherheit		
	Benzin Gg [N]	Diesel Gg [N]	Gesamt Gg [N]	Benzin Gg [N]	Diesel Gg [N]	Gesamt Gg [N]
USA	2567	637	3390	394	257	651
Canada	205	49	254	31	20	51
Lat.Amerika	361	447	806	101	143	244
Afrika	118	52	170	33	16	49
Westeuropa	818	611	1428	123	140	263
Osteuropa	31	83	114	14	29	43
GUS	-	-	-	-	-	193
Naher Osten	163	384	547	58	146	204
Indien	20	224	244	8	85	93
China	178	198	376	178	198	376
Asien	76	242	318	57	148	205
Ozeanien	137	46	183	25	8	33
Japan	84	292	376	9	44	53
Global	4987	3341	8328	1031	1234	2265

Tabelle B.5: **Kohlenmonoxidemissionen** des Straßenverkehrs im Jahr 1990 und deren Unsicherheit. Die Unsicherheit der GUS wurde - da Verbrauchsdaten fehlen - als die gesamte von EDGAR2.0 [Olivier *et al.*, 1996] angegebene Menge angesetzt.

Region	CO-Emission			Unsicherheit		
	Benzin Gg [C]	Diesel Gg [C]	Gesamt Gg [C]	Benzin Gg [C]	Diesel Gg [C]	Gesamt Gg [C]
USA	62338	1793	64131	14961	937	15898
Canada	4531	139	4670	1087	73	1160
EU 15	22673	1677	24350	5442	872	6314
Lat.Amerika	19936	1947	21883	7348	1412	8760
Afrika	6862	455	7317	2608	124	2732
W.Europa	1504	45	1549	316	23	339
Osteuropa	2209	246	2455	972	197	1169
GUS	-	-	-			22900
Naher Osten	9136	1541	10677	4020	1233	5253
Indien	2429	817	3246	1069	654	1723
China	9944	796	10740	9944	796	10740
Asien	5883	1147	7030	5412	1147	6559
Ozeanien	3418	195	3613	820	106	926
Japan	4021	1174	5195	965	640	1605
Global	154884	11973	166857	54964	8214	86078

Tabelle B.6: Globale NO_x -Jahresemission des Straßenverkehrs in den Jahren 1985 bis 1990 wie in dieser Arbeit mit verbrauchsbezogenem Ansatz berechnet; getrennt nach Benzin und Diesel betriebenen Fahrzeugen; Menge in Tg [N] pro Jahr und relative jährliche Zunahme in den darauffolgenden 5 Jahren in Prozent.

NO_x-Jahresemission [Tg N]						
Jahr	Benzin		Diesel		Gesamt	
	Menge	Zunahme	Menge	Zunahme	Menge	Zunahme
1985	4.45	+ 2.3 %	2.44	+ 6.5 %	6.89	+ 3.9 %
1990	4.98	+ 3.6 %	3.34	+ 6.4 %	8.33	+ 4.8 %
1995	5.95		4.56		10.51	

B.2.2 Unsicherheiten des verbrauchsorientierten Ansatzes

Für die Berechnung der Unsicherheiten der Emissionsmengen, die mit dem verbrauchsorientierten Ansatzes berechnet wurden, wird durch Literaturvergleich die Unsicherheit der nationalen Verbrauchsdaten und der aggregierten Emissionsfaktoren abgeschätzt.

B.2.2.1 Nationale Verbrauchsdaten

Die erste Quelle für Unsicherheiten bei einem verbrauchsorientiertem Ansatz sind nationalen Verbrauchsangaben. Da die Datenbasis hier stark heterogen in ihrer Qualität ist, wird die Fehlerabschätzung für die Regionen getrennt durchgeführt. Hierbei wird für 15 Regionen weltweit der relative Fehler der Verbrauchsdaten angegeben (Tabelle B.7). Weiterhin sind die im folgenden Text beschriebenen Unsicherheiten der einzelnen Emissionsfaktoren und der sich durch das Gesetz der Fehlerfortpflanzung berechnete Gesamtfehler in der Tabelle angegeben.

Für Europa zeigte ein Vergleich der Angaben von *UNSTAT* [1997] und *IEA* [1996] eine Unsicherheit von 1.5 Prozent [*Matthes und Sausen, 2000*]. Eine höhere Unsicherheit besteht bei den Verbrauchsdaten der USA, da in den *UNSTAT*-Daten die nationale Verbrauchsmenge an Benzin nur für den gesamten Transportbereich gemeldet wurde. In den Daten der *IEA* wird im Jahr 1993 neben 1 Prozent im zivilen Luftfahrtbereich und in der nationalen Schifffahrt die restliche Menge im Straßenverkehr verbraucht [*OECD, 1996*]. Unter der Annahme einer identischen Verteilung des Gesamtverbrauchs im Transportbereich auf die Quellsektoren im Jahr 1990 ergäbe sich eine nationale Emissionsmenge durch den Straßenverkehr von 2.79 Tg [N]. Ein Vergleich mit Kanada zeigt andererseits, dass dort etwa 93 Prozent des Benzins im Transportbereich im Straßenverkehr verbrannt werden. Unter der Annahme einer zu Kanada identischen Verteilung in den USA ergäbe sich im Jahr 1990 für die jährliche NO_x -Emission aus dem benzinbetriebenen Straßenverkehr 2.63 Tg [N]. Für die Benzinverbrauchsdaten ergibt sich somit eine relative Unsicherheit von 3 Prozent. Die Dieserverbrauchsdaten weisen eine geringere Unsicherheit von etwa 1.5 Prozent auf.

Bei den weniger industrialisierten Ländern sind die Angaben teilweise unvollständig oder variieren stark. Für die Jahre 1985 bis 1990 waren keine Angaben für die GUS-Staaten erhältlich. Jedoch stellen die im Jahr 1995 angegebenen Mengen weniger als 2 Prozent der globalen Menge dar. Somit liegt der relative Fehler in der globalen Menge des verbrauchten Treibstoffs durch die GUS-Staaten unter 2 Prozent. In China hingegen unterscheiden sich unterschiedliche Angaben

Tabelle B.7: Relativer Fehler der Verbrauchsdaten, der Emissionsfaktoren und der berechneten Emissionsmengen in Prozent; bei zwei Angaben werden Benzin und Diesel getrennt angegeben.

Region	Relativer Fehler				
	Verbrauch	Emissionsfaktor			
		CO ₂	NO _x	CO	NMHC
[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	
USA	3/1.5	3/2	12/56	20/50	50
Canada	1.5	3/2	11/56	20/50	50
EU 15	1.5	3/2	7/20	20/50	50
Lat.Amer	15	3/2	13/15	20/50	50
Afrika	15	3/2	13/15	20/50	50
Nordafrika	15	3/2	13/15	20/50	50
Europe	1/1.5	3/2	14/20	20/50	50
Osteuropa	20	3/2	20/15	20/50	50
GUS	-	3/2	40/80	20/15	50
Naher Osten	20	3/2	13/15	20/50	50
Indien	20	3/2	100	20/50	50
China	100	3/2	13/15	20/50	50
Asien	60/40	3/2	15	20/50	50
Ozeanien	3	3/2	1	20/50	50
Japan	3	3/2	8/12	20/50	50
Global	15	3/2	13/21	20/50	50

bis zu einem Faktor 3, wodurch sich eine relative Unsicherheit von mehr als 50 Prozent ergibt. In Südostasien sind die Angaben der *IEA* [1996] für den Benzin- und Dieselverbrauch deutlich niedriger. In der Folge wird ihre Unsicherheit mit 60 Prozent (Benzin) bzw. 40 Prozent (Diesel) abgeschätzt. In den Regionen Südamerika, Osteuropa, Nordafrika, Naher Osten und Indien wird die Unsicherheit der Verbrauchsdaten einheitlich mit 20 Prozent abgeschätzt.

B.2.2.2 Emissionsfaktoren

Zweitens, hängt die Berechnung der Gesamtemissionsmenge entscheidend von dem verwendeten aggregierten Emissionsfaktor für eine Region ab. Im Allgemeinen sind die Emissionsfaktoren prozess- und treibstoffabhängig. Für die Verbrennung der fossilen Treibstoffe durch den Straßenverkehr existieren Standardtechnologien. Somit hängen die Emissionsfaktoren insbesondere vom eingesetzten Treibstoff, vor allem Benzin und Diesel und in geringem Umfang Flüssiggas, und zusätzlich vom Hubraum der Fahrzeuge ab.

Der Emissionsfaktor wird für die Berechnung eines globalen Katasters meist in seiner spezifischen Form angegeben, d.h. er wird als Masse pro umgesetzter Energieeinheit angegeben. Es gibt nun verschiedene Möglichkeiten, den Emissionsfaktor zu bestimmen. Einerseits können Abgasstandards verwendet werden und andererseits kann auf sogenannte *real-world*-Emissionsfaktoren

zurückgegriffen werden, die durch Messungen an in Betrieb befindlichen Flottenfahrzeugen gewonnen werden. Für die Erstellung eines globalen Emissionsdatensatzes müssen *real-world* Emissionsfaktoren verwendet werden.

B.2.2.3 Unsicherheit von Kohlendioxid

Für die Berechnung der CO₂-Emissionen wird meist unabhängig von der Verbrennungstechnologie ein einheitlicher Emissionsfaktor für einen Treibstofftyp eingesetzt. Der in *Olivier et al.* [1996] für flüssige Brennstoffe angegebene Emissionsfaktor von 19.26 kg [C] pro umgesetztem Gigajoule Treibstoff vernachlässigt, die nicht oder nur teilweise oxidierten Anteile im Abgas. Für die globalen mittleren Emissionsfaktoren ergibt sich ohne diese Vernachlässigung von CO, Kohlenwasserstoffen und Partikeln ein Emissionsfaktor von nur 15.79 kg/GJ für Benzin und 18.60 für Diesel. Dies entspricht einer relativen Unsicherheit von 10 Prozent für Benzin und 2 Prozent für Diesel. Hierbei ist der Fehler durch den Anteil, der in der Form von Ruß emittiert wird, berücksichtigt, da dieser ebenfalls die Emissionsmenge des Kohlendioxids verringert. *Köhler et al.* [2000] nehmen in ihrer Arbeit einen Emissionsindex für dieselbetriebene Fahrzeuge von 2 g Kohlenstoff pro kg Treibstoff für industrialisierte Länder und 10 g [C] pro kg Treibstoff für den Rest der Welt an. Diese Faktoren wurden in obiger Rechnung verwendet. In diesem Zusammenhang muss jedoch erwähnt werden, dass das Endprodukt der atmosphärischen Reaktionen eines Teils der Nebenprodukte, insbesondere von Kohlenmonoxid ebenfalls meist Kohlendioxid ist. Somit gelangt diese Menge CO₂ zeitlich verzögert in die Atmosphäre. Sie kann zu den CO₂-Emissionen gerechnet werden, da in der vorliegenden Arbeit für CO₂ die Klimawirkung der Emissionen entscheidend ist, und nicht die direkt an der Quelle entstehende Menge. Die zeitliche Verzögerung bei CO beträgt im Mittel 60 Tage, die der NMHCs hingegen ist stark abhängig von der emittierten Spezies und kann typischerweise zwischen zwei Tagen und einem Jahr liegen. Für die Abschätzung der Klimawirkung kann bei einer mittleren Lebensdauer von Kohlendioxid von mehr als 100 Jahren, der Anteil des Kohlenmonoxids in guter Näherung zu CO₂ oxidiert betrachtet werden. Hierdurch reduziert sich die Überschätzung im globalen Mittel auf 2 Prozent und 1 Prozent (Benzin und Diesel), der Emissionsfaktor beträgt 18.45 kg/GJ und 18.99 kg/GJ. Da die Reaktionspfade der Kohlenwasserstoffe deutlich komplexer ablaufen [*Atkinson*, 2000], wird für sie diese Vereinfachung hier nicht vorgenommen.

