

# **Inverse Ausbreitungsmodellierung zur Emissionsratenbestimmung heterogener Flächenquellen**

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades an der  
Fakultät für Angewandte Informatik  
der Universität Augsburg

vorgelegt von

**Gregor Schürmann**

2007

Erstgutachter: Prof. Dr. Wolfgang Seiler  
Zweitgutachter: Prof. Dr. Jucundus Jacobeit  
Tag der mündlichen Prüfung: 12. Juli 2007



# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>4</b>
<b>Summary</b>	<b>5</b>
<b>1 Einführung</b>	<b>6</b>
1.1 Inverse Methoden . . . . .	7
1.2 Heterogene Flächenquellen auf Flughäfen . . . . .	13
<b>2 Inverse Methoden - Theorie</b>	<b>16</b>
2.1 Vorwärtsproblem . . . . .	17
2.2 Inverse Methoden . . . . .	18
2.2.1 Methode der pseudoinversen Matrix . . . . .	19
2.2.2 Bayes' Ansatz . . . . .	21
2.2.3 Eine philosophische Einordnung der inversen Methoden . . . . .	23
<b>3 Inverse Methoden - Umsetzung</b>	<b>25</b>
3.1 Implementierung und Besonderheiten von EMiL . . . . .	28
3.2 Validierung - Numerisch erzeugte Beispiele . . . . .	31
<b>4 Synthetische Versuche</b>	<b>34</b>
4.1 Vorgehensweise . . . . .	34
4.2 Trennung von zwei Quellen mit zwei Messungen . . . . .	35
4.2.1 Versuchsaufbau . . . . .	36
4.2.2 Resultate . . . . .	36
4.3 Einfluss der Quellparametrisierung auf das Ergebnis . . . . .	41
4.3.1 Versuchsaufbau . . . . .	41
4.3.2 Resultate . . . . .	42
<b>5 Anwendungen</b>	<b>51</b>
5.1 Eingesetzte Messgeräte . . . . .	51
5.2 Flughafen Zürich . . . . .	54
5.2.1 Inverse Methoden . . . . .	57
5.2.2 Ergebnisse der Emissionsratenbestimmung . . . . .	58
5.3 Flughafen Budapest . . . . .	62
5.3.1 Durchführung der Inversion . . . . .	64
5.3.2 Ergebnisse der inversen Modellierung . . . . .	67

## INHALTSVERZEICHNIS

---

<b>6</b>	<b>Diskussion</b>	<b>80</b>
6.1	Inverse Methoden . . . . .	80
6.2	Messkampagnen zur Bestimmung von Flughafenemissionen . . .	82
6.2.1	Zürich . . . . .	83
6.2.2	Budapest . . . . .	85
6.2.3	Flughafenemissionen - Zusammenfassung und Ausblick . .	87
6.3	Pseudoinverse und Bayes - Ein Methodenvergleich . . . . .	88
<b>7</b>	<b>Schlussfolgerung</b>	<b>90</b>

# Zusammenfassung

Luftverschmutzung ist immer noch ein ungelöstes Problem und eine schnelle Lösung scheint nicht absehbar. Die Kenntnis der wichtigsten Quellen von Luftschadstoffen und deren Intensität ist notwendig, um wirkungsvolle Maßnahmen zur Verbesserung der Luftqualität zu ergreifen. Eine besondere Herausforderung zur Quantifizierung von Emissionen stellen hierbei diffuse Quellen dar, die beispielsweise in der Landwirtschaft (Viehherden, Offenstallungen) auftreten, da die einzelne Quelle nicht genau lokalisiert werden kann. Inverse Dispersionsmodellierung ist eine Methode, Emissionsraten derartiger Quellen aus der Ferne zu bestimmen. Bis jetzt finden sich inverse Methoden auf Skalen kleiner als 100 Meter oder größer als einige Kilometer. In der vorliegenden Arbeit wird das inverse Dispersionsmodell EMiL (**E**missionsratenbestimmung mittels **M**essung der **K**onzentration, **i**nverser **M**ethoden und **L**agrange'scher **A**usbreitungsmodellierung) vorgestellt, welches gleichzeitig Emissionsraten mehrerer Quellen auf einer Skala von 10 bis 1000 Meter bestimmen kann.

Um diffuse Emissionen zu bestimmen, müssen Annahmen zur Quellgeometrie getroffen werden. Innerhalb des angenommenen Quellgebietes wird normalerweise eine homogene Emissionsrate angenommen. Der Einfluss der Annahme der homogenen Quellverteilung wird in dieser Arbeit mittels synthetischer Versuche untersucht, bei welchen die eigentliche "gemessene" Konzentration mit einem Dispersionsmodell berechnet wird. Die minimale Distanz der Messung zur Quelle, ab welcher die homogene Annahme zu guten Ergebnissen führt, ist abhängig von der Stabilität der Atmosphäre und von der Quellhöhe. Für Quellen unterhalb 5 Meter ist diese Distanz kleiner als 30 Meter. In ähnlicher Weise kann gezeigt werden, dass die gleichzeitige Bestimmung der Emissionsraten zweier Quellen, die quer zum Wind 10 Meter voneinander entfernt angeordnet sind, bis zu einer Distanz der Messung zu den Quellen von 150 Metern immer möglich ist.

Das inverse Dispersionsmodell EMiL wurde angewendet, um die Emissionsraten verschiedener diffuser Quellen auf den Flughäfen Zürich und Budapest zu bestimmen. Rollende Flugzeuge waren jeweils die stärkste Quelle für  $\text{NO}_x$ , aber bodengebundene Abfertigungsemissionen und Strassenemissionen erreichten ähnliche Quellstärken. CO-Emissionen in der Nähe von Standplätzen für Flugzeuge wurden klar von rollende Flugzeuge dominiert.

In Budapest waren mehr unbekannte Quellen als Messungen vorhanden. Zur Bestimmung der Quellstärken wurde ein einfaches Emissionsinventar als a-priori Wissen definiert. Damit wurde eine Bestimmung der Emissionen des Flughafens Budapest mit inversen Methoden möglich. Diese Anwendung zeigt das Potential dieser Methoden, Emissionsinventare zu überprüfen und zu verbessern und somit einen wesentlichen Beitrag zu Luftqualitätsuntersuchungen zu leisten.

# Summary

Air pollution still is an unsolved problem and may remain one for a long time. To take effective measures to improve air quality, good knowledge about the main contributors to air quality is necessary and hence emission rates of all kind of air pollution sources need to be quantified. The determination of diffuse emissions from agriculture or farming or other diffuse sources is an outstanding challenge, because the single source is hard to detect. One method to overcome this problem is inverse dispersion modelling to quantify emissions of a source area from afar. Up to now, inverse modelling is used on scales smaller than 100 meters or bigger then some kilometers. In this work the model EMiL (Determination of **E**mission Rates with **M**easurements, **i**nverse **M**ethods and **L**agrangian Dispersion Modelling) is introduced, which is capable to determine simultaneously emission rates of different sources on a scale between 10 meter and 1000 meter.

In determining emission rates of diffuse sources, an assumption about the geometry of the source has to be made. Usually a homogeneous emission rate inside the source is assumed. The implication of such an assumption is investigated within this work with synthetic experiments in which the dispersion model is used to simulate a measured concentration. With that setup, the behaviour of the inverse dispersion model can be investigated with neglecting possible uncertainties of the dispersion model itself. The minimum distance of the measurement from the source area, for which the homogenous assumption is valid, is dependent on the stability of the atmosphere and furthermore on the height of the source above the ground. For sources with a height below 5 meter, this distance is shorter than 30 meters. In a similar manner, it can be shown, that with a distance between measurement and source below 150 meter, a separation of two sources which are not more then 10 meters separated in crosswind direction is allways possible.

The inverse dispersion model EMiL is used to determine emissions of different sources on the airports of Zurich and Budapest. Taxiing aircrafts were the strongest source for  $\text{NO}_x$ , but emissions of ground support activities and road traffic reached similar emission rates. CO emission near the aircraft stands were by far dominated by taxiing aircrafts.

In Budapest, where more unknown sources had to be quantified than measurement locations were available, a determination of source strength was feasible by using a simple emission inventory as a-priori emission rates. This demonstrates the potential of inverse methods to validate emission inventories and hence to enhance results of air quality investigations.

# Kapitel 1

## Einführung

”Stickstoffdioxid - Diesel-Abgas gefährlicher als gedacht”<sup>1</sup> oder ”Zürcher Bevölkerung leidet unter Feinstaub”<sup>2</sup>, Schlagzeilen wie diese sind auch in jüngster Zeit immer wieder zu lesen. Sie zeigen, dass Luftschadstoffe nicht nur ein akademisches Problem sind, sondern diese Thematik auch in der Öffentlichkeit mit Interesse verfolgt und diskutiert wird. Neueste Untersuchungen rücken zudem längst bekannte Schadstoffe wie Stickstoffdioxid und deren Grenzwerte wieder in den Blickpunkt der wissenschaftliche Debatte, da deren gesundheitliche Auswirkung neu bewertet wurde (Samoli et al., 2006).

Zur Untersuchung der Luftqualität muss einerseits die Konzentration der Spurenstoffe in der Umgebung bestimmt werden, andererseits müssen auch die Quellen der Spurenstoffe und der Transport, die chemische Umwandlung und die Ausdünnung in der Atmosphäre bekannt sein. Erst mit diesem Wissen können adäquate Minderungsstrategien geplant und umgesetzt werden.

Für stationäre Quellen und solche mit geringer Ausdehnung (z.B.: Fabrik-schornsteine) können Emissionen relativ leicht mittels Messungen in unmittelbarer Nähe zur Quelle bestimmt werden. Die Bestimmung bewegter Quellen (z.B.: Verkehr) wird häufig mittels Emissionsfaktoren durchgeführt, die im Prüfstand gemessen wurden. Unter Berücksichtigung der Betriebszustände der Quellen kann so der zeitliche und räumliche Verlauf der Emissionen modelliert werden. Dieser Ansatz kann jedoch zu systematischen Unsicherheiten führen, wie für Straßenemissionen gezeigt wurde (Coursmeier et al., 2005), da beispielsweise die Fahrzyklen im Prüfstand nicht zwingend den realen Verhältnissen entsprechen müssen. Ausgedehnte Quellen, bei denen der Ort des einzelnen Emittenten nicht genau bekannt ist (Vegetation, Tankstellen), werden ebenfalls über Emissionsfaktoren erfasst, allerdings können diese nicht mehr auf dem Prüfstand bestimmt werden. Bei derartigen Quellen spricht man von diffusen Emissionen, die mit Hilfe der Quelltermrückrechnung bestimmt werden können (VDI, 2002). Dabei wird mittels Messung der Spurenstoffkonzentration in der Nähe der Quelle und unter Berücksichtigung der Verdünnung von der Quelle bis zur Messung auf diejenige Emissionsrate geschlossen, die zu der gemessenen Konzentration führt. Diese Art der Quelltermrückrechnung ist der inversen Modellierung zuzurechnen. Eine Eingangsgröße (hier die Quellstärke) eines Modells wird solange angepasst, bis

---

<sup>1</sup> Spiegel Online, 30. Mai 2006: <http://www.spiegel.de/wissenschaft/mensch/0,1518,418600,00.html>

<sup>2</sup> Tages-Anzeiger, 13. Juni 2006: <http://www.tagesanzeiger.ch/dyn/news/schweiz/634613.html>



das Modellergebnis mit einer gemessenen Größe (hier Konzentration) möglichst gut übereinstimmt.

Um tiefer in diese Thematik einzuführen, wird zunächst ein Überblick über aktuelle Arbeiten mit inversen Methoden im atmosphärischen Spurenstofftransport gegeben. Anschließend folgt eine Beschreibung der hier betrachteten diffusen Quellen eines Flughafens und deren Auswirkung auf die regionale Luftqualität.

## 1.1 Inverse Methoden

Unter inversen Methoden versteht man die Bestimmung einer "nicht messbaren" Größe unter Zuhilfenahme einer "messbaren" Größe und der Ausnutzung eines bestehenden physikalischen oder empirischen Zusammenhangs zwischen den beiden. Vielfältige Nutzung finden die inversen Methoden in der Geophysik (Gubbins, 2004). In den letzten Jahren wurden inverse Methoden auch für den atmosphärischen Spurenstofftransport und andere atmosphärische Fragestellungen immer häufiger verwendet.

Im Gegensatz zu deren Anwendung in der Geophysik besteht die spezielle Schwierigkeit in der Atmosphäre darin, dass das beobachtete System nicht statisch ist und sich zu verschiedenen Messbedingungen nicht nur die Quellstärken ändern, sondern auch die Ausbreitungsbedingungen. Besonders zur Vertikalsondierung der Atmosphäre mittels Fernerkundung werden häufig inverse Methoden verwendet (Rodgers, 2000). Im atmosphärischen Spurenstofftransport sind hierbei die Quellstärken die Unbekannten und die messbare Größe ist eine Messung der Spurenstoffkonzentration in der Luft. Derartige Probleme sind in der Regel mathematisch unterbestimmt und erlauben aus diesem Grund unendlich viele Lösungen. Seltener sind "gut gestellte" Probleme, bei denen die Anzahl der Messungen die Anzahl der Unbekannten übersteigt oder gleich ist. Letztere Probleme können mit dem Ansatz der kleinsten Quadrate gelöst werden, während zur Lösung der unterbestimmten Problem häufig ein Bayes'scher Ansatz gewählt wird. Bei diesem wird davon ausgegangen, dass bereits ein Vorwissen über die Stärke der einzelnen Quellen existiert und dieses Vorwissen aufgrund der Messungen verbessert wird.

Zur Bestimmung von Spurenstoffquellen finden sich auf globaler und kontinentaler Skala bereits einige Anwendungen (Zusammenfassung in Enting 2002 oder Bennett 2002). Auf dieser räumlichen Skala wird relativ quellfern gemessen und somit muss die räumliche und zeitliche Auflösung der Quelle nicht derart detailliert bekannt sein wie bei quellnahen Messungen. Bennett (2002) behandelt vor allem inverse Methoden in atmosphärischen und ozeanographischen Strömungsmodellen. Er beschreibt sehr ausführlich die Variationsanalyse und die dazugehörigen adjungierten Modelle. Einen direkteren Bezug zu Problemen des Schadstofftransports bietet Enting (2002). Er selbst bezeichnet sein Werk als Fußnote zu Tarantola (1987) und behandelt demzufolge vor allem die dort ausführlich beschriebene Bayes'sche Methode der Invertierung, welche die Grundlage für fast alle Arbeiten auf globaler und kontinentaler Skala ist.

Bousquet et al. (1999a,b) bestimmen die jährlichen CO<sub>2</sub>-Emissionen auf globaler Skala mittels Bayes'scher Methode. Mit demselben Ansatz bestimmen Wang und Bentley (2002) die Methanemissionen und Wang und Barrett (2003) die Kohlenstoffemissionen jeweils für Australien. Um die Anzahl der zu be-

stimmenden Quellen möglichst gering zu halten, werden wenige Quellregionen bestimmt, innerhalb derer der zeitliche und räumliche Verlauf der Emissionen vorgegeben wird. Diese Methodik bezeichnet Enting (2002) als Syntheseinversion ("Synthesis Inversion"). Sowohl die Syntheseinversion als auch die Bayes'sche Methode zielen darauf ab, aus der Unendlichkeit der Lösungen, die aufgrund des unterbestimmten Problems gegeben ist, eine möglichst realitätsnahe zu finden. Während mit der Syntheseinversion die Freiheitsgrade des Problems reduziert werden, liegt der Bayes'schen Methode eine Wahrscheinlichkeitsbetrachtung zugrunde. Häufig werden auch beide Methoden gleichzeitig zur Invertierung eingesetzt.

Auf etwas kleinerer Skala berechnen Gimson und Uliasz (2003) mit einem Modellsystem, bestehend aus dem Eulerschen mesoskaligen meteorologischen Modell RAMS und dem Lagrange'schen Dispersionsmodell LPD, die Methanemission einer ländlichen Region Neuseelands. Als Messung dienen Vertikalprofile der Konzentration, die mit Hilfe eines Flugzeug ermittelt wurden. Die Profile wurden an der Küste und etwa 60 km im Landesinneren gemessen. Mit diesem Luv-Lee-Aufbau wurde die von der Landwirtschaft verursachte Konzentration bestimmt und daraus die Methanemission am Boden ermittelt. Die Berechnung erfolgte unter der Annahme von räumlich und zeitlich konstanten Emissionen. Ein Vergleich der so bestimmten Emissionen mit einem bestehenden Emissionsinventar zeigt eine gute Übereinstimmung innerhalb der relativ großen Unsicherheit, die vor allem durch die Messunsicherheit verursacht wurde.

Mit zeitlich und räumlich nicht konstanten Quellen befassen sich Mulholland und Seinfeld (1995). Sie verbessern ein zeitlich variables Emissionsinventar für den Großraum von Los Angeles aufgrund von Konzentrationsmessungen an 27 Orten. Zur Invertierung benutzen sie ein Chemie-Transport-Modell und einen Kalmanfilter, wodurch zeitliche Variationen in der Invertierung mitberücksichtigt werden.

Ebenfalls mit inversen Methoden unter Zuhilfenahme eines adjungierten Chemiemodells berechnen Vautard et al. (2000) die Ozonkonzentrationen am Rand ihres Modellgebietes (Stadt Paris) und erreichen mit diesem Vorgehen eine deutliche Verbesserung der modellierten Ozonkonzentration im Modellgebiet selbst.

Die oben erwähnten Arbeiten behandelten Skalen bis zu einigen 1000 Metern, aber nicht kleiner. Danach finden sich in einem Skalenbereich von 100 bis 1000 Meter keine Anwendungen der inversen Methoden. Erst auf Skalen kleiner als 100 Meter kommen vier verschiedenen Ansätze zur Anwendung, um aufgrund von Messungen in der Abgasfahne einer Quelle deren Emissionen zu bestimmen (Tabelle 1.1). Messungen der Spurenstoffkonzentration und des Windes auf einem 2-dimensionalen Querschnitt durch die Abgasfahne erlauben die direkte Bestimmung des Spurenstoffflusses und somit auch die Bestimmung der Emissionen (Hashmonay und Yost, 1999; Hashmonay et al., 2001; Desjardins et al., 2004). Der Aufwand der Messung bei derartigen Anwendungen ist sehr groß, weswegen schon früh Versuche unternommen wurden, mittels einer Messung in geeigneter Höhe und der Modellierung der Ausbreitung die Emission einer Spurenstoffquelle zu berechnen (Wilson et al., 1982).

Eine andere Möglichkeit, die mit geringerem Messaufwand auskommt, ist der Einsatz eines Tracergases. Dieses wird mit bekannter Emissionsrate am Ort der Quelle freigesetzt. Abwind der Quellen wird dann die Tracerkonzentration und die Konzentration des zu untersuchenden Stoffes gemessen. Unter der Annahme,

**Tabelle 1.1:** Vergleich verschiedener Methoden zur Bestimmung diffuser Emissionen mit Vor- und Nachteilen und der exemplarischen Nennung einer Literaturquelle.