Die Unsicherheit der im Treibstoff enthaltenen Menge Kohlenstoff, die in der Regel durch das Verhältnis C/H gegeben ist, wird mit Hilfe von Literaturangaben abgeschätzt. *Eggleston et al.* [1993] nehmen ein C/H-Verhältnis von 1.8 für Benzin und 2.0 für Diesel an. Daraus ergibt sich eine maximale Emissionsmenge für CO₂ von 19.76 g/GJ bzw. 20.15 g/GJ (Benzin und Diesel). Mit einem höheren Wert für den Energieinhalt nach *Olivier et al.* [1996] ergeben sich Emissionsfaktoren von 19.39 g/GJ bzw. 19.78 g/GJ. GEIA hingegen benutzen einen um 8.2 Prozent geringeren Emissionsfaktor für die Berechnung ihres globalen Katasters [*Olivier et al.*, 1996]. Im Mittel ergeben sich Emissionsfaktoren von 19.47 g/GJ bzw. 19.73 g/GJ, daher wird die Unsicherheit mit 3 Prozent (Benzin) bzw. 2 Prozent (Diesel) abgeschätzt. Die Fehler in den einzelnen Regionen auf Grund der nicht oder teilweise oxidierten Abgaskomponenten hängen von den jeweiligen Emissionsfaktoren der anderen Spurenstoffe (wie NO_x, CO, Partikel, etc.) ab. Sie werden wie oben

Tabelle B.8: NO_x-Emissionsfaktoren für unterschiedliche Abgasstandards auf unterschiedlichen Straßentypen in Abhängigkeit vom Hubraum der Fahrzeuge; in g NO₂ pro GJ umgesetzte Energie; typische Geschwindigkeiten für Deutschland wurden verwendet: Stadt (37 km/h), Landstraße (75 km/h) und Autobahn (106/116/125 km/h, je nach Hubraum) [Eggleston *et al.*, 1993].

Abgasstandard und Hubraum	Stadt [g/GJ]	Landstraße [g/GJ]	Autobahn [g/GJ]	40/30/30 [g/GJ]	70/30 [g/GJ]
Ohne Abgasnorm					
<i>bis 1.4 l</i>	585.	857.	694.	700	666
<i>1.4-2.0 l</i>	578.	938.	905.	780	686
<i>ab 2.0 l</i>	555.	906.	851.	750	660
Geregelter Katalysator					
<i>bis 1.4 l</i>	96.	162.	191.	144.	123
<i>1.4-2.0 l</i>	81.	139.	150.	119.	105
<i>ab 2.0 l</i>	66.	113.	111.	94.	83

erläutert hier vernachlässigt, da ein Großteil mit kurzer Verzögerung (Größenordnung Monate) ebenfalls in CO₂ übergeführt werden. In Tabelle B.7 sind die Abschätzungen der regionalen und globalen Fehler der CO₂-Emissionsfaktoren zusammengestellt.

B.2.2.4 Emissionsfaktoren für Stickoxide

Bei einer Fehlerabschätzung der Emissionsfaktoren für NO_x, CO und NMHC wird der Fehler des aggregierten Faktors abgeschätzt durch die Bandbreite verschiedener, mittlerer, von den Verbrennungsbedingungen abhängigen Emissionsfaktoren. Hierfür werden im Folgenden Angaben für einzelne Emissionsstandards nach CORINAIR, aus Einzelarbeiten und der amerikanischen Umweltbehörde (EPA) verwendet. Die Einheit der Emissionsfaktoren ist durchweg molekulare Masse des Spurengases (NO₂, CO, NMHC) pro GJ verbrannter Treibstoff. Die auf diese Weise bestimmten Unsicherheiten sind in Tabelle B.7 eingetragen. Auffällig ist auch hier, dass die Verfügbarkeit von nationalen Abschätzungen für Emissionsfaktoren je nach Region stark variiert. So sind nur umfangreiche Studien für Europa und die USA erhältlich. Diese dienen folglich für andere Regionen als Anhaltspunkt.

Für Europa wurden im Rahmen von CORINAIR Emissionsfaktoren aus einer Vielzahl von unterschiedlichen Messungen zusammengestellt, um die Straßenverkehrsemissionen im Jahr 1990 berechnen zu können [Eggleston *et al.*, 1993]. In Tabelle B.8 sind die an Fahrzeugen mit unterschiedlichen Emissionsstandards gemessenen NO_x-Emissionsfaktor für typische Geschwindigkeiten in der Stadt, auf der Landstraße und auf der Autobahn für Deutschland angegeben. Für 1990 wird davon ausgegangen, dass nur Fahrzeuge ohne Abgasstandard betrieben wurden, da die erste europäische Emissionsnorm 1993 (Euro I) in Kraft trat. Die Annahme eines Modal-Split von 40 Prozent Stadt und 30 Prozent Verbrauch auf der Landstraße und der Autobahn ergibt für eine Verteilung auf die Hubraumklassen von 40/40/20 einen Emissionsfaktor von 742 g pro GJ verbrauchte Benzinmenge in Deutschland. Da der Emissionsfaktor der Stickoxide mit abnehmender

Geschwindigkeit sinkt, ergeben sich in anderen Ländern mit geringeren Durchschnittsgeschwindigkeiten auf der Landstraße und der Autobahn entsprechend geringere Emissionsfaktoren. Für den verbrauchsorientierten Ansatz wird für die westeuropäischen Länder ein Emissionsfaktor von 700 g NO_x pro GJ umgesetzter Energie angenommen. Der Vergleich der Werte zeigt, dass sie in der gleichen Größenordnung liegen. Somit ergibt sich ein Unsicherheitsbereich von etwa 721 ± 21 g/GJ, ein relativer Fehler von 3 Prozent. Dieser Wert wird als relativer Fehler des Emissionsfaktors für Westeuropa angesetzt. Für dieselbetriebene Fahrzeuge wird von *Olivier et al.* [1996] der gleiche Emissionsfaktor angenommen. Die hiermit verbundenen Unsicherheit wird weiter unten abgeschätzt. Die sich aus dieser Abschätzung ergebenden Werte sind in Übereinstimmung mit *John et al.* [1999], die eine relative Abweichung ermittelten zwischen Emissionsmodell und Tunnelmessungen für Stickoxide. Sie fanden für den Personenverkehr eine relative Unterschätzung durch das Modell von 10 Prozent und für den Schwerlastverkehr von 48 Prozent. Unter der Annahme, dass der Personenverkehr mit benzinbetriebenen Fahrzeugen betrieben wird, kann die 10-prozentige Unterschätzung mit den 7 Prozent der benzinbetriebenen Flotte verglichen werden. Der Schwerlastverkehr läuft vornehmlich mit Diesel ab, entsprechend sind die 40 Prozent Unsicherheit, die in dieser Arbeit angenommen werden, mit den 48 Prozent von *John et al.* [1999] vergleichbar.

Für die USA und Canada werden Angaben nach *Mobile5* [1995], *Viguier* [1999] und *Eggleston et al.* [1993] verglichen. In dem Handbuch für Emissionsberechnung der amerikanischen Umweltbehörde [*Mobile5*, 1995] wird in einer Sensitivitätsstudie der Einfluss der Fahrzyklen und Geschwindigkeiten untersucht. Die Studie wird für acht Fahrzeugtypen, benzin- und dieselbetrieben gleichzeitig durchgeführt. Für einen Vergleich mit dem im verbrauchsorientierten Ansatz verwendeten Emissionsfaktor für NO_x ist dies zulässig, da er für alle Fahrzeugtypen identisch mit 700 g/GJ angesetzt wird. Es ergibt sich ein mittlerer Wert von 731 g/GJ, mit einer Schwankungsbreite von 657 bis 822 g/GJ, etwa 12 Prozent Unsicherheit. Für dieselbetriebene Fahrzeuge wird in den USA von *Olivier et al.* [1996] ein Emissionsfaktor von 900 g/GJ angenommen. Hierbei setzt sich die Flotte zu 70 Prozent aus Lastwagen zusammen. Eine Abschätzung an Hand der Angaben des *AP-42* [1995] ergibt einen mittleren Emissionsfaktor von 1760 g/GJ für diese Flottenzusammensetzung. Dies ist deutlich höher als der von *Sawyer et al.* [2000] angenommene Emissionsfaktor von 930 g/GJ für das Jahr 1995. Dieser Wert ist ebenfalls deutlich höher als der von *Olivier et al.* [1996] angenommene. Die abgeschätzte Unsicherheit beträgt somit 56 Prozent für die NO_x-Emissionen aus dieselbetriebenen Fahrzeugen. Das bedeutet, die NO_x-Emissionen durch dieselbetriebene Fahrzeuge sind eventuell um den Faktor 2 unterschätzt. In Europa hingegen ist der Anteil der dieselbetriebenen PKWs höher und ihre Emissionsfaktoren (und Unsicherheiten) liegen deutlich niedriger [*Eggleston et al.*, 1993]. Deswegen wurde oben eine geringere Unsicherheit von nur 30 Prozent abgeschätzt.