Methoden	Vorteil	Nachteil	Referenz
Flussmessung	kein Ausbreitungsmodell nötig	großer Messaufwand	Hashmonay et al. (2001)
Tracer-Methode	kein Ausbreitungsmodell nötig	Tracerquelle nötig	Galle et al. (2001)
Inverses Dispersionsmodell	geringer Messaufwand	Modellierung nötig	Hashmonay et al. (1999)
Backward-Lagrange-Modelle	geringer Messaufwand	Modellierung nötig	Kljun et al. (2002)

dass die Ausdünnung des Tracers gleich stark ist wie diejenige des Spurengases kann über eine Verhältnisbildung die Emission des Spurengases quantifiziert werden. Anwendungen dazu finden sich zum Beispiel bei Galle et al. (2001) zur Bestimmung von Deponieemissionen und bei Johnson et al. (1994) zur Bestimmung von Nutztieremissionen. Blackall et al. (2004) ermitteln mit dieser Methode Ammoniak-Emissionen einer Meervogelkolonie. Die Tracer-Methode vergleichen sie mit einem inversen Dispersionsmodell. Beide Methoden werden als brauchbar zur Bestimmung der Emissionen einer komplexen Quellgeometrie angesehen. Die inverse Dispersionsmodellierung zeigt jedoch größere Unsicherheiten. Bei der Tracermethode ist der technische Aufwand größer, da eine künstliche Quelle installiert werden muss. In beiden Fällen besteht die Unsicherheit unter anderem darin, wie die unbekannte und inhomogene Quellgeometrie innerhalb der Vogelkolonie angenähert werden kann und ob die Annahme einer homogenen Emission im Quellgebiet gerechtfertigt ist.

Ebenfalls unter Zuhilfenahme eines Dispersionsmodells berechnen Kirchgessner et al. (1993) die Methanemission einer Tagebaukohlemine. Die für die Ausbreitungsrechnung benötigte Stabilitätsklasse wird mit Hilfe eines Tracerversuchs bestimmt. Dies ist eine Kombination aus Tracer-Methode und inverser Dispersionsmodellierung. Der Vorteil dieser Methode gegenüber der reinen Tracer-Methode liegt darin, dass die Tracerquelle nicht repräsentativ für die diffuse Quelle sein muss, sondern lediglich die gleichen Ausbreitungsbedingungen für beide Quellen vorliegen müssen. Piccot et al. (1994) testen diese Methode und beziffern deren Unsicherheit mit etwa 30 %.

Die inverse Dispersionsmodellierung verzichtet auf den Einsatz eines Tracers. Die Ausbreitungsbedingungen werden mittels Messung meteorologischer Größen bestimmt. Renner und Gerber (2004) bestimmen so die Emission diffuser Quellen mit einem Lagrange'schen Dispersionsmodell und sie bewerten die Ungenauigkeit der Methode mit 10-20 % . Siefert et al. (2004) bestimmen Ammoniakemissionen eines Geflügelstalles mittels inverser Dispersionsmodellierung

unter Zuhilfenahme eines Gauß'schen Ausbreitungsmodells. Die Emissionen von flüchtigen organischen Verbindungen (VOC) einer Tankstelle wurde ebenfalls mit inversen Methoden und einem Lagrange'schen Dispersionsmodell ermittelt (Schäfer et al., 1998; Friedrich et al., 2002; Ohlrogge et al., 2004). Aufgrund von Untersuchungen an Tankstellen und eines kontrollierten Versuchs mit einem Ofenstall bestimmen Schäfer et al. (1999) und Stockhause (2000) die Genauigkeit der Methode. Sie finden Unsicherheiten zwischen 8 und 30 % .

Die bisher vorgestellten Arbeiten beschränken sich darauf, die Emissionsstärke nur einer Quelle zu bestimmen. Hashmonay et al. (1999) berechnen in einem Feldversuch mit kontrollierten Emissionen gleichzeitig die Quellstärken von drei Quellen mittels dreier Offenpfadmessungen unter Zuhilfenahme inverser Dispersionsmodellierung mit einem Gauß'schen Ausbreitungsmodell. Die Dispersion wird als Gleichungssystem für einen Einzelfall formuliert:

$$\vec{c} = \mathbf{G}\vec{q} \quad (1.1)$$

mit der Konzentration  $\vec{c}$ , der Quellstärke  $\vec{q}$  und der Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$ .  $\mathbf{G}$  wird mittels eines Dispersionsmodells bestimmt und beschreibt den Einfluss jeder Quelle auf jede Messung im gegebenen Einzelfall. Daraus ergibt sich nach Matrixinversion (diese ist möglich, da die Ausbreitungsmatrix  $\mathbf{G}$  quadratisch ist):

$$\vec{q} = \mathbf{G}^{-1}\vec{c} \quad (1.2)$$

Für einen Einzelfall wird also ein lineares Gleichungssystem gebildet und dieses mit Hilfe der linearen Algebra gelöst. Die Arbeit von Hashmonay et al. (1999) ist die einzige, die mehrere diffuse Emissionen gleichzeitig bestimmt.

Einen anderen Ansatz als die bisher vorgestellten Methoden wird mit den so genannten Backward-Lagrange-Modellen verfolgt. Dies sind Dispersionsmodelle, die in der Zeit rückwärts rechnen. Flesch et al. (1995) gibt eine Überblick über deren Theorie und beschreibt, wie diese Methode benutzt werden kann, um bodennahe Emissionen einer beliebigen Quellgeometrie zu bestimmen. Die Backward-Modelle sind den Vorwärtsmodellen bei der Verwendung von Messungen an einem Punkt bezüglich Rechenzeit überlegen, da die Anzahl zu berechnender Partikel zum Erreichen einer akzeptablen Statistik im Backward-Lagrange-Modell bedeutend geringer ist. Flesch (1996) beschreibt, wie diese Modelle zur Bestimmung von Spurengasflüssen benutzt werden können, und bringt sie mit dem Begriff "Footprint" in Verbindung. Schmid (2002) vergleicht diese mit anderen "Footprint"-Methoden. Derartige Modelle wurden in jüngster Vergangenheit weiterentwickelt (beispielsweise Kljun et al., 2002) und zur Bestimmung von Spurengasflüssen eingesetzt (Flesch et al., 2005; Laubach und Kelliher, 2005b).

Wie Hourdin und Talagrand (2006) zeigen, sind sowohl das Vorwärtsmodell als auch das Backward-Lagrange-Modell symmetrisch in der Zeit. Dies bedeutet, dass die Beziehung zwischen Quelle und Messung mittels Vorwärtsmodell oder Backward-Lagrange-Modell bestimmt werden kann und dabei dieselben Ergebnisse erzielt werden. Damit gelten Erkenntnisse, die mit Backward-Lagrange-Modellen gewonnen wurden, auch für Anwendungen mit kleinskaligen Vorwärtsmodellen und inversen Methoden. Dies ist insofern von Bedeutung, als dass die Backward-Lagrange-Modelle in den letzten Jahren in einigen Feldversuchen getestet und auch mit anderen Methoden zur Emissionsmessung verglichen wurden. Daraus ergaben sich Grenzen der Methode und ein vertieftes Verständnis

des Systemverhaltens. Die so gewonnenen Erkenntnisse können also auch für die inverse Dispersionsmodellierung übernommen werden.

Die ersten Einschränkungen der inversen Dispersionsmodellierung kristallisierten sich bei der Invertierung eines Vorwärtsmodells heraus. Piccot et al. (1994) finden "akzeptable" Ergebnisse bei Windgeschwindigkeiten zwischen 1 bis 6 m/s. Mit einem ähnlichen Ansatz finden Renner und Gerber (2004) bei einem Modellversuch Abweichungen zwischen modellierter und gemessener Konzentration von 10 bis 20 %. Aufgrund der Linearität der Dispersionsmodellierung (Stockhause, 2000), gilt dieselbe Unsicherheit auch für die Emissionsratenbestimmung, sofern der Messfehler viel kleiner als der Modellfehler ist. Flesch et al. (2004) führten einen umfangreichen Feldversuch zum Test eines Backward-Lagrange-Modells durch und bestimmen eine Unsicherheit zwischen 20 bis 36 %. Weitere Schlussfolgerungen dieser Arbeit sind:

- Linienprofilmessungen sind Punktmessungen vorzuziehen.
- Konzentrationsmessungen am Rande der Abgasfahne sind zu vermeiden.
- Die Distanz der Messung zur Quelle sollte mindestens 10 mal die Messhöhe betragen.
- Perioden mit extremen Stabilitätsverhältnissen sollten vermieden werden.
- Perioden mit einer Schubspannungsgeschwindigkeit  $u_* \leq 0.15 \text{ ms}^{-1}$  sollten nicht betrachtet werden.

Auch Laubach und Kelliher (2005a) finden eine Abhängigkeit der Resultate von der Messhöhe, bemerken aber, dass dieses Verhalten nicht vollständig verstanden wird. Ähnliche Ergebnisse wie von den beiden vorangegangenen Untersuchungen werden auch von McBain und Desjardins (2005) erzielt. Laubach und Kelliher (2005b) bemerken bei Messungen zur Bestimmung der Emissionen von weidenden Viehherden, dass die Messung der Hintergrundkonzentration von äußerster Wichtigkeit ist und dass eine inhomogene Verteilung der Emissionen innerhalb der Quellregion zu systematischen Fehlern der Emissionsbestimmung führen kann. Flesch et al. (2005) bestimmen die Distanz zur Quelle, ab welcher eine heterogene Quellgeometrie als homogenen Flächenquelle angenommen werden kann, allerdings nur für eine einzige Quellgeometrie. Für dieses Beispiel mit zwei Flächenquellen und einer Punktquelle wird der Fehler nach doppelter Distanz der Quellmittelpunkte zueinander kleiner als 10 %.

Zur Bestimmung diffuser Emissionen wird meistens mit Lagrange'schen oder Gauss'schen Dispersionsmodellen gearbeitet, wobei sämtlichen chemischen Umwandlungen vernachlässigt werden. Auf regionaler oder größerer Skala existieren hingegen Anwendungen inverser Methoden unter Berücksichtigung von Chemie. Dies sind üblicherweise Eulermodelle, die mittels eines adjungierten Modells, das in der Zeit rückwärts rechnet, invertiert werden. Elbern et al. (2000) zeigen mit einem Modellversuch, dass es möglich ist, von Ozonmessung auf die Konzentration der Vorläufersubstanzen zu schließen, wenn mit einem adjungierten Chemie-Transport-Modell gerechnet wird und Regularisierungstechniken zur Stabilisierung der Lösung Anwendung finden. Vautard et al. (2000) zeigen mit einem photochemischen Boxmodell für die Stadt Paris die Möglichkeiten auf, die in der Anwendung eines adjungierten Modells liegen. Insbesondere können sie damit die Hintergrundkonzentration von Ozon bestimmen, die in das Modellgebiet

getragen wird, um damit die modellierte Ozonkonzentration zu verbessern. Mit vierdimensionaler Variationsanalyse (FDDA), die ebenfalls den inversen Methoden zuzurechnen ist, überprüfen Mendoza-Dominguez und Russell (2001) das Emissionsinventar von Atlanta für  $\text{NO}_x$ , VOC und CO und verwenden dazu das photochemische Modell CIT. Untersuchungen zur Identifikation der wichtigsten Einflussparameter auf die atmosphärische Konzentration verschiedener Spurenstoffe ist eine mögliche Anwendung für adjungiert Chemie-Transport-Modelle (Nester und Panitz, 2006; Martien et al., 2006), aber auch die Bestimmung von Emissionsraten (Müller und Stavrou, 2005; Quélo et al., 2005) oder die Datenassimilation zur Verbesserung von modellierten Konzentrationsfeldern (Chai et al., 2006). Methodisch können alle Anwendungen den inversen Methoden zugeordnet werden. Der Vorteil bei der Anwendung von chemischen Modellen ist die größere Anzahl von Informationen die dank der Messung mehrerer Spezies vorhanden ist und so eine Information beispielsweise über das Alter der Luftmasse enthalten. Der Nachteil liegt in der nicht linearen Natur der meisten chemisch relevanten Reaktionen, weswegen die Invertierung um ein Vielfaches aufwendiger und schwieriger ist als ohne Berücksichtigung der Chemie.

Bisherige Anwendungen inverser Methoden zur Bestimmung diffuser Emissionen auf lokaler Skala (bis 100 Meter) vernachlässigen chemische Prozesse, was aufgrund der kurzen Transportzeiten und der betrachteten chemisch "trägen" Substanzen zu keinen nennenswerten Fehlern führt. Der größte Anteil der Unsicherheit ist in der Ausbreitungsmodellierung zu suchen. Ein gewisser Anteil an der Unsicherheit der Ergebnisse sind Annahmen zur Geometrie diffuser Quellen zuzuordnen. Bisherige Untersuchungen finden Unsicherheiten der inversen Dispersionsmodellierung zwischen 20 - 40 %. Normalerweise wird davon ausgegangen, dass innerhalb der definierten Flächenquelle eine gleichmäßige Emission über die ganze Fläche stattfindet. Diese Annahme ist eine Vereinfachung der wahren Gegebenheiten, da gerade bei diffusen Quellen von einer heterogenen Emission ausgegangen werden kann. Die Bedeutung der vereinfachenden Annahmen der homogenen Emissionen wird in der hier vorliegenden Arbeit abgeschätzt. Dies erlaubt eine Beurteilung dieser Unsicherheit im Rahmen der gesamten Unsicherheit der inversen Dispersionsmodellierung.

Eine weiteres Merkmal der meisten bisherigen Untersuchung mit inversen Methoden zur Bestimmung diffuser Emissionen ist die Quantifizierung nur einer Quelle. Im Prinzip ist aber mit inversen Methoden auch die gleichzeitige Bestimmung der Emissionsraten mehrerer Quellen möglich. Dass das Gelingen dieses Vorhabens auch von der Distanz der Konzentrationsmessungen zu den Quellen abhängt, liegt auf der Hand. Je weiter weg sich die Messorte von den Quellen befinden, desto eher überlagern sich die Abgasfahnen und eine getrennte Emissionsratenbestimmung ist nicht mehr möglich. In der hier vorliegenden Arbeit soll eine obere Grenze für die getrennte Bestimmung zweier Quellen mittels zweier Messungen gegeben werden, bis zu welcher eine getrennte Bestimmung möglich ist. Dies ist als Ergänzung zur Fragestellung des vorigen Absatzes zu verstehen, mit welcher eine unter Grenze gegeben wird, ab welcher Annahmen zur Quellgeometrie vernachlässigt werden können.

Diese beiden Gegebenheiten (gleichzeitige Bestimmung mehrerer Quellen und Annahmen der homogenen Quellverteilung) grenzen also die Anwendbarkeit inverser Dispersionsmodellierung grundsätzlich ein, ohne die Unsicherheit der Ausbreitungsmodellierung in Betracht zu ziehen.

## 1.2 Heterogene Flächenquellen auf Flughäfen

Die Emission heterogener Flächenquellen, oder auch diffuser Quellen, ist schwierig zu quantifizieren. Eine Messung direkt bei der Punktquelle oder eine Prüfstandsmessung wie bei mobilen Quellen ist wegen der räumlichen Ausdehnung der Quelle nicht möglich. Eine VDI-Norm (VDI, 2002) nennt die inverse Dispersionsmodellierung (oder auch Quelltermrückrechnung) als Möglichkeit zur Bestimmung diffuser Emissionen. Diese Methode fand bereits Anwendung zur Bestimmung verschiedener diffuser Quellen wie beispielsweise Tagebaukohleminen (Kirchgessner et al., 1993), Meervogelkolonien (Blackall et al., 2004), Geflügelstallungen (Siefert et al., 2004) und von Tankanlagen (Stockhause, 2000; Ohlrogge et al., 2004). In der hier vorliegenden Arbeit werden mit inversen Methoden die Emissionen von Flughäfen untersucht und quantifiziert. Einen umfassenden Überblick über den Einfluss des Luftverkehrs auf die Atmosphäre gibt Rogers et al. (2002). Wichtige Quellen eines Flughafens sind Flugzeuge, Abfertigungsemissionen, Kraftwerke, Fahrzeuge auf dem Flughafen aber auch der Zubringerverkehr.

Der Einfluss eines Flughafens auf die Luftqualität in der Umgebung und der relative Beitrag einzelner Quellen kann von Flughafen zu Flughafen verschieden sein. Dessen Kenntnis ist aber von entscheidender Bedeutung zur Ergreifung geeigneter Maßnahmen zur Verbesserung der Luftqualität. Am Flughafen Athen beträgt der Einfluss des Flughafens, also nicht nur der Flugzeuge, auf die Umgebungsluftkonzentration bis zu 50 % (Moussiopoulos et al., 1997). Yu et al. (2004) führten Untersuchungen an den Internationalen Flughäfen von Hong Kong und Los Angeles durch. Der größte Einfluss auf die Umgebungsluftqualität wird an diesen beiden Flughäfen durch Fahrzeugemissionen hervorgerufen. Dennoch werden CO-Konzentrationen in einer Entfernung von 3 bis 4 km von der Startbahn teilweise den Flugzeugen zugeordnet. McIntyre und Perry (1988) quantifizieren den Einfluss des Flughafens London Stansted auf die benachbarte Umgebungsluftkonzentration mit 17 %. Für einen damals geplanten Ausbau des Flughafens wird eine Verdoppelung des Einflusses durch den Flughafen prognostiziert. Erst kürzlich wurde eine groß angelegte Studie am Flughafen Paris Charles de Gaulle durchgeführt, die von der Emission bis zum Einfluss des Flughafens auf die Umgebung eine Vielzahl von Fragestellungen bearbeitet (Lelievre et al., 2006). Endgültige Ergebnisse liegen bis zum jetzigen Zeitpunkt noch nicht vor.

Zur Bestimmung von Flugzeugemissionen wurde in den letzten Jahren eine Methode auf Basis von gleichzeitiger Messung von Schadstoffen und CO<sub>2</sub> entwickelt (Popp et al., 1999; Herndon et al., 2004; Schäfer et al., 2003; Schürmann et al., 2005, 2007). Insbesondere Schäfer et al. (2003) finden Abweichungen zu den von der Internationale Zivilluftfahrtbehörde (ICAO) auf Prüfständen gemessenen Emissionsindices (ICAO, 1993). Dies deutet darauf hin, dass die Bestimmung von Flugzeugemissionen auf Flughäfen aufgrund der Daten der ICAO mit relativ großen Unsicherheiten behaftet ist. Es sind allerdings nicht die ICAO-Daten an sich fehlerhaft, sondern deren Anwendung unter realen Bedingungen.

Abfertigungsemissionen wurden bisher nur selten bestimmt. Diese werden teilweise als die unbekannte Quelle von Luftschadstoffen auf Flughäfen betrachtet (Cooney, 2006). Abfertigungsemissionen setzen sich hauptsächlich aus Abgasen von Dieselmotoren zusammen. Dementsprechend dominieren NO<sub>x</sub>- gegenüber CO-Emissionen (Fleuti, 2004). Unsicherheiten der Emissionsmodellierung aufgrund von Emissionsfaktoren der Spezialfahrzeuge zur Flugzeugabfer-

tigung entstehen unter anderem durch unbekannte Last der Fahrzeugmotoren (Load factor), die speziell durch eine hohe Zeit des Leerlaufs gekennzeichnet ist (Margenat und Casanova, 2006).