In weniger industrialisierten Ländern liegen die typischen Geschwindigkeiten deutlich niedriger. So kann der Modal-Split mit 70 Prozent Stadt und 30 Prozent Landstraße abgeschätzt werden. Zusätzlich kann der Anteil von Fahrzeugen, die 1990 mit einem Katalysator ausgerüstet waren vernachlässigt werden. Schließlich wird noch berücksichtigt, dass in weniger industrialisierten Ländern häufig durch fehlende technische Überwachungsprogramme die Motoren den Treibstoff uneffektiver verbrennen. Dies führt neben einem erhöhten Treibstoffverbrauch zu einer geringeren Temperatur im Brennraum, die eine geringere Oxidation des Stickstoffs zur Folge hat. Für

die Fehlerabschätzung wird ein um 20 Prozent erhöhter Verbrauch, und damit ein um 20 Prozent geringerer Emissionsfaktor (verbrauchsbezogen) für NO_x angenommen. Für weniger industrialisierte Länder wird somit nach [Eggleston *et al.*, 1993] ein Wert von 510 g/GJ abgeschätzt. Eine um 10 Prozent uneffektivere Verbrennung ergibt beispielsweise einen Emissionsfaktor von 574 g/GJ. Für den verbrauchsorientierten Ansatz wurde ein Emissionsfaktor nach Olivier *et al.* [1996] von 500 g/GJ für weniger industrialisierte Regionen wie Lateinamerika, den Nahen Osten, Osteuropa und China angenommen. Aus der Abschätzung ergibt sich für diese Regionen eine relative Unsicherheit von 13 Prozent für benzinbetriebene Fahrzeuge. In einer Reihe von weniger industrialisierten Staaten - Afrika, GUS, Naher Osten - wird ein Emissionsfaktor von 900 g/GJ für den Dieserverbrauch angenommen [Olivier *et al.*, 1996]. Dies spiegelt, wie Tabelle B.8 zu entnehmen ist, einen oberen Wert für den Emissionsfaktor wider und die Unsicherheit wird mit 15 Prozent angenommen.

In den Osteuropäischen Staaten Russland, Polen und Ungarn rechnet Viguiet [1999] mit Werten von jeweils 320, 602 bzw. 560 g/GJ. Olivier *et al.* [1996] gehen hier von 500 g/GJ aus. Somit liegt der relative Fehler der Emissionsfaktoren für Osteuropa bei etwa 20 Prozent und für die Gemeinschaft unabhängiger Staaten (GUS) höher bei etwa 40 Prozent.

In Japan hingegen wird ein sehr geringer Emissionsfaktor von 200 g/GJ angenommen. Dies ist auf einen hohen Anteil der Fahrzeuge, die mit einem geregelten Katalysator ausgerüstet sind zurückzuführen. Eggleston *et al.* [1993] geben zusätzlich die Emissionsfaktoren für Fahrzeuge mit geregelten Katalysatoren an, die bei einem Modalsplit von 40/30/30 zwischen 94 und 144 g/GJ liegen (Tabelle B.8). Ein Anteil von 75 Prozent geregelten Katalysatoren, der Rest der Flotte mit unregelmäßigem Katalysator, ergibt bei einem Modalsplit wie in Europa einen Emissionsfaktor von 206 g/GJ. Eine statistische Variation des Anteils der geregelten Katalysatoren ergibt ein Unsicherheitsintervall zwischen 206 ± 18 g/GJ, also etwa 8 Prozent relativer Fehler. Für Japan wird die Unsicherheit wie für die USA in Höhe von 12 Prozent angenommen. Mit der Annahme einer uneffektiven Verbrennung und geringen Geschwindigkeiten können geringere Werte begründet werden. In Indien werden nur 300 g pro GJ angenommen.

B.2.2.5 Emissionsfaktoren für Kohlenmonoxid

Die Emissionsfaktoren für Kohlenmonoxid besitzen eine höhere Unsicherheit als die der Stickoxide, da ihre Entstehung empfindlich von den genauen Verbrennungsbedingungen abhängt. Zur Verdeutlichung des hohen Fehlers der CO-Emissionsfaktoren werden im Folgenden erneut Werte verglichen, die mit unterschiedlichen Verfahren ermittelt wurden. Da Kohlenmonoxidemissionsfaktoren bei kaltem Wetter deutlich ansteigen, ist die bei der Messung herrschende Temperatur entscheidend für die Höhe der Faktoren [AP-42, 1995]. Ein Vergleich der *real-world*-Emissionsfaktoren bei unterschiedlichen Umgebungstemperaturen mit Emissionsstandards, die bei 25°C gemessen wurden zeigt, dass teilweise erhebliche Unterschiede bestehen. In Tabelle B.9 ist dieser Vergleich exemplarisch für verschiedene Abgasstandards in Europa dargestellt. Der Unterschied der Emissionsstandards zu den tatsächlich gemessenen Werten kann bis zu 80 Prozent betragen.

Für die USA wurde für **benzinbetriebene** Fahrzeuge mit den Angaben der amerikanischen Umweltbehörde [AP-42, 1995] ein mittlerer Emissionsfaktor von 7500 g/GJ berechnet. Diese Angaben

Tabelle B.9: CO-Emissionsfaktoren nach COPERT und nach EU-Emissionsstandards *Samaras, 1996*]

Standard	CO-Emissions-	CO nach COPERT		Verhältnis COPERT-EF/ Standard
	Standard [g/km] bei 25° C	bei 25° C	[g/km] bei tatsächl. Temp.	
ECE 00/01	34.6	37.1	51.7	1.49
ECE 02	27.6	31.9	44.5	1.61
ECE 03	22.5	30.4	42.2	1.88
ECE 04	17.3	19.9	27.8	1.61
Geregelter Kat.	3.16	-	-	
Mittel	21.0	24.8	41.6	1.65

besitzen für die Klasse der benzinbetriebenen Personenkraftwagen Gültigkeit, die 75 Prozent des Gesamtverkehrs ausmachen [*Heavenrich und Hellmann, 2000*]. Da die Menge der CO-Emissionen stark von der Geschwindigkeit abhängt, ergibt sich beispielsweise bei stärkerer Gewichtung der niedrigen Geschwindigkeiten ein deutlich höherer Faktor von 11 370 g/GJ. Dies zeigt deutlich die hohe Sensitivität der CO-Emissionsmenge auf die Motorbedingungen. Diese Annahme der starken Gewichtung der Fahrten mit unter 5 km/h ist im nationalen Mittel für Amerika nicht realistisch. Folglich wird der Wert 7500 g/GJ als Abschätzung verwendet, während *Olivier et al. [1996]* einen Emissionsfaktor für benzinbetriebene Fahrzeuge von 4700 g/GJ vorschlagen. Die relative Unsicherheit des Emissionsfaktors benzinbetriebener Fahrzeuge beträgt in den USA daher 60 Prozent.

Bei **dieselbetriebenen** Fahrzeugen verursachen Lastwagen etwa 65 Prozent der zurückgelegten Kilometer (Fracht- und Personenkilometer) [*Heavenrich und Hellmann, 2000*]. Für sie kann von einem mittleren Verbrauch von 11.2 l/100 km ausgegangen werden. Somit ergibt die Abschätzung des Emissionsfaktors 1128 g/GJ für einen Standardfahrzyklus bei einer Geschwindigkeit zwischen 30 und 60 km/h. Für das Geschwindkeitsintervall von 4 bis 100 km/h ergibt sich ein mittlerer CO-Emissionsfaktor von 1690 g/GJ. Der von *Olivier et al. [1996]* verwendete Emissionsfaktor deutlich niedriger bei 900 g/GJ. Somit stellt dies eine Unsicherheit des CO-Emissionsfaktors für dieselbetriebene Fahrzeuge von 50 Prozent dar. In anderen Regionen zeigt sich ebenfalls der hohe Unterschied zwischen benzin- und dieselbezogenem Emissionsfaktor. Für die Abschätzung der Unsicherheit des Emissionsfaktors von Kohlenmonoxid in anderen Regionen werden die oben gemachten Überlegungen übernommen und einheitliche relative Fehler von 60 Prozent bzw. 20 Prozent angenommen (Tabelle B.7).

Mit diesen Unsicherheiten für die Emissionsfaktoren und Verbrauchsmengen wird die Unsicherheit der berechneten Kohlenmonoxidemission abgeschätzt. Der verbrauchsorientierte Ansatz ergibt eine Gesamtemission von 166.9 Tg [CO] pro Jahr. Hierbei fehlen erneut Emissionen für die GUS (22.9 Tg [CO] nach *Olivier et al. [1996]*) völlig, da keine Verbrauchsdaten in [*UNSTAT, 1997*] enthalten sind. Die Unsicherheit der Kohlenmonoxidemissionen des Straßenverkehrs beträgt 86.1 Tg [CO] oder 51 Prozent.

Tabelle B.10: **NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs** (in Gg [C]) im Jahr 1990 durch benzin- (Benzin) und dieselbetriebene (Diesel) Fahrzeuge und deren Unsicherheit. Die Unsicherheit der GUS wurde - da Verbrauchsdaten fehlen - als die gesamte von EDGAR2.0 [Olivier *et al.*, 1996] angegebene Menge angesetzt.

Region	NMHC-Emission			Unsicherheit		
	Benzin	Diesel	Gesamt	Benzin	Diesel	Gesamt
	Gg [C]	Gg [C]	Gg [C]	Gg [C]	Gg [C]	Gg [C]
USA	7958	538	8496	4337	281	4618
Canada	964	25	989	501	13	514
EU 15	4679	391	5070	2433	203	2636
Lat.Amerika	3085	308	3393	2237	223	2460
Afrika	1074	88	1162	779	64	843
W.Europa	310	10	320	160	5	165
Osteuropa	351	52	403	281	42	322
GUS	-	-	-			2700
Naher Osten	1397	266	1663	1118	213	1330
Indien	941	131	1072	753	105	858
China	1404	152	1556	1404	152	1556
Asien	1877	168	2045	1877	168	2045
Ozeanien	709	28	737	386	15	402
Japan	1941	160	2101	1058	87	1145
global	26332	2318	29007	17324	1570	18894

B.2.2.6 Emissionsfaktoren für NMHC-Verbindungen

Zunächst wird die Unsicherheit des Emissionsfaktors für die Gesamt-Kohlenwasserstoffe abgeschätzt. Die NMHC-Emissionen weisen eine starke Abhängigkeit von Motorparametern, wie beispielsweise Motortemperatur, auf. *Kurtenbach et al.* [2002] fanden bei Messungen in einem Tunnel in Deutschland, dass die Angaben des Umweltbundesamts für VOC-Emissionen des Straßenverkehrs zu gering sind. Da eine exakte Abschätzung des Fehlers im Rahmen dieser Fehlerbetrachtung nicht möglich ist, wird von einer einheitlicher Unsicherheit der NMHC-Emissionen von 50 Prozent ausgegangen.