Zur Bestimmung von Emissionen während des Betriebes eines Flughafens ist der Zugang zu Einzelquellen kaum möglich, seien dies nun Flugzeugtriebwerke oder Abfertigungsemissionen, da sonst der reibungslose Betrieb des Flughafens gestört würde. Hier bietet sich die inverse Dispersionsmodellierung als Möglichkeit an, die Emissionen aus größerer Distanz zu bestimmen.

Inverse Methoden auf Flughäfen zur Bestimmung von diffusen Emissionen wurden bisher nur in der Vorbereitung auf diese Arbeit angewendet (Schürmann et al., 2004; Schäfer et al., 2005; Schürmann et al., 2006a,b). Triebwerke können aufgrund ihrer Ausdehnung und der initialen Ausbreitung des Abgasstrahls als diffuse Volumenquellen betrachtet werden. Abfertigungsemissionen finden auf Standplätzen der Flugzeuge statt. Eine genauere Lokalisierung der Quelle ist aufgrund der Vielzahl von emittierenden Fahrzeugen im Allgemeinen nur schwer möglich. Deshalb können auch Abfertigungsemissionen als typische diffuse Emissionen auf der Fläche des Standplatzes betrachtet werden. Im Vergleich zu bisherigen Anwendungen inverser Methoden zur Bestimmung diffuser Emissionen ist die Quellcharakteristik auf Flughäfen zeitlich und räumlich sehr heterogen.

Aus diesem Grund stellt die Bestimmung von diffusen Emissionen auf einem Flughafen spezielle Anforderungen an ein inverses Dispersionsmodell. Typische Skalen, für die inverse Methoden auf einem Flughafen angewendet werden können, bewegen sich zwischen 100 und 1000 Metern. Kleinere Skalen sind einerseits zu nahe an der Quelle, was den Betrieb des Flughafens stört, andererseits müssten die physikalischen Effekte im Abgasstrahl des Triebwerkes berücksichtigt werden, was mit gängigen Dispersionsmodellen nicht möglich ist. Skalen, die wesentlich größer als 1000 Meter sind, würden eine detaillierte Berücksichtigung von chemischen Prozessen nach sich ziehen. Auch dies ist mit den heute verfügbaren Lagrange'schen Dispersionsmodellen nicht möglich und die Probleme bei der Invertierung eines solchen Modells, das zwangsläufig nicht-linearen Charakter aufweist, sind zukünftig noch zu lösen, würden aber den Rahmen dieser Arbeit bei weitem sprengen. Die Arbeit wird sich also in einem Skalenbereich von 100-1000 Meter bewegen. Auf dieser räumlichen Skala ist es notwendig, gleichzeitig mehrere Quellen zu quantifizieren, was bislang die Ausnahme bei Anwendungen mit inversen Dispersionsmodellen darstellt. Eine weitere Charakteristik von Flughafenquellen ist deren zeitlich und räumlich heterogene Struktur. Diese widerspricht der Annahme der homogenen Emission, die bei der Anwendung inverser Dispersionsmodelle normalerweise getroffen wird. Flughäfen stellen also ein besondere Herausforderung der inversen Dispersionsmodellierung dar.

In der hier vorliegenden Arbeit wird zunächst das inverse Modell EMiL (**E**missionsratenbestimmung mittels **M**essung der Konzentration, **i**nverser Methoden und **L**agrange'scher Ausbreitungsmodellierung) zur gleichzeitigen Bestimmung mehrerer Emissionsraten auf lokaler Skala (100 - 1000 Meter) entwickelt. In Kapitel 2 wird dazu die theoretische Basis der verwendeten Methode vorgestellt und in Kapitel 3 deren Implementierung. In Kapitel 4 werden erstens die Voraussetzungen zur gleichzeitigen Bestimmung mehrerer Quellen und zweitens der Einfluss der Annahme homogener Emissionen einer diffusen Flächenquelle auf das Ergebnis der inversen Dispersionsmodellierung untersucht. Beides sind grundsätzliche Fragen, die bei der Anwendung inverser Dispersionsmodellierung



## *KAPITEL 1. EINFÜHRUNG*

---

im Skalenbereich 100 - 1000 Meter betrachtet werden müssen. Schließlich wird das inverse Dispersionsmodell EMiL zur Bestimmung von diffusen Emissionen auf den Flughäfen Zürich und Budapest eingesetzt. Insbesondere wird damit die relative Bedeutung einzelner Quellen bestimmt. Daran schließt die Diskussion der Ergebnisse in Kapitel 6 an.

## Kapitel 2

# Inverse Methoden - Theorie

Zahlreiche atmosphärische Spurenstoffe gelangen durch Emissionen in die Atmosphäre, d.h. sie werden am Ort der Emission in die Atmosphäre entlassen und dort verdünnt, chemisch umgewandelt, ausgewaschen und deponiert. Einen Zusammenhang zwischen der Emissionsrate  $\vec{q}$  und der gemessenen Konzentration  $\vec{c}_{mess}$  eines atmosphärischen Spurenstoffes an einem gegebenen Ort kann allgemein geschrieben werden als:

$$\vec{c}_{mess} = g(\vec{q}) + \epsilon \quad (2.1)$$

Die Funktion  $g$  in Gleichung 2.1 beschreibt das so genannte Vorwärtsmodell, das die Ausbreitung, chemische Umwandlung und Deposition der Spurenstoffe in der Atmosphäre simuliert und  $\epsilon$  steht für den Modellfehler, definiert als Differenz zwischen gemessener und modellierter Konzentration.

Unter inversen Methoden werden jene Methoden zusammengefasst, die bei gegebener Konzentrationsmessung  $\vec{c}_{mess}$  eine berechnete Emissionsrate  $\vec{q}_r$  bestimmen. Wird als Vorwärtsmodell nur die Ausbreitung berücksichtigt und chemische Umwandlungen sowie andere atmosphärische Prozesse vernachlässigt, so ist Gleichung 2.1, was den Zusammenhang von  $\vec{q}$  und  $\vec{c}$  angeht, linear (Stockhause, 2000):

$$\vec{c}_{mess} = \mathbf{G}\vec{q} + \epsilon \quad (2.2)$$

wobei die Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  das Vorwärtsmodell beschreibt. Der Vorteil einer linearen Gleichung besteht darin, dass zur Invertierung die Mittel der linearen Algebra genutzt werden können. Die Bestimmung der Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  wird später in Kapitel 2.1 und 3 beschrieben. Es soll hier angemerkt werden, dass das  $\mathbf{G}$  zugrundeliegende Ausbreitungsmodell in den dynamischen Größen durchaus nicht-linear sein kann.

Die Vernachlässigung chemischer Prozesse bedeutet eine Einschränkung bei der Anwendung inverser Methoden für reale Anwendungen. Die Transportzeiten von der Quelle bis zur Messung müssen ausreichend kurz sein und die Reaktionskonstanten für den betreffenden Stoff ausreichend klein, damit chemische Umwandlungen tatsächlich vernachlässigt werden können (siehe dazu Kapitel 3). Ist diese Voraussetzung nicht gegeben, kann mit iterativen Methoden und linearisierten Modellen gerechnet werden. Derartige Verfahren werden in dieser Arbeit aufgrund der betrachteten räumlichen und zeitlichen Skalen nicht

vorgestellt, sind im Prinzip aber den hier verwendeten Methoden sehr ähnlich, deren Rechenaufwand ist aber erheblich höher (Ein Beispiel mit berücksichtigter Chemie ist bei Elbern et al., 2000, zu finden).

## 2.1 Vorwärtsproblem

Die Invertierung eines Modells erfolgt in mehreren Schritten. Als erstes wird das Vorwärtsproblem formuliert, das den Zusammenhang zwischen der Konzentrationsmessung  $\vec{c}_{mess}$  und der unbekanntem Emissionsrate  $\vec{q}$  beschreibt. Erst danach kann die Invertierung erfolgen. Das Vorwärtsmodell ist von entscheidender Bedeutung, da damit festgelegt wird, in welchem Rahmen eine Lösung gefunden werden kann, oder wie Gubbins (2004) schreibt: "The inversion excludes any radically different interpretation" (Übersetzt: Die Inversion schließt jede radikal andersartige Interpretation aus).

Zur Beschreibung der Ausbreitung von Spurenstoffen in der Atmosphäre gibt es im Allgemeinen keine analytische Lösung aufgrund der üblicherweise anzutreffenden inhomogenen Verhältnisse und der teilweise komplexen Höhenabhängigkeit der Windgeschwindigkeit und der Diffusionskoeffizienten (Seinfeld, 1986). Die einzige Möglichkeit ist die numerische Simulation. Für Anwendungen in Quellnähe sind Lagrange'sche Dispersionsmodelle am besten zur Beschreibung der Ausbreitungen geeignet und sind auch in der Lage komplexen Quellgeometrien und Ausbreitungsbedingungen zu berücksichtigen, unter anderem deshalb, weil die Ausbreitung an sich nicht diskretisiert gerechnet wird, sondern nur ein diskreter Zeitschritt anwendung findet (VDI, 2002). Zur Bestimmung der Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  wird in dieser Arbeit das Lagrange'sche Dispersionsmodell Austal2000 (Ingenieurbüro Janicke, 2004) eingesetzt.

Einen ausführlichen Überblick über die Theorie von Lagrange'schen Dispersionsmodellen gibt Rodean (1996). Lagrange'sche Dispersionsmodelle beruhen auf der Annahme, dass der turbulente Transport in zwei Teile aufgeteilt werden kann, einen zufälligen und einen deterministischen. Die Idee besteht darin, die Prozesse wie Brown'sche Molekularbewegung zu behandeln und somit als Random-Walk-Modell zu beschreiben. Derartige Probleme können mit einer erweiterten Langevingleichung beschrieben werden:

$$\frac{du}{dt} = a_0 - a_1 u + b\xi(t) \quad (2.3)$$

Hierbei steht  $u$  für die Partikelgeschwindigkeit,  $t$  für die Zeit,  $a_0$ ,  $a_1$  und  $b$  sind Parameter, deren Bestimmung hier nicht weiter ausgeführt wird, sondern auf die Literatur (beispielsweise: Rodean, 1996; Rotach et al., 1996) verwiesen sei.  $\xi(t)$  ist eine Zufallsfunktion mit Mittelwert Null und Varianz 1.

Der erste Term der rechten Seite von Gleichung 2.3 ( $a_0$ ) wird "Drift"- Korrektur genannt und ist nötig, damit das "Well-Mixed"-Kriterium (Thomson, 1987), eine Voraussetzung für Lagrange'sche Dispersionsmodelle, erfüllt wird. Der zweite Term ( $a_1 u$ ) beschreibt das "Gedächtnis" der Geschwindigkeit und der dritte Term ( $b\xi(t)$ ) beschreibt den zufälligen Anteil der Bewegung, womit die Turbulenz beschrieben wird.

Aufgrund des zufälligen Terms in der Langevingleichung ist zur numerischen Umsetzung die Berechnung einer großen Zahl von Partikel notwendig, damit die

Konzentration an einer beliebigen Stelle im Modellgebiet genügend genau bestimmt werden kann. Für jedes dieser Partikel wird Gleichung 2.3 für jeden Zeitschritt zweimal integriert. Nach der ersten Integration ist die Geschwindigkeit der Partikel bekannt, nach der zweiten der Ort. Mittels Analyse der Aufenthaltsorte der Partikel kann die Umgebungskonzentration bestimmt werden. Eine räumliche Diskretisierung ist im Prinzip auf Grund der Lagrange'schen Sichtweise nicht notwendig.

Wird nur Gauß-verteilte Turbulenz betrachtet, was für die konvektive Grenzschicht nicht gilt (Rodean, 1996), kann anstelle der Langevingleichung eine Gleichung verwendet werden, in der der erste zeitliche Integrationschritt bereits durchgeführt wurde und der Zufallsterm somit zur Geschwindigkeit und nicht zur Beschleunigung addiert wird. Dies führt so zu Lagrange'schen Dispersionsmodellen, wie sie in einer Richtlinie des Vereins Deutscher Ingenieure (VDI, 2000) beschrieben ist, worauf das hier benutzte Modell Austal2000 (Janicke, 2000; Ingenieurbüro Janicke, 2004) beruht:

$$x_{neu} = x_{alt} + \Delta t (V + u + U) \quad (2.4)$$

Hierbei steht  $x_{neu}$  und  $x_{alt}$  für den Ort nach und vor einem Zeitschritt mit der Dauer  $\Delta t$ .  $V$  beschreibt den mittleren Wind,  $u$  den turbulenten Anteil des Windes und  $U$  eine zusätzliche Windkomponente mit der beispielsweise Auftriebseffekte bei warmen Abgasen mitberücksichtigt werden können. Die zufällige Komponente wird über die turbulente Geschwindigkeit  $u$  mitberücksichtigt:

$$u_{neu} = \Phi u_{alt} + \Xi \quad (2.5)$$

$\Phi$  beschreibt die Autokorrelation von  $u$ , und  $\Xi$  ist ein Zufallsterm. Gleichung 2.5 ist ein Markov-Prozess. Zur Bestimmung der beiden Größen  $\Xi$  und  $\Phi$  sind Felder der Windgeschwindigkeitsvarianz und des Diffusionskoeffizienten notwendig.

Die Umsetzung der VDI-Richtlinie (VDI, 2000) im Modell Austal2000 (Ingenieurbüro Janicke, 2004) berücksichtigt all diese Vorgaben. Das Modell ist in der Lage orographische Effekte und Gebäudeumströmung zu berücksichtigen. Dazu wird mit einem diagnostischen Windfeldmodell ein divergenzfreies Windfeld berechnet (Ingenieurbüro Janicke, 2004), das Gebäudeumströmung (Janicke und Janicke, 2004) und ein Grenzschichtprofil mitberücksichtigt (Janicke und Janicke, 2000). Insbesondere wurde dieses Modell auch gegen bodennahe Quellen in bebautem Gelände validiert.

## 2.2 Inverse Methoden

Die eigentliche Aufgabe der inversen Methoden ist die Umkehrung (Invertierung) eines bekannten Zusammenhangs (Gleichung 2.2). Aus einer Konzentrationsmessung  $\vec{c}_{mess}$  werden quantitative Aussagen über Emissionsraten  $\vec{q}_r$  berechnet. Das inverse Problem besteht also darin, die Emissionsrate

$$\vec{q}_r = f(\mathbf{G}, \vec{c}_{mess}, \dots) \quad (2.6)$$

zu bestimmen. Wie im weiteren Verlauf dieses Kapitels ausgeführt werden wird, hängt diese Funktion nicht nur von der Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  und der gemessenen Konzentration  $\vec{c}_{mess}$  ab. Je nach angewandeter inverser Methode müssen noch andere Größen mitberücksichtigt werden.

Grundsätzlich wird bei der Anwendung von inversen Methoden zwischen drei verschiedenen Fällen unterschieden. (1) Liegen mehr Messungen als unbekannte Quellen vor, wird von einem überbestimmten System gesprochen. Eine Lösung dazu kann mittels Minimierung der quadratischen Differenz zwischen modellierter und gemessener Konzentration oder mit jeder anderen geeigneten Norm ermittelt werden. (2) Gleichviele Messungen wie Quellen führen zu einer quadratischen Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$ , die direkt invertierbar ist. Falls einzelne Gleichungen aber linear abhängig sind, ist die Matrix nicht mehr invertierbar und es liegen mehr Quellen vor als unabhängige Messungen. Damit wird das Problem zu einem unterbestimmten System und lässt unendlich viele mathematische Lösungen zu. (3) Ebenfalls ein unterbestimmtes System liegt vor, wenn weniger Messungen zur Verfügung stehen, als Emissionsraten zu bestimmen sind. Zur Lösung dieser letzten Art Invertierung werden nun Verfahren angewendet, die es ermöglichen, aus der Unendlichkeit der möglichen Lösungen eine "realistische und wahrscheinliche" herauszusuchen.

Die Fälle (1) und (2) sind in praktischen Anwendungen nur bei gut überschaubaren und kleinen Untersuchungsgebieten anzutreffen. Zur Lösung dieser Probleme kann unter anderem die Methode der pseudoinversen Matrix benutzt werden. Der häufigere Fall (3) wird in dieser Arbeit mit einem Bayes'schen Ansatz gelöst, wobei bereits quantitatives Vorwissen über die Quellstärke vorausgesetzt wird. Dies bezeichnet man als a-priori Emissionsrate  $\vec{q}_a$ .<sup>1</sup>

Die Beschreibung der inversen Methoden basiert, sofern nicht anders vermerkt, auf einigen Standardwerken. Gubbins (2004) gibt in seinem Buch eine Einführung für Geophysiker, die auch auf andere Anwendungen übertragen werden kann. Enting (2002) und Bennett (2002) gehen vermehrt auf die Invertierung von Transportprozessen in der Atmosphäre ein. Deren Fokus liegt dabei vor allem auf der globalen Skala, auch wenn einige kleinere skalige Anwendungen besprochen werden. Theoretisch widmen sich dem Thema der inversen Modellierung einzelne Kapitel in Press et al. (1992) zur pseudoinversen Matrix und Tarantola (1987) beschreibt die Theorie der Bayes'schen Methode.

### 2.2.1 Methode der pseudoinversen Matrix

Ausgehend von der Idee, die quadrierten Differenzen zwischen modellierter Konzentration ( $\vec{c}_{mod} = g(\vec{q}_r)$ ) und gemessener Konzentration ( $\vec{c}_{mess}$ ) zu minimieren, kann Gleichung 2.1 umgeschrieben werden zu:

$$\epsilon^2 = (\vec{c}_{mess} - g(\vec{q}_r))^2 \quad (2.7)$$

eine Ausweitung davon auf mehrere Dimensionen und gleichzeitige Linearisierung führt zu der Bedingung:

$$\epsilon^2 = (\mathbf{G}\vec{q}_r - \vec{c}_{mess})^T (\mathbf{G}\vec{q}_r - \vec{c}_{mess}) \stackrel{!}{=} \text{minimal} \quad (2.8)$$

Minimiert man Gleichung 2.8, indem  $\epsilon$  nach  $\vec{q}_r$  differenziert und danach gleich Null gesetzt wird, erhält man:

$$\mathbf{G}^T \mathbf{G} \vec{q}_r = \mathbf{G}^T \vec{c}_{mess} \quad (2.9)$$

---

<sup>1</sup>Im Prinzip kann mit der Methode der pseudoinversen Matrix der gesamte Lösungsraum für den Fall (3) bestimmt werden. Dies findet in dieser Arbeit aber keine Anwendung und wird deswegen auch nicht weiter ausgeführt.