Um den Fehler der Emissionsfaktoren der einzelnen NMHC-Verbindungen abzuschätzen, steht eine nur geringe Anzahl an Einzelstudien für einzelne Regionen zur Verfügung, beispielsweise *Kourtidis et al.* [1999], *Siegl et al.* [1999], *Samaras et al.* [1996] und *Friedrich*, 2003]. *Kourtidis et al.* [1999] finden bei Messungen des Emissionsverhältnis NMHC/NO_x in Athen, Griechenland, hohe Unterschiede zu dem von einem Modell berechneten Verhältnis, wodurch sie auf Fehler in den Emissionskatastern für Athen schließen. Zusätzlich finden sie einen Zusammenhang der Zusammensetzung des Abgases von der Außentemperatur. *Siegl et al.* [1999] finden bei Messungen an einem Dieselfahrzeug, dass sich etwa 80 Prozent der NMHC-Emissionen in der leichtflüchtigen Fraktion (C₂-C₁₂) und etwa 20 Prozent in der semi-volatilen Fraktion (> C₁₂) befinden. Ethen stellt

Tabelle B.11: NO_x-Emissionsmengen aus dem Straßenverkehr 1990, nach eigenen Berechnungen mit einem verbrauchsorientiertem Ansatz (VBA) und nach CORINAIR90 (COR90), CORINAIR94 (COR94) [EEA, 199X] und EDGAR 2.0 [Olivier et al., 1996] in Mg [N]. Zum Vergleich der Angaben ist das Verhältnis des VBA zu CORINAIR90 (VBA/COR) dargestellt.

Land	VBA90	COR90	VBA/COR
Österreich	42.6	46.7	0.91
Belgien	59.0	57.9	1.02
Dänemark	24.7	31.1	0.80
Finnland	31.9	36.2	0.88
Frankreich	307.9	315.8	0.98
Deutschland	461.0	496.0	0.93
Griechenland	33.7	34.7	0.97
Irland	13.3	13.4	0.99
Italien	252.0	287.9	0.87
Luxemburg	6.9	2.8	2.41
Niederlande	62.5	82.8	0.75
Portugal	25.7	32.5	0.79
Spanien	131.6	155.761	0.85
Schweden	56.2	49.6	1.13
UK	314.3	420.8	0.75
EU15	1823.1	2063.9	0.88
Rest OECD EU	66.2	-	-
OECD EU	1889.4	2121.0	0.89

etwa 30 Prozent der NMHC-Emissionen dar. Im Rahmen des EUROTRAC-2 Projekts GENEMIS [Friedrich, 2003] wurden die Emissionsdaten u.a. für NMHC eingehend analysiert. Es besteht noch weiterhin eine hohe Unsicherheit, weshalb in der vorliegenden Arbeit die Unsicherheit der einzelnen emittierten Spezies nicht abgeschätzt wird.

B.2.3 Vergleich aktivitätsorientierter mit verbrauchsorientiertem Ansatz

Für die Region OECD-Europa ergibt sich nach dem verbrauchsorientierten Ansatz für die Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs 1.89 Tg [N] pro Jahr (Tabelle 5.1). Um die Anwendbarkeit des verbrauchsorientierten Ansatzes zu zeigen, werden die Ergebnisse für Europa mit Angaben von EDGAR 2.0 [Olivier et al., 1996] und CORINAIR90 [EEA, 1993] verglichen. Bei EDGAR 2.0 handelt es sich ebenfalls um einen verbrauchsorientierten Ansatz, während die Vorgaben der Europäischen Kommission für CORINAIR90 einen aktivitätsorientierten Ansatz vorsehen. Nach EDGAR 2.0 [Olivier et al., 1996] beträgt die Emissionsmenge in der Region 2.04 Tg [N] pro Jahr und liegt somit knapp 8 Prozent höher als die in dieser Arbeit durchgeführte Berechnung. Der Vergleich mit CORINAIR [EEA, 1993] zeigt ebenfalls, dass CORINAIR90 höher liegt und zwar um 12 Prozent (Tabelle B.11). Je nach Land betragen die Unterschiede zwischen minus 25 Prozent und plus

Tabelle B.12: Globaler Mittelwert der zukünftigen Emissionsfaktoren für die NO_x- und die NMHC-Emissionen für Benzin- und Dieselmotoren getrennt; in Gramm (der vollen Molekularmasse) pro verbranntem GJ (Energie im Treibstoff): Szenarien moderater Anstieg (MO), Reduktion um 2% pro Jahr (RD) und Reduktion um 2.5% (NO_x) bzw. 4% (NMHC) pro Jahr (RR).

	Kraftstoff	2010			2015			2020		
		MO	RD	RR	MO	RD	RR	MO	RD	RR
NO _x	Benzin	732	401	287	697	443	351	809	327	351
NO _x	Diesel	976	534	382	929	591	469	1078	436	469
NMHC	Benzin	1220	668	442	1161	739	542	1348	545	294
NMHC	Diesel	207	113	84	197	126	103	229	93	56

15 Prozent. Vereinzelt sind hohe Differenzen zwischen verbrauchsorientiertem - nach Treibstoffverbrauch - und aktivitätsorientierten - nach gefahrenen Kilometern - Berechnungsansatz möglich. Beispielsweise bei Luxemburg beträgt der Unterschied zwischen aktivitätsorientiertem und verbrauchsorientiertem Ansatz plus 140 Prozent. Dieser große Unterschied wird dadurch verursacht, dass auf Grund der niedrigen Treibstoffpreise in Luxemburg ein Großteil des Treibstoffs, der im Land gekauft wird, nicht im Land selber verbraucht wird, sondern in den Nachbarländern verfahren wird [IEA, 2000]. Insgesamt ergeben sich für OECD-Europa Unterschiede von etwa 10 Prozent zwischen den beiden Ansätzen. Für eine Berechnung der weltweiten Emissionen mit einem einheitlichen Verfahren, bietet sich aus Gründen der verfügbaren und vergleichbaren Ausgangsdaten der verbrauchsorientierte Ansatz an.

B.3 Makroökonomische Projektion zukünftiger Emissionen

Für die Abschätzung der zukünftigen Emissionen mit einem makroökonomischen Ansatz ist es notwendig die zwei ökonomischen Indikatoren - Wachstum des Bruttoinlandsprodukts und Produktivität der Produktionsfaktoren - für die zukünftige Entwicklung zu beschreiben. Hierfür können Ergebnisse aus makroökonomischen Modellen verwendet werden, die mögliche Entwicklungen beschreiben. In der vorliegenden Arbeit wird für den Straßenverkehr angenommen, dass der Treibstoffverbrauch mit dem Bruttoinlandsprodukt wächst und die Effizienz des Treibstoffverbrauchs sich analog zur Produktivität der Produktionsfaktoren (TFP, engl. *total factor productivity*) entwickelt. Die Entwicklung dieser beiden makroökonomischen Indikatoren ist in den Tabellen B.13 und B.14 für zwei Szenarien der OECD [1997] - schwaches(l) und starkes(h) Wirtschaftswachstum - bis zum Jahr 2020 dargestellt. Weiterhin sind in Tabelle B.3 die zukünftigen Emissionsfaktoren angegeben, unter Annahme der jeweiligen jährlichen Änderungsrate. Es wurde eine moderate Zunahme des Emissionsfaktors von 1 Prozent (M), eine Abnahme um 2 Prozent (R) und um 2.5 Prozent (NO_x) bzw. 4 Prozent (NMHC) (RR) pro Jahr angenommen. Im Szenario RR wird diese jährliche Rate bis zum Jahr 2015 beibehalten, anschließend bleiben die Emissionsfaktoren konstant. In Kapitel 4 wurden die zukünftigen NO_x-Emissionen des Straßenverkehrs dargestellt. Hier werden nun die zukünftigen NMHC-Emissionen gezeigt (Tabelle B.15), die auf analoge Weise berechnet

Tabelle B.13: Wachstum des Bruttonationalprodukts nach zwei makroökonomischen OECD-Szenarien - starkes (ST) und schwaches (SCHW) Wirtschaftswachstum - für verschiedene Zeiträume [*OECD*, 1997] in Prozent pro Jahr.

	1990-95	1995-2000		2000-2010		2010-2020	
		ST	SCHW	ST	SCHW	ST	SCHW
Kanada	1.9	2.2	2.2	2.7	2.1	2.6	1.5
USA	1.9	2.2	2.2	2.7	2.1	2.6	1.5
Südamerika	4.2	4.3	3.0	5.9	3.2	4.9	2.8
Afrika	1.3	6.0	2.8	7.1	2.8	7.0	2.6
Westeuropa	1.8	2.4	2.4	2.8	2.0	2.3	1.3
Osteuropa	4.7	6.8	5.0	7.2	4.2	6.6	4.0
GUS	-9.4	3.5	1.1	6.0	4.2	6.9	4.0
Naher Osten	2.7	5.0	2.1	7.1	2.2	7.0	2.6
Indien (Region)	3.9	6.5	4.4	7.2	4.3	6.6	4.2
China (Region)	10.9	9.3	7.9	8.2	5.3	7.2	4.8
Ostasien	7.0	7.7	6.1	7.0	4.8	6.4	4.2
Ozeanien	2.7	4.3	4.3	4.7	4.0	4.3	3.4
Japan	1.3	3.3	3.3	2.9	2.0	2.3	1.2
Weltweit	2.9	4.4	3.6	5.0	3.2	4.9	2.8

Tabelle B.14: Entwicklung der Faktorproduktivitäten (TFP) nach zwei makroökonomischen OECD-Szenarien - starkes (ST) und schwaches (SCHW) Wirtschaftswachstum - für verschiedene Zeiträume [*OECD*, 1997] in Prozent pro Jahr.

	1990-95	1995-2000		2000-2010		2010-2020	
		ST	SCHW	ST	SCHW	ST	SCHW
Kanada	0.5	0.6	0.6	0.9	0.5	1.3	0.6
USA	0.5	0.6	0.6	0.9	0.5	1.3	0.6
Südamerika	0.9	1.7	0.9	2.4	1.0	1.8	1.0
Afrika	-0.7	2.4	0.5	2.9	0.4	2.8	0.4
Westeuropa	0.8	1.3	1.3	1.6	1.2	1.6	1.1
Osteuropa	1.9	3.0	1.9	3.0	1.3	2.7	1.4
GUS	0.	1.8	0.4	3.2	1.9	4.4	2.0
Naher Osten	-0.2	1.5	0.1	2.9	0.4	2.8	0.7
Indien (Region)	0.9	3.6	2.1	3.7	1.7	3.0	1.7
China (Region)	5.9	4.2	3.4	3.3	1.7	3.1	1.7
Ostasien	2.8	3.0	2.3	2.9	2.0	2.7	1.9
Ozeanien	0.5	1.1	1.1	1.5	1.1	1.7	1.0
Japan	-0.4	1.9	1.9	2.0	1.4	2.1	1.2

Tabelle B.15: Zukünftige **NMHC-Emissionen des Straßenverkehrs** in den Jahren 2010, 2015 und 2020 für die drei Szenarien HM (starkes Wirtschaftswachstum und moderater Anstieg des Emissionsfaktors), LR (schwaches Wirtschaftswachstum und Abnahme des Emissionsfaktors) und HM (starkes Wirtschaftswachstum und RR) in Tg [NMHC] pro Jahr.