Unter der Voraussetzung, dass gleichviel oder mehr Messungen als unbekannte Emissionsraten vorliegen, ist  $\mathbf{G}^T \mathbf{G}$  symmetrisch und positiv semi-definit (Gubins, 2004) und die Eigenwerte sind null oder größer als null. Falls die Gleichungen linear unabhängig sind (Eigenwerte  $> 0$ ), kann für  $\vec{q}_r$  geschrieben werden:

$$\vec{q}_r = (\mathbf{G}^T \mathbf{G})^{-1} \mathbf{G}^T \vec{c}_{mess} \quad (2.10)$$

Probleme bei der Lösung dieser Gleichung treten auf, wenn Eigenwerte von  $\mathbf{G}$  Null oder sehr klein sind. Dies führt Computer an die Grenzen der numerischen Präzision, da sehr kleine Werte numerisch nicht exakt dargestellt werden können, und die Matrix kann dann mit den genannten Methoden nicht mehr invertiert werden. Zur Umgehung dieses Problems schlägt Press et al. (1992) vor, überbestimmte lineare Gleichungssysteme mit der Singulärwertzerlegung (Singular Value Decomposition SVD) zu lösen. Jede Matrix  $\mathbf{G}$  lässt sich mit der SVD wie folgt zerlegen:

$$\mathbf{G} = \mathbf{U} \mathbf{\Lambda} \mathbf{V}^T \quad (2.11)$$

$\mathbf{U}$  bildet sich aus den Eigenvektoren von  $\mathbf{G} \mathbf{G}^T$  und  $\mathbf{V}$  aus den Eigenvektoren von  $\mathbf{G}^T \mathbf{G}$ . Die mittlere Matrix  $\mathbf{\Lambda}$  ist eine Diagonalmatrix deren Diagonalelementen den Singulärwerten (Wurzel der Eigenwerten von  $\mathbf{G}^T \mathbf{G}$ ) entsprechen. Da  $\mathbf{U}^T \mathbf{U} = \mathbf{I}$  (Einheitsmatrix) gilt, kann folgendes geschrieben werden:

$$\mathbf{G}^T \mathbf{G} = (\mathbf{U} \mathbf{\Lambda} \mathbf{V}^T)^T (\mathbf{U} \mathbf{\Lambda} \mathbf{V}^T) = \mathbf{V} \mathbf{\Lambda} \mathbf{U}^T \mathbf{U} \mathbf{\Lambda} \mathbf{V}^T = \mathbf{V} \mathbf{\Lambda}^2 \mathbf{V}^T \quad (2.12)$$

In Gleichung 2.10 eingesetzt führt dies zu den Emissionsraten:

$$\begin{aligned} \vec{q}_r &= (\mathbf{V} \mathbf{\Lambda}^2 \mathbf{V}^T)^{-1} (\mathbf{U} \mathbf{\Lambda} \mathbf{V}^T)^T \vec{c}_{mess} \\ &= (\mathbf{V} \mathbf{\Lambda}^{-1} \mathbf{U}^T) \vec{c}_{mess} = \mathbf{G}^\dagger \vec{c}_{mess} \end{aligned} \quad (2.13)$$

Die pseudoinverse Matrix  $\mathbf{G}^\dagger = \mathbf{V} \mathbf{\Lambda}^{-1} \mathbf{U}^T$  gibt dieser Methode den Namen. Lösungen, die so bestimmt werden, entsprechen für den Fall von quadratischen Modellmatrizen den Lösungen mit einer gewöhnlichen inversen Matrix  $\mathbf{G}^{-1}$ . Sind mehr Messungen als Unbekannte vorhanden, entspricht die Lösung der Gleichung 2.13 derjenigen von Gleichung 2.10. Falls mehr unbekannte Quellstärken  $\vec{q}_r$  als Messungen  $\vec{c}_{mess}$  vorliegen, gibt es im Prinzip unendlich viele Lösungen und die Lösung mit der pseudoinversen Matrix entspricht der "kürzesten Lösung":  $|\vec{q}_r| = \min$  (Press et al., 1992).

Der Vorteil von Gleichung 2.13 gegenüber 2.10 liegt darin, dass mit einer einfachen Maßnahme das Problem der numerischen Präzision gelöst werden kann. In Gleichung 2.13 müssen nur die Diagonalelemente ( $\lambda_i$ ) der Singulärwertematrix invertiert werden ( $\mathbf{\Lambda}^{-1} = \text{diag}(\lambda_i^{-1})$ ). Dies führt zu Problemen bei sehr kleinen Singulärwerten (numerische Präzision). Um trotzdem eine Lösung zu finden, wird ein Schwellenwert  $\lambda_{crit}$  definiert, der folgendes bewirkt:

$$\lambda_i^{-1} = \begin{cases} \lambda_i^{-1} & \text{wenn } \lambda_i \geq \lambda_{crit} \\ 0 & \text{wenn } \lambda_i < \lambda_{crit} \end{cases} \quad (2.14)$$

Damit wird eine Stabilisierung der Lösung bei sehr kleinen  $\lambda_i$  erreicht, die bei einer direkten Invertierung zu großen Fehlern führen kann. In Anlehnung an Press et al. (1992) wurde in dieser Arbeit  $\lambda_{crit} = 10^{-6}$  verwendet.

Dank der Möglichkeit zur Stabilisierung ist die Singulärwertzerlegung zur Bestimmung der pseudoinversen Matrix den anderen Methoden vorzuziehen, da sie bei gut gestellten Problemen zur gleichen Lösung wie die anderen Verfahren führt, aber den Vorteil aufweist, auch bei schlecht gestellten Problemen eine Lösung zu finden.

### 2.2.2 Bayes' Ansatz

Die oben beschriebene Methode (Kapitel 2.2.1) führt nur zu realistischen Ergebnissen, wenn mindestens gleichviel Messungen wie Quellen vorliegen. Praktische Anwendungen in einem Gebiet mit komplexer Quellgeometrie (beispielsweise Flughäfen) erfüllen diese Anforderung wegen der Vielzahl zu berücksichtigender Quellen nur selten. Es ist eine Strategie gefragt, wie aus den unendlich vielen möglichen Lösungen eine realistische gefunden werden kann. Dazu sind zusätzlich zu den Messungen weitere Information zu berücksichtigen. Ausgehend von der Tatsache, dass auf Flughäfen bereits Daten über die Emissionsraten der verschiedenen Quellen vorhanden sind, wird ein Ansatz gewählt, der diese Information mitberücksichtigen kann. Die bereits bekannten Daten über Emissionen werden nicht als absolut wahr betrachtet, sondern mit einer Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion belegt. Auch den Messungen werden Unsicherheiten (Messfehler) zugeordnet. Daraus ergibt sich folgende Frage: Was ist die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der a-posteriori Emissionsraten  $\vec{q}_r$  aufgrund der Messung  $\vec{c}_{mess}$  und der a-priori Emissionsraten  $\vec{q}_a$  (Vorwissen). Die Grundlage dazu bietet das Theorem von Bayes:

$$P(\vec{q}|\vec{c}_{mess}) = \frac{P(\vec{c}_{mess}|\vec{q})P(\vec{q})}{P(\vec{c}_{mess})} \quad (2.15)$$

mit der a-posteriori Wahrscheinlichkeit  $P(\vec{q}|\vec{c}_{mess})$  für die Emissionsrate  $\vec{q}$  unter der Bedingung dass die Messung  $\vec{c}_{mess}$  gegeben ist.  $P(\vec{c}_{mess}|\vec{q})$  ist die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion für die gemessene Konzentration  $\vec{c}_{mess}$  unter der Bedingung, dass die Emissionsrate  $\vec{q}$  gegeben ist. Dies entspricht somit der Wahrscheinlichkeitsdichte des Vorwärtsmodells. Das Vorwissen wird mit der Wahrscheinlichkeitsdichte der a-priori Emissionsraten  $P(\vec{q})$  mit Mittelwert  $\vec{q}_a$  berücksichtigt.  $P(\vec{c}_{mess})$  ist unabhängig von  $\vec{q}$  und kann somit als Skalierungsfaktor interpretiert werden und spielt in der folgenden Herleitung keine Rolle (Rodgers, 2000). Unter der Annahme von normalverteilten Mess- und Modellfehlern kann gezeigt werden, dass

$$P(\vec{c}_{mess}|\vec{q}) = const * e^{(-\frac{1}{2}(\mathbf{G}\vec{q}-\vec{c}_{mess})^T \mathbf{C}_M^{-1}(\mathbf{G}\vec{q}-\vec{c}_{mess}))} \quad (2.16)$$

mit der Kovarianzmatrix des Mess- und Modellfehlers  $\mathbf{C}_M$ . Analog kann für eine normalverteilte a-priori Emissionsrate geschrieben werden:

$$P(\vec{q}) = const * e^{(-\frac{1}{2}(\vec{q}-\vec{q}_a)^T \mathbf{C}_P^{-1}(\vec{q}-\vec{q}_a))} \quad (2.17)$$

mit der Kovarianzmatrix der a-priori Emissionsrate  $\mathbf{C}_P$ .

Das Einsetzen von Gleichungen 2.16 und 2.17 in Gleichung 2.15 ergibt die a-posteriori Verteilung:

$$P(\vec{q}|\vec{c}_{mess}) = const * e^{-J(\vec{q})} \quad (2.18)$$

mit der Kostenfunktion  $J(\vec{q})$ :

$$J(\vec{q}) = \frac{1}{2} \left\{ (\mathbf{G}\vec{q} - \vec{c}_{mess})^T C_M^{-1} (\mathbf{G}\vec{q} - \vec{c}_{mess}) + (\vec{q} - \vec{q}_a)^T C_P^{-1} (\vec{q} - \vec{q}_a) \right\} \quad (2.19)$$

Gleichung 2.18 beschreibt wieder eine Normalverteilung, deren Mittelwert der gesuchten a-posteriori Emissionsrate  $\vec{q}_r$  entspricht. Somit erreicht die Kostenfunktion  $J(\vec{q})$  für den Wert  $\vec{q}_r$  ihr Minimum (Tarantola, 1987). Nach der Minimierung von Gleichung 2.19 ergibt sich für die a-posteriori Emissionsrate:

$$\vec{q}_r = \vec{q}_a - \left\{ \mathbf{G}^T C_M^{-1} \mathbf{G} + C_P^{-1} \right\}^{-1} \mathbf{G}^T C_M^{-1} \left\{ \mathbf{G}\vec{q}_a - \vec{c}_{mess} \right\}. \quad (2.20)$$

Die Kovarianzmatrix der Lösung (a-posteriori Kovarianzmatrix) wird zu:

$$C_{post} = \left\{ \mathbf{G}^T C_M^{-1} \mathbf{G} + C_P^{-1} \right\}^{-1} \quad (2.21)$$

Setzt man nun die a-posteriori Emissionsrate und Kovarianzmatrix in Gleichung 2.19 ein, ergibt sich:

$$J(\vec{q}) = \frac{1}{2} \left\{ (\vec{q} - \vec{q}_r)^T C_{post}^{-1} (\vec{q} - \vec{q}_r) \right\} \quad (2.22)$$

Die Minimierung der Kostenfunktion  $J(\vec{q})$  (Gleichung 2.19) ermöglicht eine anschauliche Interpretation der Bayes'schen Methode. Das a-priori Wissen wird aufgrund von Messungen angepasst. Sind keine durch die Quellen beeinflussten Messungen vorhanden, findet keine Anpassung statt und die a-posteriori Lösung entspricht der a-priori Emissionsrate. Dieser Sachverhalt begründet die Eignung der Bayes'schen Methode, unterbestimmte Probleme zu lösen, sofern Vorwissen über die Emissionsraten vorhanden ist.

Die mit der Bayes'schen Methode erhaltenen Ergebnisse bedürfen allerdings der Interpretation. Die Diagonalelemente der Kovarianzmatrix  $C_{post}$  entsprechen den Varianzen (Fehlerquadrate) der berechneten Emissionsraten  $\vec{q}_r$ . Sie sind somit ein Maß für die Unsicherheit der Ergebnisse.

Die Auswertung der Kovarianzmatrix zeigt aber auch möglicherweise vorkommende Korrelationen der berechneten Emissionsraten (hier:  $q_x$  und  $q_y$  mit Standardabweichung  $\sigma_x$  und  $\sigma_y$ ) untereinander auf. Aus der Definition der Korrelation (zu finden beispielsweise in Stahel, 1995) ergibt sich der Zusammenhang zwischen Korrelation  $r_{xy}$  und Kovarianz  $Cov(q_x, q_y)$ :

$$r_{xy} = \frac{Cov(q_x, q_y)}{\sigma_x \sigma_y} \quad (2.23)$$

Diese Korrelationen sind nicht als real existierende Zusammenhänge zu interpretieren. Vielmehr sind sie ein Maß für die Unabhängigkeit der berechneten Emissionsraten. Hohe Korrelationen zwischen zwei Quellen deuten darauf hin, dass diese im betrachteten Einzelfall nicht unabhängig voneinander bestimmt werden können. Ob diese real tatsächlich korrelieren, ist damit nicht bestimmt.

Ein weiteres Mittel zur Interpretation, das die inverse Theorie bereitstellt, ist dasjenige der Resolutionsmatrix  $\mathbf{R}$ . Dieses verbindet die berechnete Lösung  $\vec{q}_r$  mit der "wahren Lösung"  $\vec{q}_w$ . Im linearen Fall gilt:

$$\vec{q}_r = \mathbf{R}\vec{q}_w \quad (2.24)$$



Falls die Resolutionsmatrix  $\mathbf{R}$  der Einheitsmatrix entspricht, wurde tatsächlich die "Realität" berechnet. Die Resolutionsmatrix kann nach Tarantola (1987) bestimmt werden:

$$\mathbf{R} = (\mathbf{G}^T C_M^{-1} \mathbf{G} + C_P^{-1}) \mathbf{G}^T C_M^{-1} \mathbf{G} \quad (2.25)$$

Nach Gubbins (2004) ist die Resolutionsmatrix im Allgemeinen nicht invertierbar. Andernfalls könnte die wahre Lösung bestimmt werden, was normalerweise nicht möglich ist. Die  $i$ -te Reihe der Resolutionsmatrix gibt den Einfluss jeder Quelle auf die Berechnung der Quelle  $i$  wieder, während die  $i$ -te Spalte den Effekt einer Störung der Quelle  $i$  auf die restlichen Quellen aufzeigt. Die Analyse der Resolutionsmatrix zeigt also auf, über welche Emissionsrate tatsächlich Information gewonnen wurde und was für gegenseitige Beeinflussungen der Quellen zu berücksichtigen sind.

### 2.2.3 Eine philosophische Einordnung der inversen Methoden

Mit den beiden vorgestellten Methoden können Emissionsraten aufgrund von Konzentrationsmessungen in der Umgebungsluft bestimmt werden. Die philosophischen Überlegungen, die den beiden Methoden zugrunde liegen, sind allerdings verschieden. Während die pseudoinverse Methode eine deterministische Anschauungsweise als Grundlage hat, berechnet Bayes' Methode die Invertierung aufgrund statistischer Gesetze. Der Besonderheit der Bayes'schen Betrachtungsweise liegt hierbei hauptsächlich darin begründet, dass Vorwissen über die gesuchte Größe mitberücksichtigt werden muss. Dies entspricht streng genommen einer subjektiven Wahrnehmung der Person, die die Methode anwendet, auch wenn das a-priori Wissen nach bestem Wissen und Gewissen möglichst objektiv bestimmt wurde.

Mit der pseudoinversen Methode wird tatsächlich der Versuch unternommen, in der Zeit rückwärts zu rechnen. In diesem Sinne ist die pseudoinverse Methode sehr nah mit den in den letzten Jahren vielfach verwendeten Backward-Lagrange-Modellen verwandt. Im Prinzip können das in Richtung positiver Zeitachse rechnende Modell, wie es hier verwendet wird, als auch das rückwärts rechnende Modell dazu benutzt werden, eine Beziehung zwischen Messung und Emissionsrate herzustellen und die Modellmatrix  $\mathbf{G}$  zu bestimmen.

Die Bayes'sche Methode geht sowohl für die Messung, als auch für das Modell und die Emissionsraten (a-priori und a-posteriori) von statistischen Größen aus. Die Kombination aus all diesen Informationen führt zu einem Erkenntnisgewinn. Bei diesem Vorgehen muss immer berücksichtigt werden, dass die Lösung von der Formulierung des Vorwärtsproblems und der Wahl der a-priori Emissionsraten abhängt. Falls bei wiederholter Anwendung der Methode (mit jeweils neuen Messungen) immer wieder offensichtliche Unstimmigkeiten in der berechneten Emissionsrate zu beobachten sind (zum Beispiel negative Emissionsraten oder große Differenzen zwischen gemessener und modellierter Konzentration), kann davon ausgegangen werden, dass entweder in der Formulierung des Vorwärtsproblems ein Fehler zu erwarten ist oder aber in der Bestimmung der a-priori Emissionsraten. In solchen Fällen ist die Überlegung angebracht, womit die Ergebnisse verbessert werden können. Dabei ist aber darauf zu achten, dass die vorgenommenen Änderungen sinnvoll sind, da durch ein solches

Vorgehen im Prinzip eine perfekte Lösung erzielt werden kann (Da mehr Quellen vorhanden sind als Messungen). Eine Anpassung und die Erkenntnis daraus kann streng genommen erst durch eine zusätzliche Überprüfung (also mit anderen Messdaten) bestätigt oder aber verworfen werden. Dennoch kann durch ein derartiges Vorgehen die Bayes'sche Methode nicht nur dazu genutzt werden, Emissionsraten zu bestimmen. Sie leistet vielmehr einen Beitrag zum Systemverständnis des modellierten Vorwärtsproblems.

## Kapitel 3

# Inverse Methoden - Umsetzung

Die Bestimmung von Luftschadstoffemissionen mittels inverser Methoden bedingt die Verknüpfung der im vorigen Kapitel beschriebenen Theorie der inversen Methoden mit der Dispersionsmodellierung. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dazu die Software EMiL (**E**missionsratenbestimmung mittels **M**essung der Konzentration, **i**nverser Methoden und **L**agrange'scher Ausbreitungsmodellierung) entwickelt. Grundlage dieser Software ist Gleichung 2.2, jedoch unter Berücksichtigung der Hintergrundkonzentration:

$$\vec{c}_{mess} = \vec{c}_a - \vec{c}_b = \mathbf{G}\vec{q} + \epsilon \quad (3.1)$$

$\vec{c}_a$  steht für die Konzentration in der Abgasfahne und  $\vec{c}_b$  ist die Hintergrundkonzentration. Die Differenz daraus bildet die gemessene Konzentration  $\vec{c}_{mess}$ . Diese wird während der Invertierung mit der modellierten Konzentration  $\vec{c}_{mod} = \mathbf{G}\vec{q}$  verglichen, die aus der Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  und der Emissionsrate  $\vec{q}$  berechnet wird. Die Differenz zwischen modellierter und gemessener Konzentration ( $\epsilon = \vec{c}_{mess} - \mathbf{G}\vec{q}$ ) wird während der Invertierung minimiert. Alle benötigten Eingangsdaten zur Anwendung des inversen Dispersionsmodells EMiL werden in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Einerseits sind dies Konzentrationsmessung in der belasteten und unbelasteten Luft (als Hintergrundkonzentration), andererseits aber alle Inputdaten, die vom Lagrange'schen Dispersionsmodell Austal2000 (Ingenieurbüro Janicke, 2004) benötigt werden, um eine Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  zu bestimmen, sowie die Quell- und Messgeometrie der konkreten Untersuchung. Zusätzlich werden als Inputdaten auch das Vorwissen (a-priori) der Emissionsrate und die Kovarianzmatrizen des A-priori und der Messung benötigt. Diese drei Größen sind für die Invertierung mit der Bayes'schen Methode notwendig.

Das inverse Dispersionsmodell EMiL berechnet dann die Invertierung mit der pseudoinversen und der Bayes'schen Methode. Das Ergebnis besteht somit aus zwei Emissionsraten: Derjenigen, die mit der pseudoinversen Methode berechnet wurde, und derjenigen, die mit der Bayes'schen Methode ermittelt wurde. Zum anderen wird auch eine Analyse der Ergebnisse von EMiL durchgeführt. Diese besteht aus der Differenz der modellierten und gemessenen Konzentration, der a-posteriori Kovarianzmatrix und der Korrelations- und Resolutionsmatrix. Zusätzlich können sämtlichen Größen aus Austal2000 ebenfalls vorgegeben wer-

**Tabelle 3.1:** Eingangswerte des Modells EMiL, gegliedert nach deren Verwendung innerhalb der Software

Invertierung	Austal2000
Steuerdaten	
Anzahl Quellen Anzahl Messungen Koordinaten der Messungen Geometrie der Quellen A-priori Schätzung Unsicherheit der a-priori Schätzung Unsicherheit der Messung	
Messung	
Konzentrationsmessung	Windgeschwindigkeit Windrichtung Monin-Obukhov-Länge
Quelldaten für Austal2000	
Koordinaten der Quellen	Rechengebiet und Gitterdistanz Rauhigkeitslänge Koordinaten der Windmessung

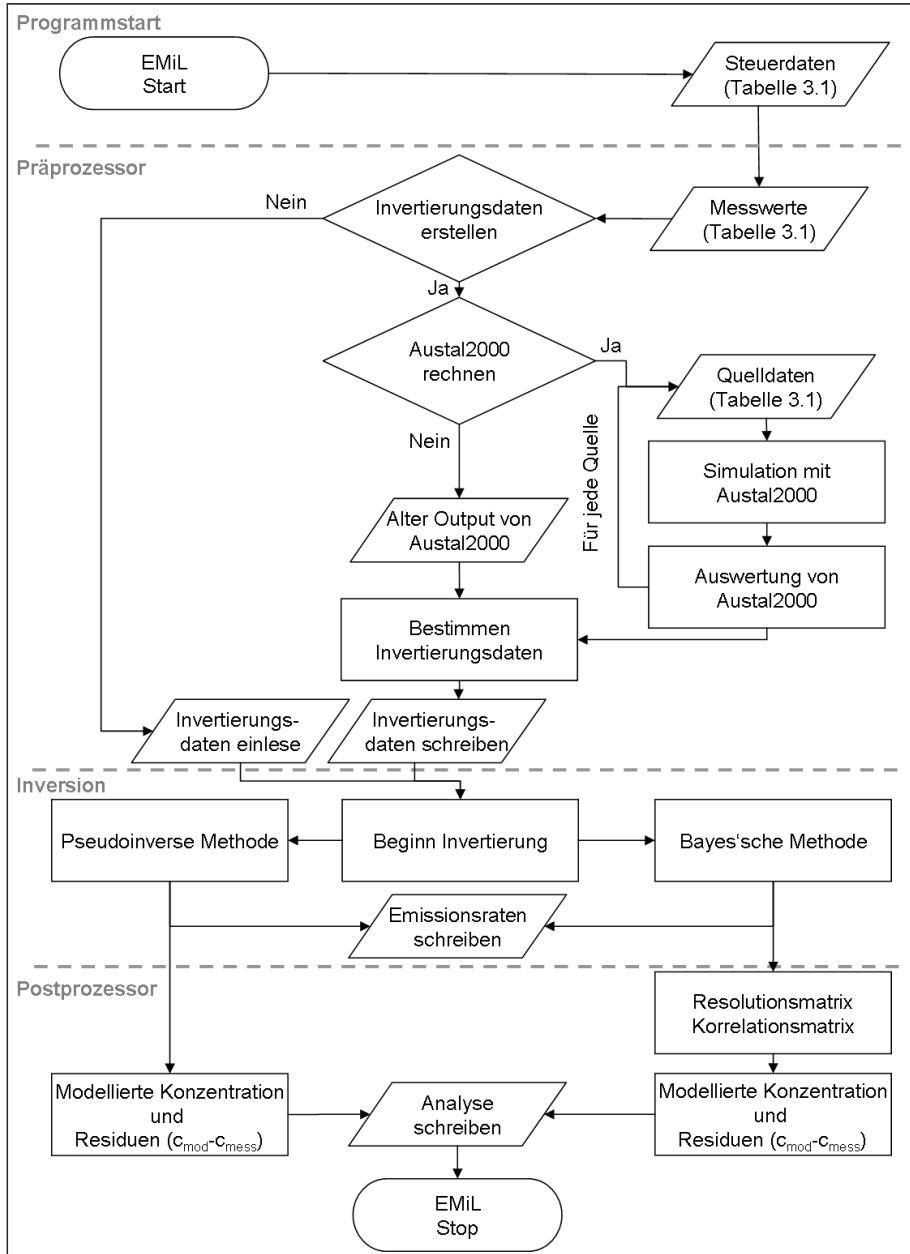
den.

In Abbildung 3.1 ist der Ablauf innerhalb des Modells EMiL dargestellt. Nach dem Einlesen der Steuerdatei werden die benötigten meteorologischen Daten (Windgeschwindigkeit, Windrichtung und Monin-Obukhov-Länge), sowie die gemessenen Konzentrationen  $\vec{c}_{mess}$  eingelesen. In einem ersten Schritt wird nun für jede definierte Quelle einmal das Dispersionsmodell Austal2000 mit einer gegebenen Emissionsrate  $\vec{q}$  gerechnet und die dazugehörige Konzentration an den verschiedenen Messorten bestimmt. Die einzelnen Elemente der Dispersionsmatrix werden dann wie folgt berechnet:

$$g_{ij} = c_{ij}/q_j \quad (3.2)$$

wobei  $c_{ij}$  die zur Quelle  $q_j$  gehörende modellierte Konzentration ist. Die Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  hat also die Dimension Anzahl Quellen  $\times$  Anzahl Messungen. Pro unbekannter Quelle muss das Vorwärtsmodell einmal gerechnet werden, was insofern von Bedeutung ist, da dieses die meiste Rechenzeit in Anspruch nimmt.

Falls die zeitaufwändige Vorwärtsmodellierung bereits durchgeführt wurde, kann alternativ auch die Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  direkt aus dem Austal2000-Output erzeugt werden. Somit kann leicht und mit geringem Zeitaufwand der Einfluss von verschiedenen a-priori Emissionsraten oder anderen gemessenen Konzentrationen mit berücksichtigt werden. Die Invertierungsdaten (Modellmatrix, Messung, a-priori Emissionsraten und Kovarianzmatrizen der Messungen und des a-priori Wissens) werden nach diesem Schritt zwischengespeichert. Hier ergibt sich erneut die Möglichkeit, als Benutzer in das inverse Dispersionsmodell



**Abbildung 3.1:** Flussdiagramm des inversen Dispersionsmodells EMiL. Die notwendigen Inputdaten (Steuerdaten, Messwerte und Quelldaten für Austral2000) sind in Tabelle 3.1 im Detail aufgelistet. Die Invertierungsdaten bestehen aus Dispersionsmatrix, a-priori Wissen und den Kovarianzmatrizen des A -priori und der Messung.

EMiL einzugreifen und die Invertierungsdaten zu ändern. Insbesondere kann hier die Kovarianzmatrix geändert werden, was es dem Benutzer ermöglicht, nicht-diagonal Elemente vorzugeben und somit eine bekannte Korrelation einzelner Quellen oder Messungen zu berücksichtigen.

Nach der Berechnung der eigentlichen Inversion werden die Daten innerhalb von EMiL zur Interpretation aufbereitet. Dies beinhaltet die Berechnung der Differenz zwischen gemessener und modellierter Konzentration, die Bestimmung der Resolutionsmatrix (Gleichung 2.25) und die Umrechnung der a-posteriori Kovarianzmatrix in eine Korrelationsmatrix zur leichteren Interpretation.

Das inverse Dispersionsmodell EMiL führt die Invertierung immer mit beiden Invertierungsmethoden durch. Wenn die beiden Methoden zu unterschiedlichen Ergebnissen führen, obliegt es jedoch der Verantwortung des Anwenders, welche Methode als besser bewertet wird. Für gut gestellte Probleme sollten beide Methoden dieselben Emissionsraten erzeugen. Ist dies nicht der Fall, kann das an einer zu restriktiven Wahl der a-priori Emissionsraten liegen. Dann muss der Anwender selber entscheiden, ob ein schlechtes A-priori gewählt wurde, oder ob doch kein gut gestelltes Problem vorliegt. Bei einem schlecht gestellten Problem, also wenn mehr Quellen zu bestimmen sind, als Messungen durchgeführt wurden, sollte auf jeden Fall nur das Resultat der Bayes'schen Methode verwendet werden. Dieses muss dann allerdings immer mit der Analyse der Ergebnisse (besonders mit der Korrelations- und Resolutionsmatrix) bewertet werden.

### 3.1 Implementierung und Besonderheiten von EMiL

Im vorigen Kapitel wurde das Flussdiagramm von EMiL vorgestellt und als zentraler Punkt die Berechnung der Dispersionsmatrix  $\mathbf{G}$  erläutert. Einige weitere Aspekte des Programms bedürfen noch weitere Erläuterungen. Bei der Implementierung von EMiL wurden im Speziellen ein Algorithmus zur Berechnung der modellierten, längengemittelten Konzentration eingebaut, der zum Vergleich der Modellkonzentration mit Offenpfadmessungen nötig ist. Des Weiteren wurde eine Möglichkeit geschaffen, bekannte Verhältnisse von verschiedenen Quellen zueinander zu berücksichtigen, was zu einer Reduktion der Anzahl unbekannter Größen führt und hier Matrixreduktion genannt wird. Ebenfalls ein Aspekt der Implementierung ist die Vorgabe der Emissionsrate. Dies ist bei der Anwendung von Bedeutung, da klar sein muss, wie die Emissionsrate zur Erzeugung der Dispersionsmatrix definiert ist. Weiter Aspekte, die bei der Anwendung von EMiL zu berücksichtigen sind, sind das Vorwärtsmodell, die Annahme, dass nur stationäre Bedingungen berücksichtigt werden können, sowie der Einfluss chemischer Umwandlung. Diese Besonderheiten der Implementierung und Anwendung von EMiL werden im folgenden kurz erläutert.

**Bestimmung der modellierten Konzentration** Das Lagrange'sche Ausbreitungsmodell Austall2000 erzeugt als Ergebnis ein Konzentrationsfeld mit einer gegebenen räumlichen Auflösung, die vor der Modellierung festgelegt werden muss. Um aus dem so berechneten Konzentrationsfeld eine mit einer Linienmessung vergleichbare Konzentration zu erhalten wird wie folgt vorgegangen: Entlang des Messpfades wird jede 0.1 Meter eine Teilkonzentration  $c_t$  ermittelt,

die aus den vier angrenzenden Gitterpunkten gewichtet ermittelt wird:

$$c_t = \frac{\sum_{i=x}^{x+1} \sum_{j=y}^{y+1} c_{ij} \Delta_{ij}}{\sum_{i=x}^{x+1} \sum_{j=y}^{y+1} \Delta_{ij}}$$

$x$  und  $y$  stehen für die Koordinaten des linken unteren Gitterpunktes in bezug auf den Ort, an dem  $c_t$  ermittelt wird.  $c_{ij}$  ist die Konzentration dieses Gitterpunktes und  $\Delta_{ij}$  ist die Distanz des Messortes zu diesem Gitterpunkt. Aufgrund dieses einfachen Vorgehens zum bestimmen der modellierten Konzentration sollte darauf geachtet werden, dass möglichst kleine Gitterdistanzen in Austal2000 gewählt werden, da sonst bei starken Gradienten die Unsicherheiten der modellierten Konzentration sehr groß werden können. Ist die Wahl kleiner Gitterdistanzen nicht möglich, sollte der Algorithmus zur Bestimmung der gemessenen Konzentration geändert werden, damit eine realistische modellierte Konzentration erhalten werden kann.

**Matrixreduktion** Unter Umständen ist es möglich, dass über zwei verschiedene Quellen so viel bekannt ist, dass diese zu einer zusammengefasst werden können. Beispielsweise kann eine Quelle doppelt so hohe Emissionsraten wie eine andere aufweisen. Falls trotzdem für jede Quelle die Vorwärtsmodellierung bereits durchgeführt wurde, besteht die Möglichkeit, diese beiden Quellen als eine zu betrachten, da deren Verhältnis bekannt ist. Damit kann die Anzahl der unbekannteren, zu schätzenden Emissionsraten reduziert werden, was bei praktischen Anwendungen von großer Bedeutung ist, da eine große Anzahl von Messorten in Normalfall schwierig zu realisieren ist.

**Vorgabe der Emissionsrate** Die Emissionsrate die berechnet wird und die als a-priori Emissionsrate gegeben werden muss, bezieht sich auf das gesamte Volumen (Fläche) der gewählten Quellgeometrie. Ist also als a-priori Emissionsrate eine Information in Abhängigkeit der Distanz vorhanden, wie beispielsweise Emissionsfaktoren für Fahrzeuge häufig in g/km vorliegen, muss dies auf die Größe der Fläche umgerechnet werden, um als A-priori verwendet zu werden.

**Vorwärtsmodellierung** Bei der Verwendung eines Vorwärtsmodells werden implizit auch dessen Stärken und Schwächen mit übernommen. Das Resultat der Invertierung kann höchstens so gut sein, wie dies das Ausbreitungsmodell zulässt. Ein wichtiger Aspekt der Lagrange'schen Ausbreitungsmodellierung ist die implizite Zeitmittelung. Wie in Flesch et al. (2004) beschrieben, sollte die zeitliche Mittelung der Messung mindestens 10 Minuten betragen, damit diese mit der modellierten Konzentration verglichen werden kann. Auch wenn die Unsicherheiten des Vorwärtsmodells mitübernommen werden, muss der Anwender von EMiL auch in Austal2000 eingreifen. Die Defintion des Rechengebietes und die Wahl der Gitterweiten zur Berechnung der Konzentrationen können durch den Benutzer definiert werden. Vorgegeben werden muss der Ort und die Geometrie der verschiedenen Quellen. Dies ist von besonderer Bedeutung, da damit die diffusen Quellen, deren Emissionsraten bestimmt werden sollen, definiert werden.

**Annahme stationärer Bedingungen** Ein weiteres Problem, was dem hier beschriebenen Modell zugrunde liegt ist die Limitierung auf pseudostationäre Probleme. Der Grund hierfür liegt in der Art, wie AUSTAL2000 angewendet wird. Das Vorwärtsmodell wird dazu benutzt, einen Zusammenhang zwischen Emissionsrate und Konzentration zu bestimmen. Dazu wird angenommen, dass die Quelle mit konstanter Rate emittiert. Diese Annahme ist gerechtfertigt, weil die Transportzeiten von der Quelle zum Messort viel kürzer sind (bis zu etwa maximal 8 Minuten) als die verwendeten Mittelungszeiten (30 - 60 Minuten). Damit werden Änderungen der Quellintensität in der gleichen Mittelungszeit der Messung wiedergespiegelt und es kann von pseudo-stationären Bedingungen ausgegangen werden. Vorsicht ist dann geboten, wenn Intensitätsänderungen der Quellen am Rande der Mittelungszeit auftreten oder wenn sich die meteorologischen Bedingungen während des Mittelungsinvals stark ändern. In diesen Fällen entspricht die Ausbreitungsmodellierung nicht mehr den wahren Gegebenheiten und es sind große Fehler zu erwarten.

**Vernachlässigung chemischer Umwandlung** Das Modell EMiL kann nur dazu benutzt werden, Emissionen von Stoffen ohne chemische Umwandlung zu betrachten. Dies gilt allgemein natürlich für kaum einen Spurenstoff der Atmosphäre. Entscheidend ist vielmehr, wie schnell die Umwandlung stattfindet. In dieser Arbeit werden Emissionen der Spurenstoffe  $\text{NO}_x$  und CO betrachtet. Die nun folgende Diskussion der chemischen Abbaureaktion für  $\text{NO}_x$  und deren zeitlichen Skalen beruht auf der Arbeit von Atkinson (2000), aus der alle hier verwendeten Abbauraten und typischen Konzentration entnommen sind. Die bekannteste Reaktion von NO und  $\text{NO}_2$  in der Atmosphäre sind diejenigen mit  $\text{O}_3$ . Diese drei Spezies bilden nach kurzer Zeit einen photostationären Zustand und die Konzentrationen ändern sich nicht mehr. Erst durch die Beteiligung anderer chemischer Stoffe kann dieses Gleichgewicht verändert werden. Die Summe von NO und  $\text{NO}_2$ , also  $\text{NO}_x$ , wird dabei aber nicht verändert. Dies ist der Grund, weshalb trotz der schnellen Ozonchemie  $\text{NO}_x$  in einer ersten Näherung als passiver Tracer angesehen werden kann. Aber auch  $\text{NO}_x$  wird in der Atmosphäre abgebaut. Der wichtigste Abbauprozess am Tag ist die Reaktion mit Hydroxyl-Radikalen (OH), die zur Bildung von Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ) führt. Mit einer Abbaurate von  $1.0 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ Molekülen}^{-1} \text{ s}^{-1}$  und einer maximalen OH-Konzentration von  $10 \cdot 10^6 \text{ Molekülen cm}^{-3}$  werden 10 % des ursprünglichen  $\text{NO}_x$  innerhalb von 17 Minuten abgebaut. Eine Untersuchung von Nunnermacker et al. (2000) ergibt in belasteter Luft eine aggregierte Abbaurate für  $\text{NO}_x$  von  $0.5 \text{ Stunden}^{-1}$  unter Berücksichtigung verschiedener Abbauprozesse. Mit diesem Wert werden 10 %  $\text{NO}_x$  innerhalb von 13 Minuten abgebaut. Bei typischen Windgeschwindigkeiten von 2 m/s wird die Luft in ungefähr 8 Minuten über 1000 Meter transportiert, was der maximalen Transportzeit der Anwendungsbeispiele dieser Arbeit entspricht. Betrachtet man also solche Situationen für Stickoxide, kann die Chemie vernachlässigt werden und die eingegangene Unsicherheit bleibt kleiner als 10 %. Der Abbaurate von CO im Vergleich zu  $\text{NO}_x$  ist um zwei Größenordnungen geringer (Seinfeld, 1986), weswegen CO unter oben genannten Bedingungen während der Invertierung ebenfalls als nicht-reaktiver Tracer betrachtet werden kann.

Zwei Aspekte, die ebenfalls mit dem Modell EMiL berücksichtigt werden



können, sind die Wahl einer Kovarianzmatrix, mit der auch bekannte Korrelationen verschiedener Quellen berücksichtigt werden können und die Berechnung der Hintergrundkonzentration während der Invertierung anstelle einer Vorgabe durch Messungen. Diese beiden Aspekte wurden in dieser Arbeit nicht angewendet, aber die Möglichkeit dies zu tun ist in EMiL vorhanden, weswegen kurz erläutert werden soll, wie dies durchzuführen ist.