Region	2010			2015			2020		
	HM	LR	HB	HM	LR	HB	HM	LR	HB
Kanada	2.2	1.2	0.8	1.9	1.2	0.9	2.7	1.0	0.6
USA	14.7	7.9	5.3	12.8	8.1	6.0	18.5	7.1	4.0
Südamerika	9.2	4.0	3.3	7.4	4.0	3.4	13.8	3.9	3.0
Afrika	3.7	1.3	1.3	2.8	1.3	1.3	6.1	1.3	1.3
Westeuropa	12.8	6.7	4.6	11.5	7.2	5.4	15.2	5.6	3.3
Osteuropa	1.8	1.0	0.7	1.6	1.0	0.8	2.2	1.0	0.5
GUS	3.4	1.5	1.2	2.8	1.5	1.3	4.9	1.5	1.1
Naher Osten	4.9	1.7	1.8	3.8	1.8	1.8	8.2	1.7	1.8
Indien(Region)	3.6	1.5	1.3	2.8	1.5	1.3	5.6	1.6	1.2
China(Region)	6.6	2.9	2.4	5.0	2.7	2.3	10.9	3.2	2.4
Ostasien	8.2	3.6	3.0	6.4	3.4	3.0	13.0	3.7	2.8
Ozeanien	1.9	1.0	0.7	1.6	1.0	0.7	2.8	1.1	0.6
Japan	4.3	2.3	1.6	3.9	2.5	1.8	4.8	1.9	1.1
Weltweit	77.4	36.7	28.0	64.4	37.0	30.1	108.8	34.5	23.7

wurden.

B.4 Mittlerer klimatologischer Zustand

Wie in Abschnitt 3.5 dargestellt, wurde ein Experiment auf zwei unterschiedlichen Rechnern durchgeführt. Ziel war es, die Ergebnisse dieser beiden Experimente zu vergleichen, um einen Einfluss der Meteorologie des mittleren klimatologischen Zustands auszuschließen. Zu diesem Zweck wurden einerseits die Maximalwerte für den Einfluss des Straßenverkehrs auf die Ozonverteilung in der 1000 hPa Schicht betrachtet (Tabelle B.16). Die absoluten Werte weichen im Januar um maximal 10 Prozent voneinander ab. Im Juli unterscheiden sich die absoluten Maximalwerte um 5 Prozent. Die absoluten Minimalwerte hingegen weichen um mehr als 40 Prozent, oder 1.5 ppb voneinander ab. Bei den relativen Werten entspricht dies (Minimalwert im Juli) einer relativen Abweichung von gut 20 Prozent, bzw. absolut 1.2 Prozent. Die restlichen Abweichungen der relativen Anteile liegen absolut bei gut 3 Prozent, relativ bis zu 30 Prozent. Es liegt jedoch keine einheitliche Abweichung in eine Richtung vor, so dass Simulation immer höhere Werte als die andere liefert.

In der horizontalen Verteilung der absoluten Beiträge des Straßenverkehrs zur Ozonverteilung (Abbildung B.4) zeigen sich nahezu die gleichen geographischen Muster: Im Januar Regionen mit Beiträgen über 2 ppb von Hawaii bis zum Golf von Mexiko und vom Mittelmeer bis nach Südostasien; Titration von Ozon (Regionen mit negativen Beiträgen) findet im Osten der USA

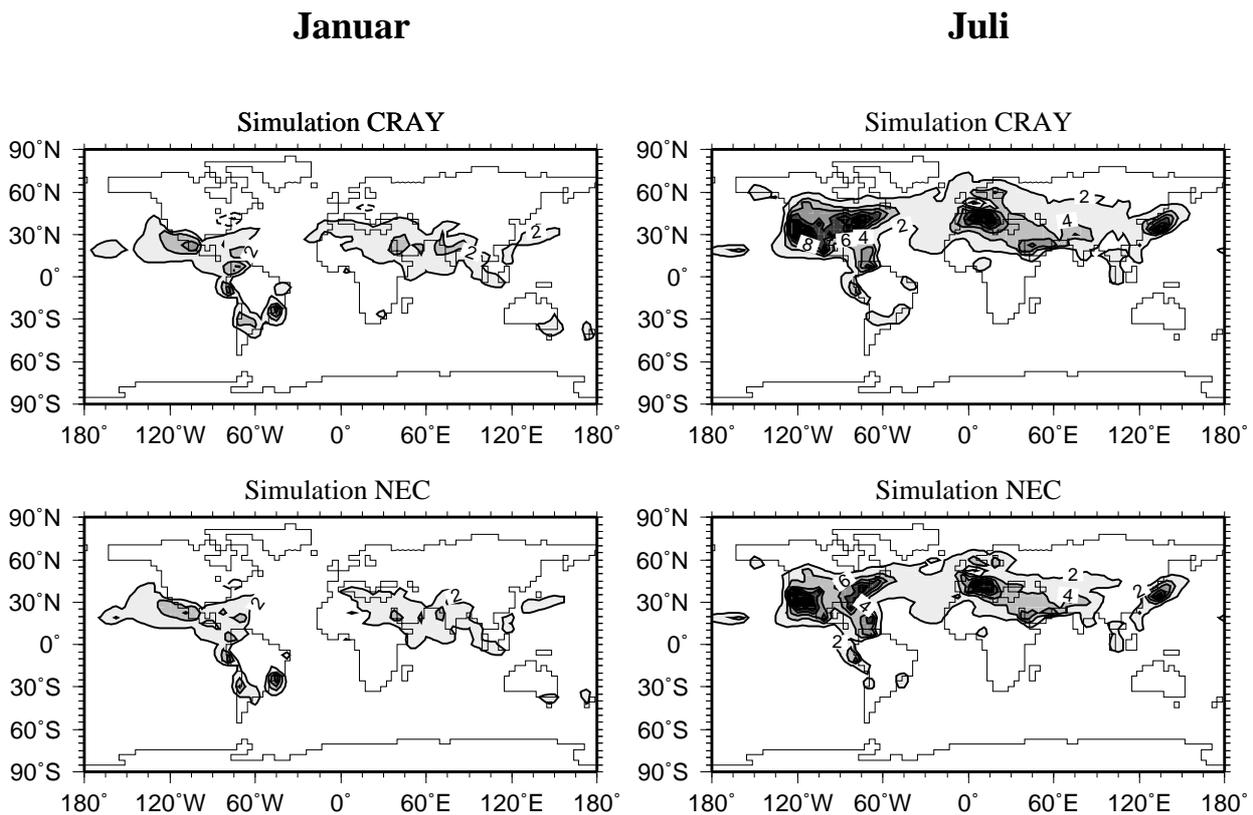


Abbildung B.3: Relativer Beitrag der NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs zu der horizontalen **Ozonverteilung (1000 hPa)** nach den Simulationen mit den Rechnern CRAY (*links*) und NEC (*rechts*) im Januar (*links*) und Juli (*rechts*) [ppb].

und (abgeschwächt) in Europa statt. Im Juli zeigen sich in beiden Experimenten maximale Beiträge an der Ost- und Westküste der USA, in der Mittelmeerregion und in Japan. In Mitteleuropa werden jeweils deutlich geringere (negative) Beiträge des Straßenverkehrs zu Ozon berechnet (siehe auch Tabelle B.16). Geringfügige Unterschiede bestehen beispielsweise an der Nordwestküste Afrikas und im Süden Chinas. Während im Experiment mit der Cray Beiträge über 2 ppb berechnet wurden, zeigen sich mit der NEC nur weniger als 2 ppb. Die Unterschiede sind in diesen Regionen jedoch kleiner als 10 Prozent. Die global gemittelten Ozonbeiträge des Straßenverkehrs aus beiden Experimenten unterscheiden sich um 3% im Juli und um 8% im Januar. Der relative Unterschied im Januar beträgt mehr als doppelt so viele Prozentpunkte wie im Juli, doch sind die absoluten Unterschiede im Januar nur knapp 40% höher als im Juli. Ursache hierfür ist der auf Grund der schwächeren Photochemie im Januar in den Quellregionen des Nordwinters deutlich niedrigere global gemittelte Beitrag des Straßenverkehrs zur Konzentrationsverteilung des bodennahen Ozons. Somit kann aus dem Vergleich der Maximalwerte und der horizontalen Verteilung der Beiträge des Straßenverkehrs festgehalten werden, dass kein systematischer Unterschied der beiden Simulationen vorliegt. Es gibt also keinen *bias* zwischen den mittleren meteorologischen Zuständen. Die Ergebnisse sind folglich unabhängig vom meteorologischen Zustand.

Tabelle B.16: Relative und absolute Beiträge zu der Ozonverteilung der Stickoxidemissionen des Straßenverkehrs für Januar und Juli in [ppb] und [%] auf zwei unterschiedlichen Rechnern simuliert: Cray und Nec SX4

Rechner	Absoluter Beitrag				Relativer Beitrag			
	Januar		Juli		Januar		Juli	
	Min	Max	Min	Max	Min	Max	Min	Max
	[ppb]	[ppb]	[ppb]	[ppb]	[%]	[%]	[%]	[%]
Cray	-2.3	11.1	-3.6	22.0	-10.1	29.5	-6.6	34.2
Nec SX4	-2.2	12.1	-2.1	20.9	-13.6	34.0	-5.4	37.2

B.5 Definition der charakteristischen Regionen

Um die Wirkung der Straßenverkehrsemissionen im Jahresverlauf zu betrachten, wurden charakteristische Regionen definiert. In diesen Regionen wird - neben der Mittelung über die in Tabelle B.17 angegebenen Höhenbereiche und geographischen Breiten - eine zonale Mittelung durchgeführt. Die Definition dieser Bereiche orientiert sich an der berechneten Änderung der Netto-Ozonproduktion (Abbildung 8.9, *links oben*). Auf diese Weise ist es möglich, die Saisonalität des Einflusses des Straßenverkehrs zu zeigen.

Tabelle B.17: Definition der charakteristischen Regionen über die gemittelt wird. BN = Bodennähe, FT = Freie Troposphäre, OT = Obere Troposphäre, MB = Mittlere Breiten, TR = Tropen.

Name	Geogr. Breite	Druckschichten [hPa]	Beschreibung
PN	60°N-90°N	1000 - 600	Arktis
NMB-BN	30°N-60°N	1000 - 800	Bodennähe, nördliche mittlere Breiten
Tro-BN	20°S-30°N	1000 - 850	Bodennähe, tropische Breiten
SMB-BN	40°S-20°S	1000 - 850	Bodennähe, südliche mittlere Breiten
Tro-FT	20°S-20°N	850 - 400	Freie Troposphäre, Tropen
NMB-OT	30°N-60°N	400 - 200	Obere Troposphäre, nördliche mittlere Breiten
Tro-OT	30°S-30°N	400 - 200	Obere Troposphäre, Tropen
SMB-OT	60°S-30°S	400 - 200	Obere Troposphäre, südliche mittlere Breiten

Anhang C

Literaturverzeichnis

- AARDENNE VAN, J.A., G.R. CARMICHAEL, H. LEVY II., D. STREETS und L. HORDIJK, Anthropogenic NO_x emissions in Asia in the period 1990-2020, *Atmos. Env.*, **33**, 633-646, 1999.
- ALCAMO, J., G.J.J. KREILEMAN, J.C. BOLLEN, G.J. VAN DEN BORN, R. GERLAGH, M.S. KROL, A.M.C. TOET und H.J.M DE VRIES, Baseline scenarios of global environmental change, *Global Environmental Change*, **6**, 261–303, 1996.
- ATKINSON, R., Atmospheric chemistry of VOCs and NO_x, *Atm. Env.*, **34**, 2063-2101, 2000.
- BAKWIN, P.S., P.P. TANS und P.C. NOVELLI, Carbon monoxide budget in the Northern Hemisphere, *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 433–436, 1994.
- BENKOVITZ, C.M., M.T. SCHOLTZ, J. PACYNA, L. TARRASÓN, J. DIGNON, E.C. VOLDNER, P.A. SPIRO, J.A. LOGAN und T.E. GRAEDEL, Global gridded inventories of anthropogenic emissions of sulfur and nitrogen, *J. Geophys. Res.*, **101**, 29,239-29,253, 1996.
- BRASSEUR, G.P., R.A. COX, D. HAUGLUSTAINE, I. ISAKSEN, J. LELIEVLED, D.H. LISTER, R. SAUSEN, U. SCHUMANN, A. WAHNER und P. WIESEN, European scientific assessment of the atmospheric effects of aircraft emissions, *Atm. Env.*, **32**, 2329-2418, 1998.
- CAPALDO, K., J.J. CORBETT, P. KASIBHATLA, P. FISCHBECK und S.N. PANDIS, Effects of ship emissions on sulphur cycling and radiative climate forcing over the ocean, *Nature*, **400**, 743-746, 1999.
- CLAUDE, *persönliche Mitteilung*, DWD, Hohenpeißenberg, 2000.
- CICERONE, R. J., How has the atmospheric concentration of CO changed? in *The changing atmosphere*, hrsg. F.S. Rowland und I.S.A. Isaksen, 49–61, New York, NY, John Wiley & Sons, 1988.
- COLVILE, R.N., E.J. HUTCHINSON, J.S. MINDELL und R.F. WARREN, The transport sector as a source of Air Pollution, *Atm. Env.*, **35**, 1537–1565, 2001.
- COOPER, D.A., Exhaust emissions from high speed passenger ferries, *Atm. Env.*, **35**, 4189–4200, 2001.
- COPERT, Computer Programm to calculate Emissions from Road Traffic, User's manual, CO-RINAIR Working Group on Emission Factors for Calculating 1990 Emissions from Road Traffic, Europäische Union, Brüssel, 1993.

- CRUTZEN, P.J., LAWRENCE, M.G. und U. PÖSCHL, On the background photochemistry of tropospheric ozone, *Tellus*, **51**, 123–146, 1999.
- CRUTZEN, P.J., Overview of tropospheric chemistry: developments during the past quarter century and a look ahead, *Faraday Discussions*, **100**, 1–21, Cambridge, England, 1995.
- CRUTZEN, P.J. und L.T. GIDEL, A two-dimensional photochemical model of the atmosphere, 2. The tropospheric budgets of the anthropogenic chlorocarbons, CO, CH₄, CH₃Cl and the effect of various NO_x sources on tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, **88**, 6641–6661, 1983.
- CRUTZEN, P.J. und P.H. ZIMMERMANN, The changing photochemistry of the troposphere, *Tellus*, **43 AB**, 136–151, 1991.
- COLON, M., J. D. PLEIL, T.A. HARTLAGE, M.L. GUARDANI und M.H. MARTINS, Survey of volatile organic compounds associated with automotive emissions in the urban airshed of Sao Paulo, Brazil, *Atmos. Environ.*, **35**, 4017–4031, 2001.
- DANIEL, J.S. und S. SOLOMON, On the climate forcing of carbon monoxide, *J. Geophys. Res.*, **103**, 13,249–13,260, 1998.
- DERWENT, R.G., M.E. JENKIN und S. M. SAUNDERS, Photochemical ozone creation potentials for a large number of reactive hydrocarbons under European conditions, *Atmos. Env.*, **30**, 181–199, 1996.
- DIERKESMANN, R. und H. SANDERMANN, Wirkung von Ozon auf Menschen und Pflanzen, *Pro-met*, **26**, 151–161, 2000.
- DUNCAN, B. N. und W.L. CHAMEIDES, Effects of urban emission control strategies on the export of ozone and ozone precursors from the urban atmosphere to the troposphere, *J. Geophys. Res.*, **103**, 28,159–28,179, 1998.
- DUTTON, J.A., *The ceaseless wind*, McGraw Hill, New York, USA, 1976.
- FABIAN, P., *Leben im Treibhaus*, Springer Verlag, Berlin, 2002.
- FISHMAN, J., V. RAMANATHAN, P.J. CRUTZEN und S.C. LIU, Tropospheric ozone and climate, *Nature*, **282**, 818–820, 1979.
- FRIEDRICH, R., Generation and Evaluation of Emission Data, in *Towards cleaner air for Europe - Science, Tools and Applications*, hrsg. von P.M. Midgley und M. Reuther, Margraf Publishers, Weikersheim, 2003.
- GALLIARDO-KLENNER, L.G. und V. COORAY, Could cloud-to-cloud discharges be as effective as cloud-to-ground discharges in producing NO_x, *Tellus*, **48B**, 641–651, 1996.
- GANZEVELD, L. und J. LELIEVELD, Dry deposition parameters in a chemistry general circulation model and its influence on the distribution of reactive trace gases, *J. Geophys. Res.*, **100**, 20,999–21,012, 1995.
- GERY, M.W., G.Z. WHITTEN, J.P. KILLUS, AND M.C. DODGE, A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale modelling, *J. Geophys. Res.*, **94**, 12,925–12,956, 1989.
- GUENTHER, G., C. NICHOLAS HEWITT, D. ERICKSON, R. FALL, C. GERON, T. GRAEDEL, P. HARLEY, L. KLINGER, M. LERDAU, W.A. MCKAY, T. PIERCE, B. SCHOLE, R. STEINBRECHER, T. TALLAMRAJU, J. TAYLOR und P. ZIMMERMANN, A global model of natural volatile organic compound emissions, *J. Geophys. Res.*, **100**, 8873–8892, 1995.

- GRAEDEL, T. und P.J. CRUTZEN, *Chemie der Atmosphäre*, Springer Verlag, Berlin, 1993.
- GRANIER, C. und G. BRASSEUR, The impact of road traffic on global tropospheric ozone, *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1086, doi:10.1029/2002GL015972, 2003.
- GREWE, V., M. DAMERIS, C. FICHTER, R. SAUSEN, Impact of aircraft NO_x emissions. Part 1: Interactively coupled climate-chemistry simulations and sensitivities to climate-chemistry feedback, lightning and model resolution, *Meteorol. Z.*, **3**, 177-186, 2002.
- HAAGEN-SMIT, A.J., Chemistry and physiology of Los Angeles Smog, *Ind. Eng. Chem.*, **44**, 1342-1346, 1952.
- HAO, W.M. und M.H. LIU, Spatial and temporal distribution of tropical biomass burning, *Global Biogeochem. Cycles*, **8**, 495-503, 1994.
- HEAVENRICH, R.M. und K.H. HELLMANN, *Light-Duty Automotive Technology and Fuel Economy Trends 1975 through 2000*, Advanced Technology Division, Office of Transportation and Air Quality, U.S. Environmental Protection Agency, EPA420-S-00-003, USA, erhältlich online unter <http://www.epa.gov/otaq/fetrends.htm>, Dezember 2000.
- HEIN, R., M. DAMERIS, C. SCHNADT, C. LAND, V. GREWE, I. KÖHLER, M. PONATER, R. SAUSEN, B. STEIL, J. LANDGRAF AND C. BRÜHL, Results of an interactively coupled atmospheric chemistry-general circulation model: comparison with observations, *Ann. Geophysicae*, **19**, 435-457, 2001.
- HELAND, J., H. SCHLAGER, A. RICHTER und J.P. BURROWS, First comparison of tropospheric NO₂ column densities retrieved from GOME measurements and in situ aircraft profile measurements, *Geophys. Res. Lett.*, **29**, 1983, doi:10.1029/2002GL015528, 2002.
- HOUGHTON, J., *Globale Erwärmung*, Springer Verlag Heidelberg, 1997.
- HOUGHTON, J.T., *The physics of atmospheres*, Cambridge University Press, 1977.
- HOROWITZ, L.W. und D.J. JACOB, Global impact of fossil fuel combustion on atmospheric NO_x, *J. Geophys. Res.*, **104**, 23,823-23,840, 1999.
- HOUWELING, S., F. DENTENER und J. LELIEVELD, The impact of nonmethane hydrocarbon compounds on the tropospheric photochemistry, *J. Geophys. Res.*, **103**, 10,673-10,696, 1998.
- IEA, *IEA Encourages Luxembourg energy market reforms*, IEA/PRESS(00)15, erhältlich unter <http://www.iea.org/new/releases/2000/presslux.htm>, Luxemburg, 2000.
- IEA, *Energy Statistics of OECD Countries*, International Energy Agency, Paris, 1996.
- IEO, *International Energy Outlook 2002*, U.S. Department of Energy, Washington, DC, USA, 2002.
- IMAGE TEAM, *The IMAGE 2.2 implementation of the SRES scenarios: A comprehensive analysis of emissions, climate change and impacts in the 21st century*, RIVM CD-ROM publication 481508018, National Institute of Public Health and the Environment, Bilthoven, The Netherlands, 2001.