**Nicht-diagonale Kovarianzmatrix** Im Prinzip kann mit der Bayes'schen Methode zur Invertierung nicht nur ein a-priori Wissen angegeben werden, sondern es können auch Zusammenhänge zwischen verschiedenen Quellen mitberücksichtigt werden. Dies kann über die Wahl von nicht-diagonal-Elementen in der Kovarianzmatrix der a-priori Emissionsraten erfolgen. Angenommen zwei Quellen zeigen eine ähnliche Emissionscharakteristik, die sich durch die Anzahl der sich in der Quelle befindenden Emittenten skalieren lässt. Quelle 1 sei also von  $N_1$ , Quelle 2 von  $N_2$  Emittenten besetzt. Daraus lassen sich die a-priori Quellstärken  $q_1 = N_1 * q_\alpha$  und  $q_2 = N_2 * q_\beta$  generieren. Wenn des weiteren gilt, dass  $r(q_\alpha, q_\beta) = r_{\alpha\beta}$  sei, gilt folgender Zusammenhang für den Korrelationskoeffizienten von  $q_1$  und  $q_2$ :

$$r(q_1, q_2) = \frac{Cov(q_1, q_2)}{\sigma_{q_1} \sigma_{q_2}} = \frac{Cov(N_1 q_\alpha, N_2 q_\beta)}{\sqrt{N_1} \sigma_{q_\alpha} \sqrt{N_2} \sigma_{q_\beta}} = \frac{N_1 N_2 Cov(q_\alpha, q_\beta)}{\sqrt{N_1 N_2} \sigma_{q_\alpha} \sigma_{q_\beta}} = \sqrt{N_1 N_2} r_{\alpha\beta} \quad (3.3)$$

Wenn des weiteren gilt, dass die Standardabweichung von  $q_\alpha$  und  $q_\beta$  gleich sind, also  $\sigma_{q_\alpha} = \sigma_{q_\beta} = \sigma_{qb}$ , dann ergibt sich für die Kovarianz:

$$Cov(q_1, q_2) = N_1 N_2 \sigma_{qb}^2 r_{\alpha\beta} \quad (3.4)$$

Damit kann also über eine Abschätzung der Korrelation zweier Quellen eine Kovarianzmatrix des a-priori erzeugt werden, die nicht nur Diagonalelemente enthält.

**Berechnung Hintergrundkonzentration** Es ist prinzipiell auch möglich, die Hintergrundkonzentration mitzuschätzen, indem man diese als zusätzliche Unbekannte betrachtet. Gleichung 2.2 kann dann geschrieben werden als:

$$\begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \\ \vdots \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} g_{11} & g_{12} & \dots & 1 \\ g_{21} & g_{22} & \dots & 1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} q_1 \\ q_2 \\ \vdots \\ c_b \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

Die Hintergrundkonzentration  $c_b$  wird also zu jeder Gleichung hinzuaddiert und somit während der Invertierung ebenfalls geschätzt.

## 3.2 Validierung - Numerisch erzeugte Beispiele

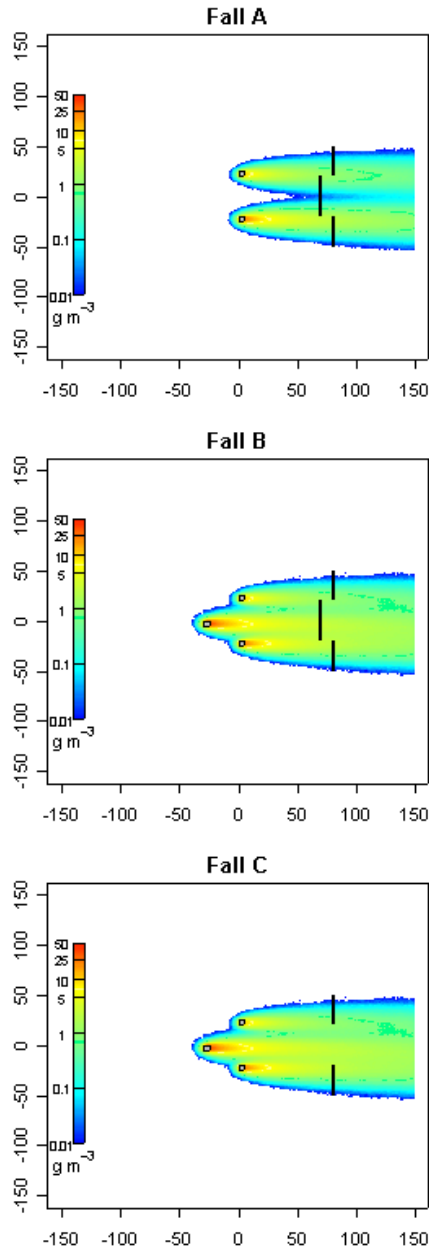
Das eben beschriebene Modell kann einerseits mit Situationen mit mehreren Messungen als Quellen, aber auch mit mehr Quellen als Messungen umgehen. Um zu zeigen, dass die Berechnung tatsächlich stimmt, wurde eine erste Validierung des Modells EMiL durchgeführt. Dazu wurden drei Beispiele erzeugt

(Abbildung 3.2). Einmal werden die Konzentrationen an den Messstandorten mit zwei Quellen und zweimal mit drei Quellen verschiedener Stärke ermittelt. Mit derselben Quellkonfiguration und denselben Messstandorten wird dann das Modell EMiL gestartet. Im Beispiel A mit zwei Quellen und drei Messungen beträgt eine Emissionsrate 0.5 g/s und die andere 1 g/s. Daraus ergeben sich Konzentrationen von 0.38, 0.96 und 0.56  $g\ m^{-3}$ . Um die inverse Methode zu testen wurden nun auf dieses Messresultat ein zufälliger Fehler von 10 % (Standardabweichung) addiert. Mit der pseudoinversen Methode und mit der Bayes'schen Methode wird so eine Emissionsrate von  $0.49 \pm 0.04$  g/s und  $1.0 \pm 0.07$  g/s ermittelt. Dies gilt, wenn als a-priori Emissionsraten für die Methode nach Bayes die wahre Emissionsrate angenommen wird. Dasselbe Ergebnis erhält man aber auch, wenn als Emissionsrate  $0.7 \pm 0.1$  g/s oder  $2 \pm 0.5$  g/s verwendet wird. Dies zeigt, dass bei überbestimmten Systemen eine Anpassung auch eines schlechten a-priori Wissens möglich ist.

Im Beispiel B wird mit den Quellstärken 0.5, 1.0 und 1.5 g/s die Konzentrationsverteilung berechnet. Mit dem selben Vorgehen wie oben wird dann die Invertierung vorgenommen. Dies ergibt mit der pseudoinversen Methode Emissionsraten von  $0.49 \pm 0.05$ ,  $0.98 \pm 0.1$  und  $1.48 \pm 0.24$  g/s. Die Invertierung führt also auch bei einem quadratischen System zu den richtigen Ergebnissen, auch wenn die Unsicherheiten etwas größer werden. Die Bayes'sche Methode erzeugt die gleichen Ergebnisse, wenn mit einem a-priori Wissen von  $0.5 \pm 0.2$ ,  $1.0 \pm 0.3$  und  $1.5 \pm 0.4$  g/s gerechnet wird.

Für das Beispiel C, ein unterbestimmtes System mit drei Quellen und zwei Messungen, wurden die Konzentrationen mit den Quellstärken 0.5, 1.0 und 1.5 g/s berechnet. Die Ergebnisse der Invertierungen ergeben nicht mehr wie bisher für die pseudoinverse und Bayes'sche Methode dieselben Ergebnisse. Bei einem unterbestimmten System treten bei beiden Methoden Unterschiede auf. Die pseudoinverse Methode ergibt Emissionsstärken von  $0.51 \pm 0.05$ ,  $1.03 \pm 0.11$  und  $0.04 \pm 0.004$  g/s. Die ersten beiden Emissionsraten werden also noch gut bestimmt, nicht mehr aber die dritte. Mit der Bayes'schen Methode wurden die Emissionsraten zu  $0.50 \pm 0.05$ ,  $0.97 \pm 0.11$  und  $1.50 \pm 0.004$  g/s. Diese Ergebnisse wurden mit einem a-priori Emissionsraten von  $0.5 \pm 0.1$ ,  $1.0 \pm 0.5$  und  $1.5 \pm 0.1$  g/s erzeugt, also sehr gutem a-priori Wissen. Ändert man das a-priori der ersten Quelle auf  $1.0 \pm 0.5$  g/s, also mit genug großer Unsicherheit, innerhalb derer der wahre Wert liegt, wird die Anpassung immer noch gut.

Diese Versuche zeigen, dass bei genau bekannten Bedingungen und unter Vernachlässigung von Unsicherheiten der Ausbreitungsmodellierung, das inverse Dispersionsmodell EMiL in der Lage ist, die richtigen Emissionsraten zu bestimmen. Im nächsten Kapitel wird nun der Einfluss verschiedener Annahmen zur Quellgeometrie untersucht.



**Abbildung 3.2:** Die Versuche A (oben), B (mitte) und C (unten) zur Validierung des inversen Dispersionsmodells EMiL. Zu sehen ist jeweils im Modellgebiet ( $x$ - und  $y$ -Achse in Metern) die Lage der Quellen und Messungen und die Konzentrationsverteilung, wie sie durch die vorgegebenen Emissionsraten entsteht.

## Kapitel 4

# Synthetische Versuche

Das inverse Dispersionsmodell EMiL ist in der Lage gleichzeitig die Emissionsraten mehrerer Quellen zu bestimmen. Es stellt sich dabei die Frage, wie nahe sich zwei Quellen kommen können, bis sich diese noch getrennt bestimmen lassen. Des Weiteren wird das Modell zur Bestimmung von Emissionsraten diffuser und schlecht lokalisierbarer Quellen eingesetzt. Eine große Unsicherheit bei der Bestimmung diffuser Quelle liegt in der Annahme homogener Emissionen im ganzen Quellgebiet. Genau diese beiden Fragestellungen (Trennbarkeit mehrere Quellen und Annahme von Homogenität) sollen in diesem Kapitel untersucht werden. Dazu werden synthetische Versuche durchgeführt: Die "realen" Konzentrationen werden nicht gemessen, sondern modelliert. Mit diesen Konzentrationen wird dann das inverse Dispersionsmodell EMiL angetrieben. Dies erlaubt eine systematische Untersuchung verschiedener Fragestellungen, ohne die Unsicherheiten der Vorwärtsmodellierung berücksichtigen zu müssen.

### 4.1 Vorgehensweise

Um die oben beschriebenen Effekte zu quantifizieren, wird in einem ersten Schritt mit einer detaillierten Quellgeometrie und vorgegebenen Emissionsraten eine Ausbreitungsrechnung mit Austal2000 durchgeführt. Mit den gleichen Verfahren wie bei der Invertierung werden dann an den Orten der Messungen Konzentrationen berechnet. Diese dienen als synthetisch "gemessene" Konzentrationen, auf deren Basis die Invertierung durchgeführt wird. Einerseits kann hier nun mit derselben Quellgeometrie gerechnet werden, um zu untersuchen, ob eine Invertierung prinzipiell Erfolg verspricht, andererseits kann die Invertierung aber auch gezielt mit veränderter Quellgeometrie durchgeführt werden. Letzteres entspricht insofern realen Verhältnissen, als dass die genaue Quellgeometrie diffuser Quellen nur näherungsweise bestimmt werden kann und nicht genau bekannt ist.

Die Abgasfahnen zweier Quellen verbreitern sich mit zunehmender Transportzeit. Dies führt dazu, dass die zwei Abgasfahnen ab einem bestimmten Punkt beginnen, sich zu überlagern. Schliesslich ist nicht mehr erkennbar, dass die Abgasfahnen von zwei Quellen stammen. Es scheint vielmehr so, dass nur eine Quelle existiert. In der Anwendung inverser Dispersionsmodellierung zur gleichzeitigen Bestimmung mehrerer Quellen stellt sich die Frage, bis zu welcher

Distanz abwind der Quelle Messungen vorgenommen werden können, damit die beiden Quellen noch getrennt bestimmbar sind. Weiter entfernt von der Quelle kann ohne weitere Information nur die Summe der beiden Emissionen bestimmt werden.

Eine weitere Einschränkung bei der Anwendung inverser Dispersionsmodellierung entsteht dadurch, dass die Quellgeometrie innerhalb einer Flächenquelle nicht genau bekannt ist. Häufig wird angenommen, dass auf der ganzen Fläche homogene Emissionen stattfinden. Die Auswirkung dieser Annahme kann bei sehr quellnahen Messungen das Ergebnis der Invertierung verfälschen. Je weiter entfernt die Messung von der Quelle durchgeführt wird, desto unbedeutender werden die Annahmen bezüglich der Quellgeometrie. Die Frage stellt sich also, wie weit abwind einer Quelle gemessen werden sollte, damit das Ergebnis nicht mehr sensitiv auf Annahmen zur Quellgeometrie reagiert. In diesem Sinne kann so die untere Grenze der Skala bestimmt werden, auf welcher Untersuchungen mit inverser Dispersionsmodellierung durchgeführt werden können.

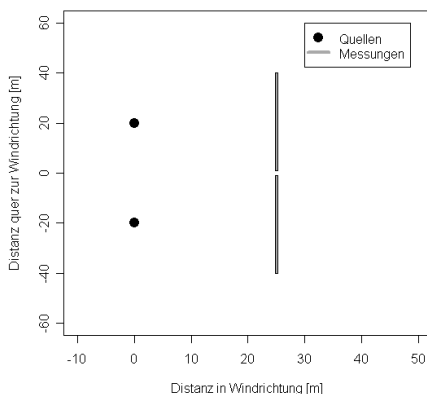
Beide oben erläuterten Fragestellung zeichnen sich dadurch aus, dass die zu bestimmende Größe die Distanz der Messung zur Quelle ist. Deshalb werden in den synthetischen Versuchen die Konzentrationen in verschiedenen Distanzen abwind der Quelle bestimmt und die daraus resultierenden Emissionsraten beurteilt. Mit einem derartige Vorgehen kann die Qualität der Invertierung in Abhängigkeit der Distanz Quelle - Messung getestet werden. Hierbei spielen allfällige Unsicherheiten der Vorwärtsmodellierung keine Rolle, da diese sowohl zur Erzeugung der synthetischen Konzentrationen als auch zur Invertierung die gleichen sind.

## 4.2 Trennung von zwei Quellen mit zwei Messungen

In dieser Arbeit geht es unter anderem darum, mit mehreren Messungen mehrere Quellstärken zu bestimmen. Die Abgasfahnen von zwei Quellen sind nahe der Quellen gut unterscheidbar, während sie sich weiter entfernt überlagern. Ab einer gewissen Distanz zur Quelle überlagern sich beide Abgasfahnen derart, dass eine getrennte Bestimmung der einzelnen Emissionsraten nicht mehr möglich ist. Lediglich die korrekte Bestimmung der Summe der beiden Emissionen ist möglich. Mittels synthetischer Versuche soll nun geklärt werden, ab welcher Distanz der Messung zu den Quellen eine Trennung nicht mehr möglich ist. Entscheidende Einflussfaktoren bei dieser Fragestellung sind der Abstand der verschiedenen Quellen zueinander, die Distanz der Messungen zu den Quellen, aber auch die Länge der Offenpfadmessung.

Um diese Frage zu untersuchen, wurden zwei Punktquellen quer zur Windrichtung angenommen. Abwind gelegen wurden ebenfalls quer zur Windrichtung zwei Messtrassen definiert (Abbildung 4.1). Die Quelldistanz zueinander wurde zwischen 10 und 60 Metern, die Quellhöhe zwischen 0 und 7 Meter und die Distanz der Messung zur Quellen zwischen 25 und 975 Metern variiert. Dabei waren die beiden Messungen immer gleich weit von der Quelle entfernt angeordnet.

Die angenommene Quellstärke war für eine Quelle 0.4 g/s, für die andere 1 g/s. Zur Untersuchung wurde mit einer Windgeschwindigkeit von 4 m/s und der Monin-Obukhov-Länge von -24, -70 bzw. 59 Metern gerechnet. Dies entspricht



**Abbildung 4.1:** Quellengeometrie und Messkonfiguration der synthetischen Versuche zur Unterscheidung mehrerer Quellen. Die Distanz der Quellen zueinander und die Distanz der Messungen zu den Quellen wurden während der Versuche geändert.

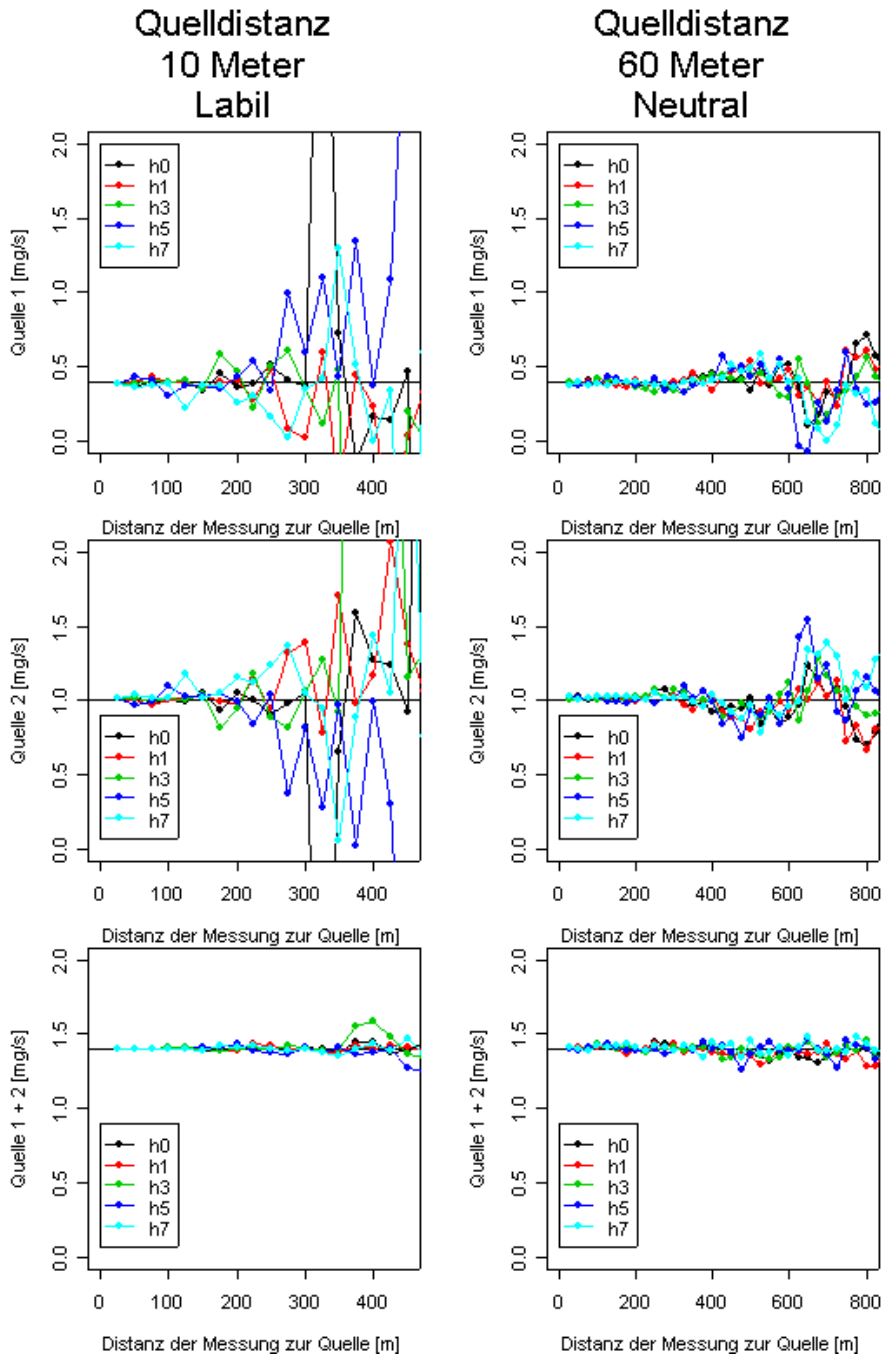
gemäß TA - Luft (2002) bei einer verwendeten Rauigkeitslänge von 0.1 Metern einer labilen, indifferenten bzw. stabilen Atmosphäre.