- IPCC, *Climate Change 2001: The Scientific Basis, Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, hrsg. von J.T. Houghton, L.G. Meira Filho, B.A. Callander, N. Harris, A. Kattenberg und K. Maskell, Cambridge University Press, Cambridge, England, 2001.
- IPCC, *Climate Change 1995, The Science of Climate Change, Contribution of Working Group I to the Second Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, hrsg. von J.T. Houghton, Y. Dings, D.J. Griggs, M. Noguer, P.J. van der Linden, X. Dai, K. Maskell und C.A. Johnson, Cambridge University Press, Cambridge, England, 1995.
- ISAKSEN, I.S.A. und Ø. HOV, Calculations of trends in the tropospheric concentrations of O₃, OH, CO, CH₄ and NO_x, *Tellus*, **39B**, 271–283, 1987.
- ISAKSEN, I. und C. JACKMAN, Kapitel 4: Modeling the chemical composition of the future atmosphere, in *Aviation and the global atmosphere*, hrsg. von J.E. Penner et al., Special Report, IPCC, Cambridge University Press, 121–183, 1999.
- JACOB, D.J., M.J. PRATHER, P.J. RASCH, R.-L. SHIA, Y.J. BALKANSKI, S.R. BEAGLEY, D.J. BERGMANN, W.T. BLACKSHEAR, M. BROWN, M. CHIBA, M.P. CHIPPERFIELD, J. DE GRANDPRÉ, J.E. DIGNON, J. FEICHTER, C. GENTHON, W.L. GROSE, P.S. KASIBHATLA, I. KÖHLER, M.A. KRITZ, K. LAW, J.E. PENNER, M. RAMONET, C.E. REEVES, D.A. ROTMAN, D.Z. STOCKWELL, P.F.J. VAN VELTHOVEN, G. VERVER, O. WILD, H. YANG und P. ZIMMERMANN, Evaluation and Intercomparison of Global Atmospheric Transport Models Using ²²²Rn and Other Short-Lived Tracers, *J. Geophys. Res.*, **102**, 5953–5970, 1997.
- JAEGER, L.W., K. BOULOUCHOS und M. MOHR, Analysis of Factors Influencing Particulate Matter Emissions of a Compression-Ignition Direct-Injection Engine, *SAE Technical Paper Series*, 1999-01-3492, 1999.
- JAEGLÉ, L., D.J. JACOB, W.H. BRUNE, I.C. FALOONA, D. TAN, Y. KONDO, G.W. SACHSE, B. ANDERSON, G. L. GREGORY, S. VAY, H.B. SINGH, D.R. BLAKE und R. SHETTER, Ozone production in the upper troposphere and the influence of aircraft during SONEX: approach of NO_x-saturated conditions, *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 3081–3084, 1999.
- LAUER, A., M. DAMERIS, A. RICHTER und J.P. BURROWS, Tropospheric NO₂ columns: a comparison between model and retrieved data from GOME measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, **2**, 67–78, 2002.
- KASIBHATLA, P., H. LEVY, II, W.J. MOXIM, S.N. PANDIS, J.J. CORBETT, M.C. PETERSON, R.E. HONRATH, G.J. FROST, K. KNAPP, D.D. PARRISH und T.B. RYERSON, Do emissions from ships have a significant impact on concentrations of nitrogen oxides in the marine boundary layer?, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 2229–2232, 2000.
- KERR, J.B. und C.T. MCELROY, Evidence for large upward trends of upward trends of ultraviolet-B radiation linked to ozone depletion, *Science*, **262**, 1032–1034, 1993.
- KÖHLER, I., M. DAMERIS, I. ACKERMANN und H. HASS., Contribution of Road Traffic Emissions to the Atmospheric Black Carbon Burden in the Mid-1990s, *J. Geophys. Res.*, **106**, 17,997–18,014, 2001.

- KOURTIDIS, K.A., I.C. ZIOMAS, B. RAPPENGLUECK, A. PROYOU und D. BALIS, Evaporative traffic hydrocarbon emissions, traffic CO and speciated HC traffic emissions from the city of Athens, *Atmos. Env.*, **33**, 3831–3842, 1999.
- KUHN, M., P.J.H. BUILTJES, D. POPPE, D. SIMPSON, W.R. STOCKWELL, Y. ANDERSSON-SKÖLD, A. BAART, M. DAS, F. FIEDLER, Ø. HOV, F. KIRCHNER, P.A. MAKAR, J.B. MILFORD, M.G.M. ROEMER, R. RUHNKE, A. STRAND, B. VOGEL und H. VOGEL, Intercomparison of the gas-phase chemistry in several chemistry and transport models, *Atmos. Env.*, **32**, 693–709, 1998.
- LAWRENCE, M.G., P. JÖCKEL und R. KUHLMANN, What does the global mean OH-concentration tell us?, *Atm. Chem. Phys.*, **1**, 37-49, 2001.
- LAWRENCE, M.G. und P.J. CRUTZEN, Influence of NO_x emissions from ships on tropospheric photochemistry and climate, *Nature*, **402**, 167–170, 1999.
- LEVY, H., II, P.S. KASIBHATLA, W.J. MOXIM, A.A. KLONECKI, A.I. HIRSCH, S.J. OLTMANS und W.L. CHAMEIDES, The global impact of human activity on tropospheric ozone, *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 791–794, 1997.
- LEVY, H., II, A global three-dimensional time dependent lightning source of tropospheric NO_x, *J. Geophys. Res.*, **101**, 22,911–22,922, 1996.
- LEVY, H., II, Normal atmosphere: Large radical and formaldehyde concentrations predicted, *Science*, **173**, 141–143, 1971.
- LIU, S.C., M. TRAINER, F.C. FEHSENFELD, D.D. PARRISH, E.J. WILLIAMS, D.W. FAHEY, G. HÜBLER und P.C. MURPHY, Ozone production in the rural troposphere and the implications for regional and global ozone distribution, *J. Geophys. Res.*, **92**, 4191–4207, 1987.
- LIN, X., M. TRAINER und S.C. LIU, On the nonlinearity of the tropospheric ozone production, *Geophys. Res. Lett.*, **93**, 15,879–15,888, 1988.
- LIU, S.C., M. MCFARLAND, D. KLEY, J.D. MAHLMAN und H. LEVY II, On the origin of tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, **85**, 7546–7552, 1980.
- LOGAN, J.A., An analysis of ozonesonde data for the lower stratosphere: Recommendations for testing models, *J. Geophys. Res.*, **104**, 16,151–16,170, 1999.
- LOGAN, J.A., Tropospheric ozone: seasonal behavior, trends, and anthropogenic influence, *J. Geophys. Res.*, **90**, 10,463–10,482, 1985.
- LOGAN, J.A., Tropospheric chemistry: a global perspective, *J. Geophys. Res.*, **86**, 7210–7254, 1981.
- MARENCO, A., H. GOUGET, P. NÉDÉLEC, J.-P. PAGÉS und F. KARCHER Evidence of a long-term increase in tropospheric ozone from Pic du Midi data series: Consequences: Positive radiation forcing, *Geophys. Res. Lett.*, **99**, 16,617–16,632, 1994.
- MATTHES, S., I. KÖHLER, R. HEIN und R. SAUSEN, Impact of road transport emissions on the global atmosphere, Astaire, Proceedings of the EC advanced study course, Bergen, *Air pollution research report*, **77**, 332–335, Europäische Kommission, Brüssel, Belgien, 2001.

- MATTHES, S. und R. SAUSEN, Abschätzung der Emissionen in den EU 15 Staaten im Zeitraum 1980 bis 2015, Abschlussbericht, Nr. 8-553-0002, DLR Oberpfaffenhofen, interner Bericht, 2000.
- MADRONICH, Changes in ultraviolet radiation reaching the Earth's surface, *Ambio*, **24**, 143–152, 1995.
- OECD, Globalisation and linkages: macro-structural challenges and opportunities, hrsg. von P. Richardson, in *OECD Economic Studies*, Organisation for economic co-operation and development, Paris, **28**, 1997.
- OECD, *Motor vehicle pollution, Reduction strategies beyond 2010*, OECD Organisation for economic co-operation and development, Paris, 1995.
- OLIVIER, J.G.J., A.F. BOUWMAN, C.W.M. VAN DER MAAS, J.J.M. BERDOWSKI, C. VELDT, J.P.J. BLOOS, A.J.H. VISSCHEDIJK, P.Y.J. ZANDVELD und J.L. HAVERLAG, Description of EDGAR Version 2.0: A set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone-depleting substances for all anthropogenic and most natural sources on a per country basis and on 1°x1° grid, RIVM Bericht, Nr. 771060 002, Bilthoven, Niederlande, 1996.
- OLTMANS, S.J., A.S. LEHFON, H.E. SCHEEL, J.M. HARRIS, H. LEVY II, I.E. GALBALLY, E.-G. BRUNKE, C.P. MEYER, J.A. LATHROP, B.J. JOHNSON, D.S. SHADWICK, E. CUEVAS, F.J. SCHMIDLIN, D.W. TARASICK, H. CLAUDE, J.B. KERR, O. UCHINO, V. MOHNEN, Trend of ozone in the troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 139–142, 1997.
- PÖSCHL, U., R. VON KUHLMANN, N. POISSON und P.J. CRUTZEN, Development and inter-comparison of condensed isoprene oxidation mechanisms for global atmospheric modelling, *J. Atmos. Chem.*, **37**, 29–52, 2000.
- POISSON, N., M. KANAKIDOU und P.J. CRUTZEN, Impact of Non-Methane Hydrocarbons on Tropospheric Chemistry and the Oxidizing Power of the Global Troposphere: 3-Dimensional Modelling Results, *J. Atmos. Chem.*, **36**, 157–230, 2000.
- PRATHER, M. und R. SAUSEN, Kapitel 4: Modeling the chemical composition of the future atmosphere, in *Aviation and the global atmosphere*, hrsg. von J.E. Penner et al., Special Report, IPCC, Cambridge University Press, 185–215, 1999.
- PRICE, C. und D. RIND, Modelling global lightning distributions in a general circulation model, *J. Geophys. Res.*, **122**, 1930–1937, 1994.
- RASCH, P.J. und D.L. WILLIAMSON, Computational aspects of moisture transport in global models of the atmosphere. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **116**, 1071–1090, 1990.
- REITHMEIER, C. und R. SAUSEN, ATTILA - Atmospheric Tracer Transport in a Lagrangian Model, *Tellus*, **54B**, 278–299, 2002.
- REITHMEIER, C., Untersuchung zum globalen Spurenstofftransport und Stratosphären-Troposphären-Austausch mit dem Lagrangeschen Modell ECHAM4/ATTILA, Dissertation Universität München, DLR-Forschungsbericht 2001-09, ISSN 1434-8454, 2001.
- RICHTER, A. und J.P. BURROWS, Retrieval of Tropospheric NO₂ from GOME Measurements, *Adv. Space Res.*, **29**, 1673–1683, 2002.