#### 4.2.1 Versuchsaufbau

Als Messungen wurden Offenpfadmessungen angenommen, die eine gemittelte Konzentration entlang einer Messstrecke normal zur Windrichtung als Messergebnis liefern. Die Versuche wurden mit einer Trassenlänge von 40 Metern durchgeführt. Ab einer bestimmten Entfernung zur Quelle reichen diese 40 Meter nicht mehr aus, einen Schnitt durch die ganze Abgasfahne zu machen. Je weiter entfernt die Messung von der Quelle stattfindet, umso kleiner wird der Anteil der Abgasfahne, der mit der Trasse abgedeckt wird. Um einen möglichen Einfluss der Trassenlänge zu erkennen wurden einige Versuche auch mit Trassenlängen von 20 und 80 Metern durchgeführt. Im Allgemeinen beziehen sich die Ergebnisse immer auf Trassenlängen von 40 Metern.

#### 4.2.2 Resultate

Wie erwartet hängt die Möglichkeit, mehrere Emissionsraten gleichzeitig zu bestimmen, von der Distanz der Messung zur Quelle ab. Die Charakteristik der Ergebnisse zeigt, dass mit Messungen nahe der Quellen eine getrennte Bestimmung der beiden Emissionsraten möglich ist, während weit entfernt von der Quelle ein derartiges Trennung nicht mehr gelingt, aber die Summe der beiden Quellen immer noch korrekt bestimmt werden kann. Es ist also nicht generell ein Versagen der inversen Methode zu beobachten, sondern lediglich eine derartige Überlagerung der Abgasfahnen, dass diese als Abgasfahne nur einer Quelle erkannt wird. Ebenfalls beobachtet werden kann dass die Quellhöhe (zwischen 0 und 7 Meter) keinen erkennbaren Einfluss auf die Distanz der Messung zur Quelle hat, bis zu welcher eine getrennte Bestimmung möglich ist.



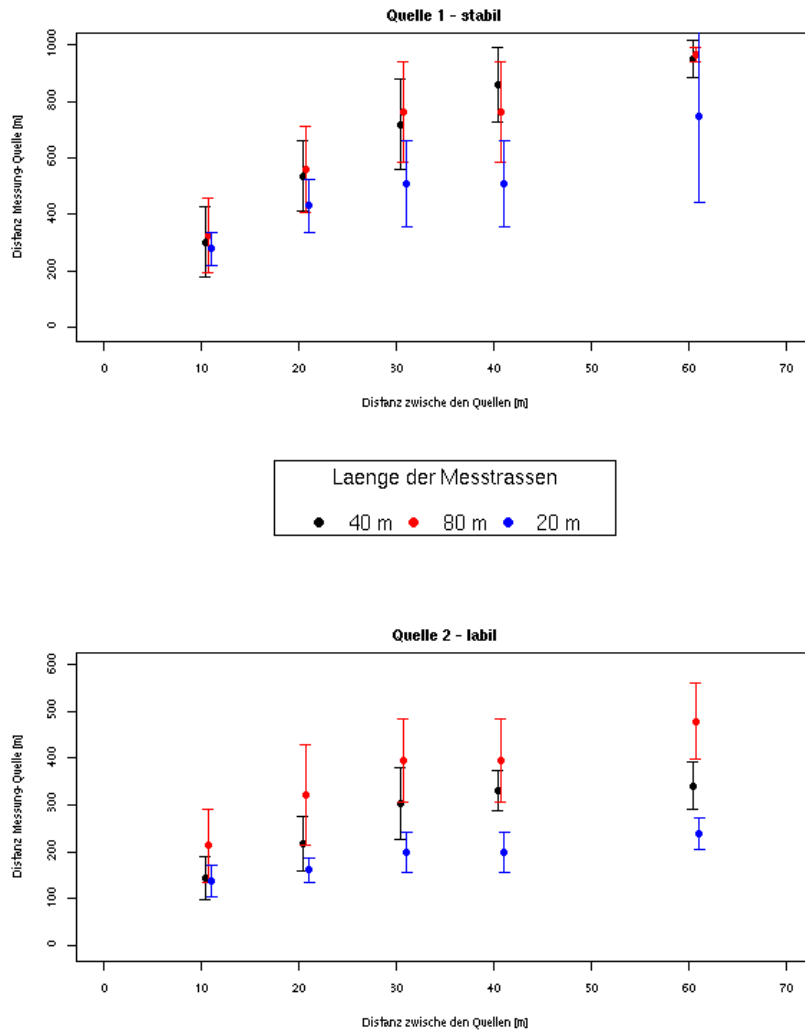
**Abbildung 4.2:** Ergebnisse der Quelltermberechnung für eine Quelldistanz von 10 Metern bei labiler Atmosphäre und von 60 Metern bei neutraler Atmosphäre. Dargestellt sind die Ergebnisse beider Quellen mit einer Sollquellstärke von 0.4 bzw. 1 mg/s und deren Summe für verschiedene Quellhöhen (0, 1, 3, 5, 7 Meter).

Typische Ergebnisse für den Fall einer Quelldistanz von 10 Metern und 60 Metern sind in Abbildung 4.2 dargestellt. Unter labilen Bedingungen können zwei Quellen, die 10 Meter voneinander entfernt sind, bis zu einer Distanz von etwa 200 Meter getrennt bestimmt werden. Danach ist nur noch eine Bestimmung der Summe der beiden Quellen möglich. Für eine Entfernung der beiden Quellen zueinander von 60 Metern, beträgt die Distanz bis zu welcher die getrennt Bestimmung möglich ist, etwa 400 Meter. Quellentfernungen zwischen diesen beiden Werten zeigen dementsprechen eine Grenze zwischen 200 und 400 Meter. Unter neutralen Bedingungen ist die Ausbreitung der Abgasfahne langsamer, weswegen eine Trennung der beiden Quellen bis zu größeren Distanzen möglich ist. Die beiden extremen Werte betragen etwa 400 Meter für eine Quellentfernung von 10 Metern bzw. etwa 600 Meter für eine Quellentfernung von 60 Metern. Unter stabilen Bedingungen dauert es noch länger, bis sich die Abgasfahnen vereinen. Die Abgasfahnen der 10 Meter voneinander entfernten Quellen erreichen nach ungefähr 600 Metern den Punkt, ab welchem eine getrennte Bestimmung der Emissionsraten nicht mehr möglich ist. Für die Quellen, die 60 Meter auseinander liegen, lässt sich dies nicht mehr derart klar sagen. Leichte Oszillation beginnen bereits ab 800 Meter, aber eine getrennte Bestimmung scheint bis zu einer Distanz von über 1000 Meter (Grenze des untersuchten Gebietes) möglich.

Die bisherigen Analysen beruhen auf einer subjektiven Analyse der Bilder. Eine objektive Analyse ist wegen der statistischen Natur der Vorwärtsmodellierung nur im statistischen Sinne möglich. Aus diesem Grund wurde die oben gezeigte Analyse 16 mal mit einem unterschiedlichen Startwert des Zufallszahlengenerators wiederholt. Von diesen Werten wurde dann jeweils die Distanz der Messung zur Quelle bestimmt, bei welcher der Fehler der Emissionsratenbestimmung zum ersten Mal größer als 30 % wurde. Betrachtet man diese Werte, zeigt sich im Grunde die gleichen Verhaltensweisen wie schon vorhin. Die Distanz der Messung zur Quelle, bis zu welcher eine Bestimmung der Emissionsraten möglich ist, wird größer, wenn die Entfernung der Quellen untereinander zunimmt. Der kleinste Wert findet sich unter labilen Bedingungen bei einer Quelldistanz von 10 Metern. Für Quelle 1 beträgt diese minimale Distanz 50 Meter (Quelle 2: 75 Meter), der Mittelwert der 16 getesteten Versuche beträgt 95 Meter (Quelle 2: 144 Meter) und das Maximum 225 Meter (Quelle 2: 275 Meter). Unter neutralen Bedingungen ist eine Bestimmung bis zu einer Distanz der Messung zur Quelle von 100 Metern (Mittelwert: 186 Meter; Maximum: 425 Meter) möglich. Unter stabilen Bedingungen betragen die Werte: 200, 302, 975 Meter (Minimum, Mittelwert, Maximum). Es ist also ersichtlich, dass die Werte sehr stark variieren können. Das Kriterium, wann das erste Mal ein gewisser Schwellenwert (30 % - Fehler) zum ersten Mal überschritten wird, ist nur bedingt in der Lage, ein genaues Qualitätsmass für die inverse Dispersionsmodellierung zu geben, da nach dem erstmaligen Überschreiten des Schwellenwertes die Genauigkeit der Emissionsberechnung wieder besser werden kann und somit der Schwellenwert wieder unterschritten wird. Dennoch kann dieses Kriterium ein gutes Instrument zur Beurteilung der Simulationsergebnisse darstellen.

In Abbildung 4.3 sind der Mittelwert und die Standardabweichung der oben beschriebenen Werte für zwei Beispiele dargestellt. Es zeigt sich mit zunehmender Entfernung der Quellen zueinander erst eine Zunahme der untersuchten Distanz der Messung zur Quelle, dann flacht die Kurve ab. Eine mögliche Erklärung dafür liegt in der Natur der längenmittelnden Messverfahren. Na-





**Abbildung 4.3:** Verhalten der Distanz der Messung zur Quelle in Abhängigkeit der Entfernung der Quelle zueinander ( $x$ -Achse). Auf der  $y$ -Achse aufgetragen ist die Distanz der Messung zur Quelle, ab welcher die inverse Emissionsratenberechnung zum ersten Mal einen Fehler größer als 30 % gegenüber dem Sollwert annimmt. Gezeigt ist der Mittelwert mit Standardabweichung der 16 verschiedenen Versuche mit verschiedenem Startwert des Zufallzahlengenerators. Die Resultate der verschiedenen Trassenlängen der Messung sind zur besseren Unterscheidung leicht gegeneinander verschoben. Sie beziehen sich auf Quelledistanzen von 10, 20, 30, 40 und 60 Meter.

he der Quelle ist mit einer längenmittelnden Messung ein Querschnitt durch die Abgasfahne möglich. Weiter abwind hat sich die Fahne verbreitert und es kann auch mit längenmittelnden Verfahren nur noch ein Teil der Fahne erfasst werden. Je weiter die Messung von der Quelle entfernt ist, desto eher gleicht die längenmittelnde Messung einer Punktmessung. Dies ist insofern von Relevanz, als dass ab dem Ort, an dem sich die Abgasfahnen überschneiden, eine längenmittelnde Messung mit größerer Wahrscheinlichkeit, als bei Punktmessungen, Teile der Abgasfahne erfassen, die noch nicht von der anderen Quelle beeinflusst sind. Somit wird mit einer derartigen Messung auch bis zu einer weiteren Distanz die Bestimmung beider Quellen möglich. Dies hängt des weiteren mit der Entfernung der Quellen zueinander ab, da der Punkt ab dem sich die Abgasfahnen überschneiden mit zunehmender Entfernung der Quellen weiter abwind verschoben wird und somit bereits eine stärkere Verbreiterung der Abgasfahne auftritt, bevor sich die beiden Abgasfahnen überschneiden. Dieses Verhalten zeigt sich ebenfalls in Abbildung 4.3. Zusätzlich zur Messlänge von 40 Metern wurden auch Messlängen von 20 und 80 Meter verwendet. Der oben beschriebene Effekt ist klar ersichtlich. Längere Messtrassen führen dazu, dass die getrennte Bestimmung beider Quellen bis zu einer größeren Distanz der Quellen zur Messung möglich ist. Ebenfalls ersichtlich ist, dass unter stabilen Bedingungen die Ergebnisse mit 40 und 80 Metern sehr ähnlich sind. Dies kann mit der langsamen Verbreiterung der Abgasfahnen unter stabilen Bedingungen erklärt werden, die dazu führt, dass auch mit 40 Metern Trassenlänge bis zu Distanzen weit abwind der Quelle ein wesentlicher Teil der Abgasfahne von der Messung erfasst wird. Unter labilen Bedingungen verbreitert sich die Abgasfahne bedeutend schneller und demzufolge treten Effekte, die mit der Messlänge zusammenhängen, schon bei viel kleineren Distanzen der Quellen zueinander auf. Es zeigt sich also, dass verschiedene Einflussfaktoren die getrennte Bestimmung von mehreren Quellen beeinflussen. Dies ist neben der Stabilität der Atmosphäre, der Entfernung der Quellen zueinander und der Entfernung der Messung zur Quelle auch die Länge der Messtrasse. Eine genaue Bestimmung all dieser Einflussgrößen würde den Rahmen dieser Arbeit übersteigen. Im Rahmen dieser Arbeit sollte lediglich eine Abschätzung getroffen werden, bis zu welcher Distanz zur Quelle, unter bestimmten Bedingungen, eine getrennte Bestimmung mehrerer Quellen möglich ist.

Der für diese Arbeit wesentliche Aspekt war die Bestimmung einer oberen Grenze der Entfernung der Messung zur Quelle, bis zu welcher eine gleichzeitige Bestimmung mehrerer Quellen möglich ist. Selbst bei kleinen Distanzen der Quellen zueinander liegt diese obere Grenze bei 100 Metern und sie nimmt bei weiter auseinander liegenden Quellen noch zu. Ebenfalls gezeigt wurde, dass die Summe nach wie vor bestimmt werden kann. Damit gilt diese obere Grenze nur für Anwendungen der pseudoinversen Methode. Für die Anwendung Bayes'scher Methoden wird eine getrennte Bestimmung solange möglich sein, solange das a-priori Wissen zumindest einer der beiden Quellen hinreichend genau der realen Emissionsrate entspricht.

### 4.3 Einfluss der Quellparametrisierung auf das Ergebnis

Diffuse Flächenquellen bestehen aus einer Vielzahl von Einzelquellen. Generell kann zwar gut ermittelt werden, auf welcher Fläche sich diese Einzelquellen befinden, der genau Ort innerhalb der Flächen und die Intensität jeder Einzelquelle sind aber nur schwer bestimmbar. Üblicherweise wird eine derartige Flächenquelle parametrisiert, indem angenommen wird, dass auf der bekannten Fläche überall gleich starke Emissionen stattfinden. Man geht also von einer homogenen diffusen Flächenquelle aus. Inwiefern diese Vereinfachung der realen Quellgeometrie bei der Anwendung inverser Dispersionsmodellierung zu Fehlern führen kann, war die Fragestellung des nun folgenden Versuchs. Im Gegensatz zum vorherigen Versuch werden hier die Quellen nicht mehr quer zum Wind platziert. Vielmehr liegen die Quellen in Windrichtung hintereinander mit einer bestimmten Entfernung zueinander. Die Flächenquelle zur Berechnung des inversen Dispersionsmodells umfasste diese beiden "realen" Quellen. Damit kann der Effekt ungenauer Parametrisierung untersucht werden, der bei quer zum Wind liegenden Quellen und längenmittelnden Messverfahren nicht derart bedeutend ist, da die quer zum Wind auftretende Heterogenität durch die längenmittelnden Messungen unbedeutend wird.

#### 4.3.1 Versuchsaufbau

Der prinzipielle Versuchsaufbau hat sich immer gleich dargestellt. Zwei Punktquellen, die in Windrichtung hintereinander angeordnet sind, wurden zur Erzeugung der synthetischen Konzentration verwendet. Zur Invertierung wurde eine Flächenquelle definiert, die diese beiden Punkte umschließt; die beiden synthetischen Quellen also parametrisiert. Auf der Flächenquelle wurde homogene Emission vorgegeben. Die Distanz der Punktquellen zueinander, sowie die Ausdehnung der Flächenquelle und deren relative Lage bezüglich Punktquellen wurden während der Versuche variiert (4.4).

In einem ersten Versuch soll der Einfluss des Zufallzahlengenerators von AUSTAL2000 und der Windgeschwindigkeit untersucht werden. Dazu wurden die Versuche jeweils mit verschiedenen Startwerten des Zufallzahlengenerators durchgeführt und die Windgeschwindigkeit wurde zwischen 1 und 8 m/s variiert. Die Quellkonfiguration wurde so gewählt, dass die Punktquellen an den Rand der Flächenquelle zu liegen kommen. Diese Versuche sind als Vorbereitungsarbeiten zu verstehen, da damit die Genauigkeit der Methode bestimmt werden kann. In Abbildung 4.4 sind die Quellgeometrien der darauf aufbauenden Versuche dargestellt.

In Versuch A und B wird untersucht, welchen Einfluss die Ausdehnung der Quelle hat, und wie sich assymetrisch angeordnete synthetische Quellen auf das Ergebnis der Invertierung auswirken. Die Quellgeometrie wurde so gewählt, dass eine Punktquelle am Rand der Flächenquelle liegt, während die andere in der Mitte derselben angeordnet ist. Im Versuch A befindet sich die am Rand gelegene Quelle am aufwind gelegenen Rand, während diese im Fall B am abwind gelegenen Rand angeordnet ist. In diesem Sinne liegt der Schwerpunkt der synthetischen Quelle im Versuch A aufwind der inversen Quelle, während dieser im Versuch B abwind liegt.

Mit Versuch C wird der Einfluss der Stärke der Assymetrie untersucht. Die Ausdehnung der Quelle bleibt jeweils unverändert. Versuch C1 hat analog zu Versuch A eine Punktquelle am Aufwind gelegenen Rand der Flächenquelle, während die andere Punktquelle innerhalb der Flächenquelle verschiedene Positionen einnimmt. Versuch C2 besitzt analog zu Versuch B eine Punktquelle am Abwind gelegenen Rand der Flächenquelle. Damit soll der Effekt unterschiedlich guter Parametrisierungen getestet werden.