- ROECKNER, E., K. ARPE, L. BENGTSSON, M. CHRISTOPH, M. CLAUSSEN, L. DÜMENIL, M. ESCH, M. GIORGETTA, U. SCHLESE und U. SCHULZWEIDA, The Atmospheric General Circulation Model ECHAM-4: Model Description and Simulation of Present-Day Climate, *Report No. 218*, ISSN 0937-1060, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, 1996.
- ROELOFS, G.-J. AND J. LELIEVELD, Tropospheric ozone simulation with a chemistry-general circulation model: Influence of higher hydrocarbon chemistry, *J. Geophys. Res.*, **105**, 22,697–22,712, 2000.
- ROELOFS, G.J., J. LELIEVELD und R. VAN DORLAND, A three dimensional chemistry/general circulation model simulation of anthropogenically derived ozone in the troposphere and its radiative climate forcing, *J. Geophys. Res.*, **102**, 23,389–23,401, 1997.
- ROSA, L.P., und S.K. RIBEIRO, The present, past and future contributions to global warming of CO₂ emissions from fuels, *Climatic Change*, **48**, 289–308, 2001.
- ROSENLOF, K.H., Seasonal cycle of the residual mean meridional circulation in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **100**, 5173–5191, 1995.
- SAMARAS, Z., T. ZACHARIADIS, T. HOLTSMANN, O. RENTZ und K.-H. ZIEROCK, A methodology and a database for forecasting anthropogenic atmospheric emissions in Europe, *Atmos. Env.*, **33**, 3389–3404, 1999.
- SAMARAS, Z., L.A.T. Laboratory of applied thermodynamic, Universität Thessaloniki, persönliche Mitteilung, 1996.
- SAWYER, R.F., R.A. HARLEY, S.H. CADLE, J.M. NORBECK, R. SLOTT und H.A. BRAVO, Mobile sources critical review: 1998 NARSTO assessment, *Atmos. Env.*, **34**, 2161–2181, 2000.
- SHELL, B., I. ACKERMANN und H. HASS, Reformulated and Alternative Fuels: Modeled Impacts on Regional Air Quality with Special Emphasis on Surface Ozone Concentrations, *Environ. Sci. Technol.*, **36**, 3147–3156, 2002.
- SCHUMANN, U., und J. STRÖM, Aviation impact on atmospheric composition and climate, in *European research in the stratosphere 1996-2000*, Europäische Kommission, EUR 19867, 2001.
- SCHWARTZ, P., *The Art of the Long view*, Doubleday, New York, USA, 1996.
- SIEGL, W.O., R.H. HAMMERLE, H.M. HERRMANN, B.W. WENCLAWIAK und B. LUERS-JONGEN, Organic emissions profile for a light-duty diesel vehicle, *Atmos. Env.*, **33**, 797-805, 1999.
- STEIL, B., *Modellierung der Chemie der globalen Strato- und Troposphäre mit einem dreidimensionalen Zirkulationsmodell*, Examensarbeit Nr. 99, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, 1999.
- STOHL, A., S. ECKHARDT, C. FORSTER, P. JAMES und N. SPICHTINGER On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport, *J. Geophys. Res.*, 10.1029/2001JD001396, 2002.

- STREETS, D.G., G.R. CARMICHAEL, A. MARKUS und R.L. ARNDT, Energy consumption and acid deposition in Northeast Asia, *Ambio*, **28**, 135–143, 1999.
- STUBER, N., R. SAUSEN und M. PONATER, Stratosphere adjusted radiative forcing calculations in a comprehensive climate model. *Theor. Appl. Climatol.*, **68**, 125–135, 2001.
- TANG, X., und S. MADRONICH, Effects of increased solar ultraviolet radiation on tropospheric composition and air quality, *Ambio*, **24**, 188–190, 1995.
- TIEDTKE, M., A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models. *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1779–1800, 1989.
- UNFCCC, *Comparison of greenhouse gas emission projections*, Technischer Bericht FCC-CC/TP/2001/1, Vereinte Nationen, New York, USA, 2001.
- UNSTAT, *United Nations Energy Statistics Database (1995)*, United Nations Statistics Division, New York, 1997.
- USEPA, *National Air pollutant emission trends, 1900-1996*, EPA-454/R-97-011, Environmental protection agency (EPA), Office of Air Quality Planning and Standards, New York, 1997.
- USEPA, *Emission Trends Report 1995*, Office of Air Quality Planning and Standards, Environmental Protection Agency, USA, 1996.
- VALKS, P.J.M. und G.J.M. VELDERS, The present-day and future impact of NO_x emissions from subsonic aircraft on the atmosphere in relation to the impact of NO_x surface sources, *Ann. Geophysicae*, **17**, 1064–1079, 1999.
- VELDERS, G.J.M., C. GRANIER, R.W. PORTMANN, K. PFEILSTICKER, M. WENIG, T. WAGNER, U. PLATT, A. RICHTER und J.P. BURROWS, Global tropospheric NO₂ column distributions: Comparing 3-D model calculations with GOME measurements, *J. Geophys. Res.*, **106**, 12,643–12,660, 2001.
- VIGUIER, L., Emissions of SO₂, NO_x and CO₂ in Transition Economies: Emission Inventories and Divisia Index Analysis, *The Energy Journal*, **20**, 1999.
- VOLZ, A. und D. KLEY, Evaluation of the Montsouris series of ozone measurements made in the nineteenth century, *Nature*, **332**, 240–242, 1988.
- WANG, Y., D.J. JACOB und J.A. LOGAN, Global simulation of tropospheric O₃-NO_x-hydrocarbon chemistry, 1, Model formulation, *J. Geophys. Res.*, **103**, 10,713–10,725, 1998.
- WESELY, M.L. und B.B. HICKS, A review of the current status of knowledge on dry deposition, *Atmos. Env.*, **34**, 2261–2282, 2000.
- WIGLEY, T.M.L., Relative contributions of different trace gases to the greenhouse effect, *Climate Monitor*, **16**, 14–29, 1987.
- WMO, World Meteorological Organization, *Atmospheric Ozone 1985, Global ozone Research and Monitoring Report*, WMO Report **16**, Genf, 1986.
- YIENGER, J.J. und H. LEVY II, Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions, *J. Geophys. Res.*, **100**, 11,447–11,464, 1995.

Danksagung

Zum Gelingen dieser Arbeit haben eine Reihe von Personen beigetragen, bei denen ich mich an dieser Stelle bedanken möchte:

Mein herzlicher Dank gilt Herrn Prof. Robert Sausen, der es mir ermöglichte diese Dissertation zu diesem interessanten Thema anzufertigen.

Weiterhin gilt mein besonderer Dank Herrn Prof. Peter Fabian, der die Begutachtung der Arbeit übernommen hat und mit hilfreichen Fragen dieser Arbeit Form gab.

Mein Dank gilt Herrn Prof. Ulrich Schumann, der mit wertvollen Anregungen zu dieser Arbeit beigetragen hat.

Mein ganz besonderer Dank gilt meiner Kollegin Nicola Stuber für kritische Anmerkungen bei der Durchsicht des Manuskripts. Besonderer Dank gilt meiner ehemaligen Kollegin Dr. Ines Köhler und meinem Kollegen Dr. Volker Grewe, die ebenfalls zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ein herzliches Dank geht an Dr. Martin Dameris, der mir insbesondere beim Aufbau der Kontakte mit der Universität Ütrecht hilfreich zur Seite stand. Allen meinen Kollegen am Institut danke ich besonders für das freundliche Arbeitsklima.

Mein besonderer Dank geht an Dr. Geert-Jan Roelofs von der Universität Ütrecht, Niederlande, der mir die Modellversion ECHAM4/CBM-IV zur Verfügung stellte, für die gute Zusammenarbeit.

Besonderer Dank gilt Dr. Norbert Metz und Dr. Gunther Grabbe von der BMW AG, denen ich für die gute Zusammenarbeit im Rahmen unseres Projektes danken möchte.

Ein Dank geht an Dr. Andreas Richter und Prof. John Burrows, Universität Bremen, die mir für diese Arbeit GOME-Messungen der troposphärischen NO₂-Säulendichten zur Verfügung stellten.

Ein ganz besonderer Dank gilt meinen Eltern, die mich in allen Bereichen unterstützt haben und so auf besondere Weise zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Meiner Familie gilt mein ganz besonderer Dank. Meinem Partner Klaus Irgmaier, der mich trotz aller Herausforderungen immer unterstützt hat; meiner Tochter Alina, die mit großem Verständnis akzeptiert hat, dass ich meine Zeit vor dem Rechner verbringe und meinem Sohn Benedikt, der mich immer mit einem sonnigen Lächeln empfangen hat.

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name Sigrun Matthes
geboren am 23. Februar 1970
in München

Ausbildung

9/80 - 7/89 Gymnasium Puchheim (math.-nat.)
Juli 1989 Abitur am Gymnasium Puchheim

Studium

11/89 - 9/93 Studium der Technischen Physik an der Technischen Universität München
Sep 1991 Vordiplom TU München
8/92 - 10/92 Auslandspraktikum in Boulder, Colorado, USA
Thermodynamics Division, Nat. Institute of Standards and Technology)
9/93 - 7/94 Auslandsstudium Bordeaux, Frankreich
Jun 1994 Diplom in Instrumentation et mesure (DEA)
Sep 1995 Hauptdiplom an der TU München
11/95 - 2/97 Diplomarbeit am Fraunhofer Institut IFU, Garmisch
Thema: *FT-IR-Spektroskopie an hochaufgelösten solaren Spektren*

Beruflicher Werdegang

3/97 - 7/97 Wissenschaftliche Mitarbeiterin IFU
9/97 - 5/98 Gastwissenschaftlerin Lehrstuhl für Luftfahrttechnik
seit 5/98 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut für Physik der Atmosphäre
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V., Oberpfaffenhofen
2/99 - 8/99 Projektarbeit Polinat II
4/99 - 3/02 Promotionsstudium LMU München