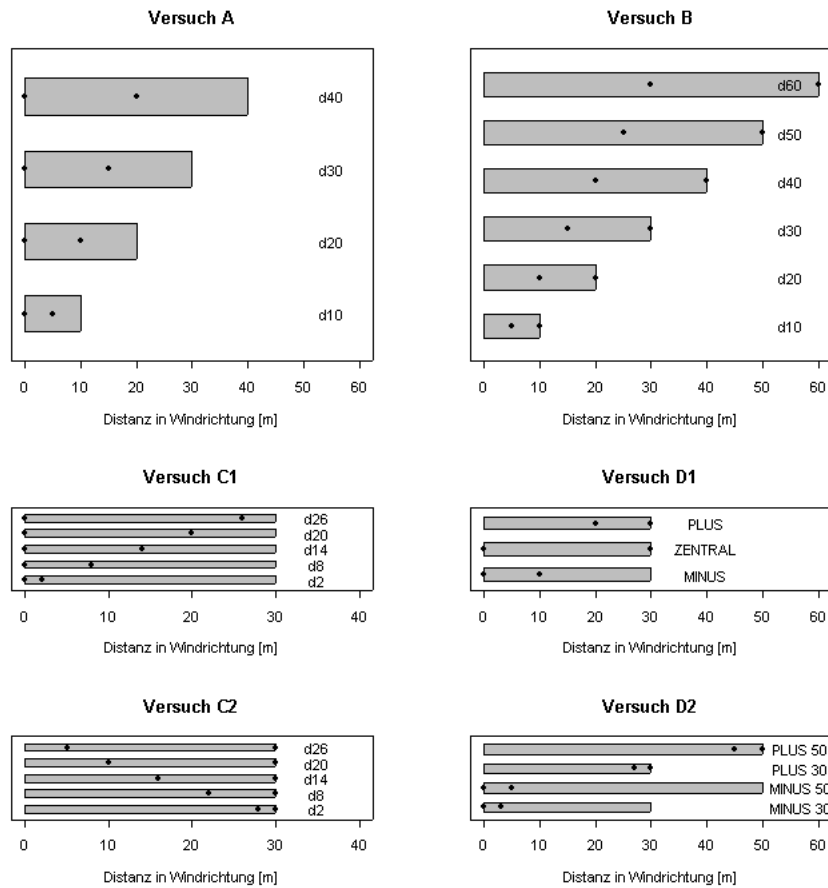
In Versuch D wird der Einfluss der Quellhöhe untersucht. Dazu werden besonders "schlechte" Quellparametrisierungen gewählt, damit die maximal zu erwartende Unsicherheit aufgrund der Parametrisierung bestimmt werden kann. Der Aufbau von Versuch D1 wurde für Quellhöhen von null bis 5 Metern durchgeführt und soll den Effekt einer relativ gut parametrisierten Quellkonfiguration aufzeigen. Versuch D2 untersucht hingegen extrem ungünstige Quellparametrisierungen, so dass mit der "inversen" Quelle die "reale" Quelle nur schlecht wiedergegeben wird. Zusätzlich wird hier nochmals der Einfluss der Quelldimension untersucht. Im Versuch D2 wurde die Quellhöhe zwischen 1 und 11 Metern variiert.

Zur Untersuchung dieser Fragestellung wurde mit einer Windgeschwindigkeit von 4 m/s mit Werten der Monin-Obukhov-Länge von -24, -70 bzw. 59 Metern gerechnet. Dies entspricht gemäß TA - Luft (2002) bei einer verwendeten Rauigkeitslänge von 0.1 Metern einer labilen, indifferenten bzw. stabilen Atmosphäre.

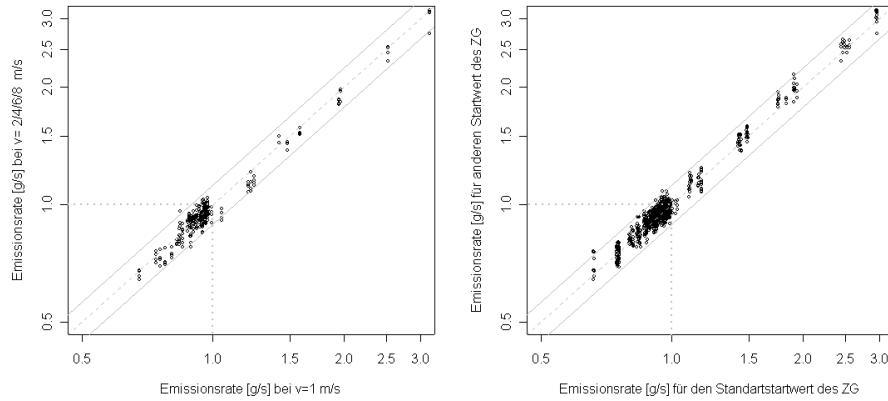
### 4.3.2 Resultate

Mit den ersten Versuchen sollte geklärt werden innerhalb welcher Grenzen der Versuchsaufbau Aussagen zulässt. Ein wichtiger Faktor dazu ist die zufällige Komponente in der Lagrange'schen Dispersionsmodellierung. Damit diese Zufallskomponente das Ergebnis nicht verfälscht muss eine minimale Anzahl Partikel emittiert werden, was in Austal2000 durch einen Qualitätsfaktor gesteuert werden kann. Von dieser Wahl hängt die Rechenzeit entscheidend ab, weswegen eine optimale Wahl dieses Parameters in der praktischen Arbeit durchaus sinnvoll ist. Ebenfalls getestet wurde in diesen Versuchen der Einfluss der Windgeschwindigkeit. Weder die Änderung des Startwertes des Zufallszahlengenerators noch die Windgeschwindigkeit zeigen einen Effekt auf das Ergebnis der Invertierung (Abbildung 4.5). Die Resultate sind innerhalb von  $\pm 0.05$  g/s bei einer wahren Emissionsrate von 1 g/s vergleichbar. Die Unsicherheit aufgrund der zufälligen Komponente von Austal2000 beträgt also 5 %.

Versuch A (Abbildung 4.6), zeigt die Unabhängigkeit der inversen Emissionsratenberechnung von der Quelldimension, wenn die relative Anordnung der Punktquellen innerhalb der Flächenquellen gleich bleibt. In diesem Fall verändert sich die Form der Kurve nicht und sie hängt von der Distanz der Messung zur Quelle und von der Stabilität der Atmosphäre ab. Nahe der Quelle wird die Emission überschätzt. Dort sind die Punktquellen relativ zum Schwerpunkt der Flächenquelle weiter von der Messung entfernt. Aus diesem Grund erreicht die Abgasfahne der Punktquellen schneller den Boden und die quellnahen Konzentrationen sind höher, als mit der Rechnung mit inverser Quelle. Aus diesem Grund wird eine Überschätzung der Emissionsrate beobachtet. Genau das gegenteilige Verhalten tritt bei Versuch B auf (Abbildung 4.7). Die Emissionsrate wird quellnah unterschätzt, weil die Konzentration der Punktquellen in



**Abbildung 4.4:** *Verwendete Quellkonfiguration zur Untersuchung des Einflusses der Annahme homogener Emissionen mit dazugehöriger Versuchskennzeichnung (A-D). Graue Flächen entsprechen den Flächenquellen mit homogener Emission, wie sie zur Invertierung verwendet wurde. Die Punkte sind die "wahren" Quellen zur synthetischen Konzentrationsberechnung.*



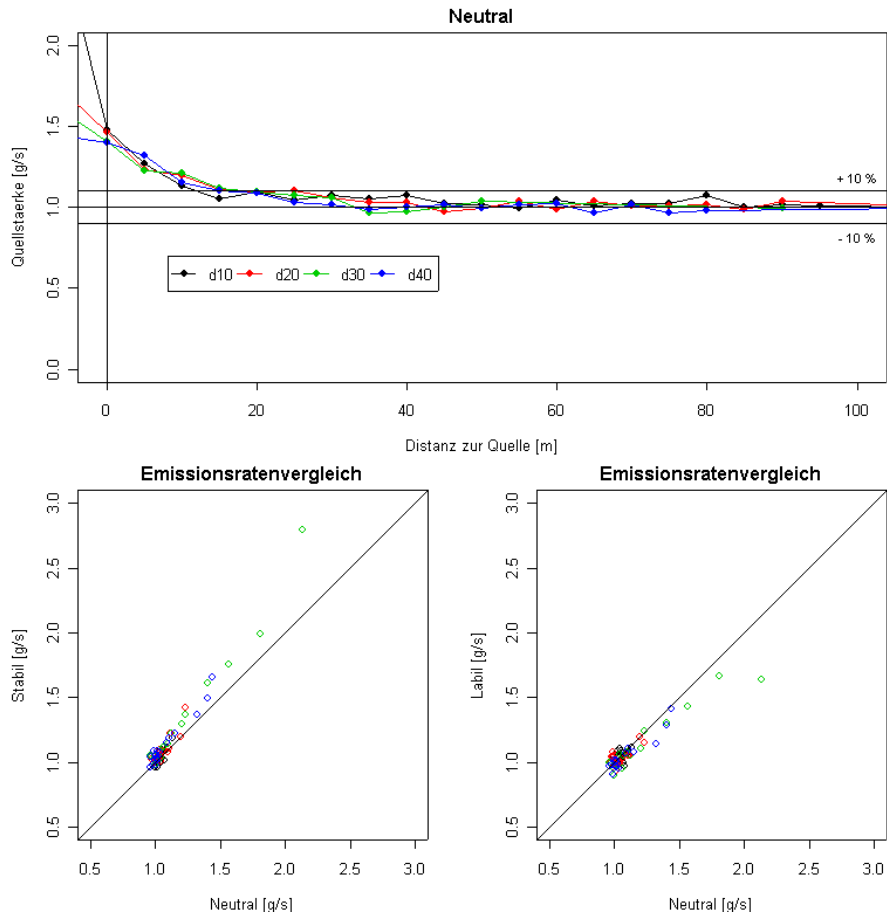
**Abbildung 4.5:** Abhängigkeit der Berechnung der Emissionsraten von der Windgeschwindigkeit ( $v=2, 4, 6$  und  $8$  m/s) und vom Startwert des Zufallszahlengenerator (ZG).

unmittelbarer Nähe zur Quelle kleiner ist, als diejenige der Flächenquelle. Die Resultate hängen auch von der Stabilität der Atmosphäre ab, allerdings zeigt sich das gleiche Verhalten bezüglich der Unabhängigkeit von der Queldimension. Die Dimension der Quelle spielt also für die untersuchten Queldimensionen von 10 - 60 Metern keine Rolle.

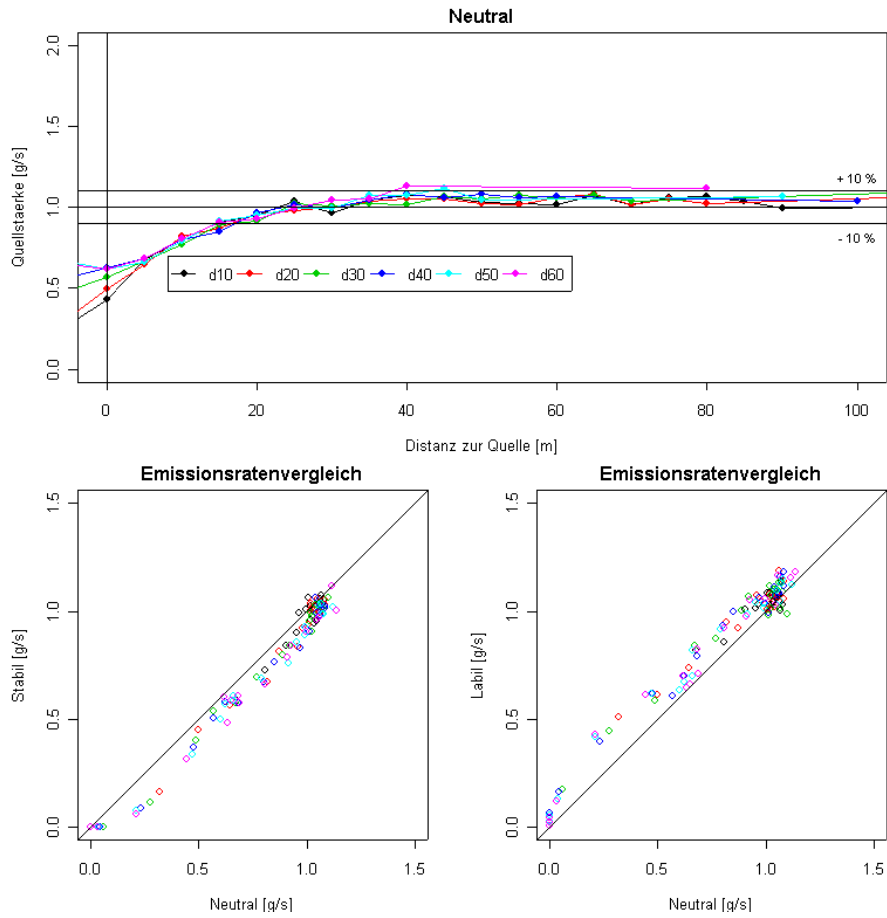
Vergleicht man die Distanz, in welcher die Emissionsratenberechnung innerhalb von  $\pm 10\%$  des wahren Wertes liegt (also zwischen 0.9 und 1.1 g/s), fällt auf, dass dies für Versuch A und B bei gleich bleibender Stabilität in der gleichen Entfernung zu beobachten ist. Bei einer stabilen Atmosphäre erreichen die Emissionsraten nach 15 bis 25 Metern Werte innerhalb dieser Grenzen. Bei labilen Verhältnissen geschieht die Durchmischung schneller, und die Emissionsraten können bereits nach 10 bis 20 Metern mit ausreichender Genauigkeit ermittelt werden. Noch schneller verläuft die Durchmischung bei labil geschichteter Atmosphäre, sodass die berechneten Emissionsraten bereits nach 5 bis 15 Metern den wahren Wert ( $\pm 10\%$ ) erreichen.

Zur Begründung des Verhaltens von Versuch A und B wurde auf die Lage des Schwerpunktes der Flächenquelle in Bezug auf den Schwerpunkt der synthetischen Quelle Bezug genommen. In Versuch C wird nun die Lage des Schwerpunktes verändert. Die Ergebnisse zeigen, dass je weiter entfernt der Schwerpunkt der "realen" Quellen vom Schwerpunkt der Flächenquelle liegt, desto größer werden die Fehler in Quellnähe. Bei Quellen, deren Schwerpunkt mehr oder weniger in der Mitte der Flächenquelle liegt (Versuch d26), werden die Unterschiede bedeutend geringer. Dieses Verhalten kann so sicherlich erwartet werden, da ein Zusammentreffen der Schwerpunkte darauf hindeutet, dass die realen Quellen durch die angenommene Flächenquelle gut repräsentiert werden.

Betrachtet man Verhältnisse mit sehr ungünstigen Anordnung der "realen" Quellen (Unterversuch d2 und d8 der Versuche C1 und C2), werden die Distanzen im Vergleich zu Versuch A und B größer, bis der Punkt erreicht ist, an dem die berechnete Emissionsrate innerhalb 10% des wahren Wertes zu liegen

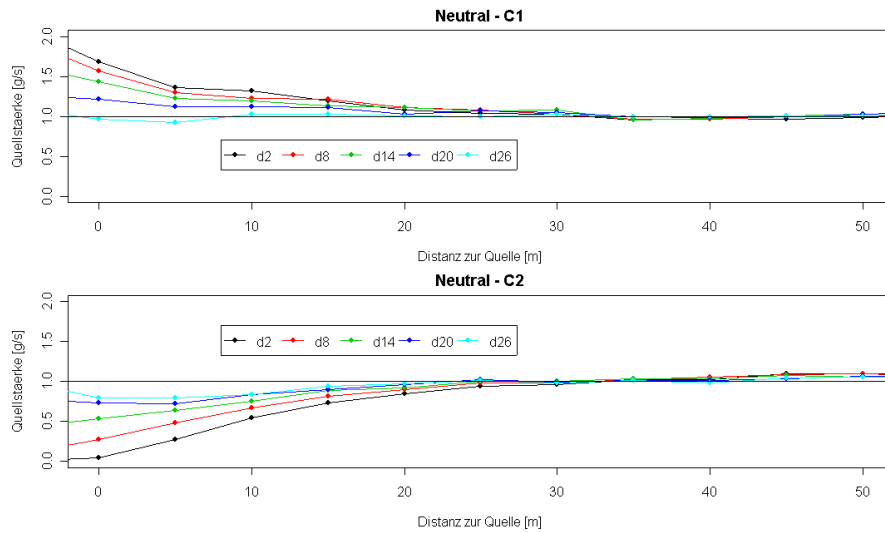


**Abbildung 4.6:** Im oberen Bild ist das Ergebnisse der Emissionsratenbestimmung für Versuch A, in Abhängigkeit der Distanz der Messung zur Flächenquelle unter neutralen Bedingungen dargestellt. Unten links ist das Verhältnis der Ergebnisse unter neutralen und stabilen, unten rechts unter neutralen und labilen Bedingungen wiedergegeben.



**Abbildung 4.7:** Im oberen Bild ist das Ergebnisse der Emissionsratenbestimmung für Versuch B, in Abhängigkeit der Distanz der Messung zur Flächenquelle unter neutralen Bedingungen dargestellt. Unten links ist das Verhältnis der Ergebnisse unter neutralen und stabilen, unten rechts unter neutralen und labilen Bedingungen wiedergegeben.

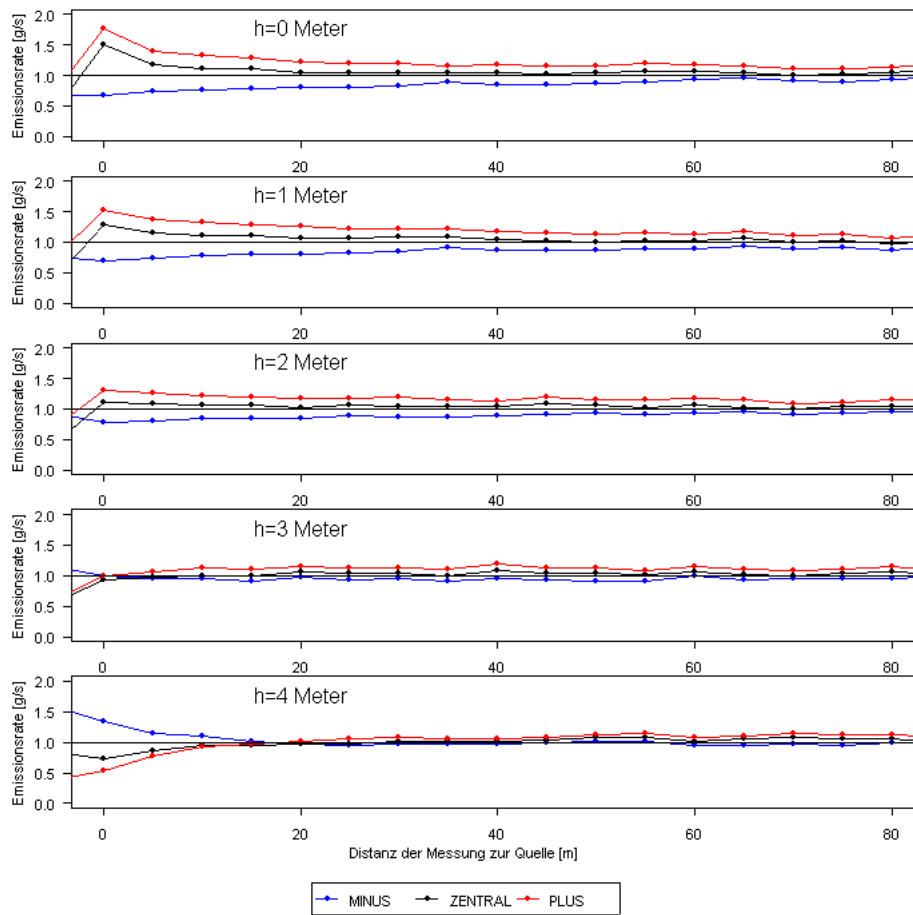




**Abbildung 4.8:** Ergebnisse der Emissionsratenbestimmung der Versuche C1 (oben) und C2 (unten), aufgetragen gegen die Distanz der Messung zur Flächenquelle.

kommt. Diese Distanz ist aber in allen Versuchen kleiner als 35 Meter (Stabil), 25 Meter (Neutral) und 20 Meter (Labil).

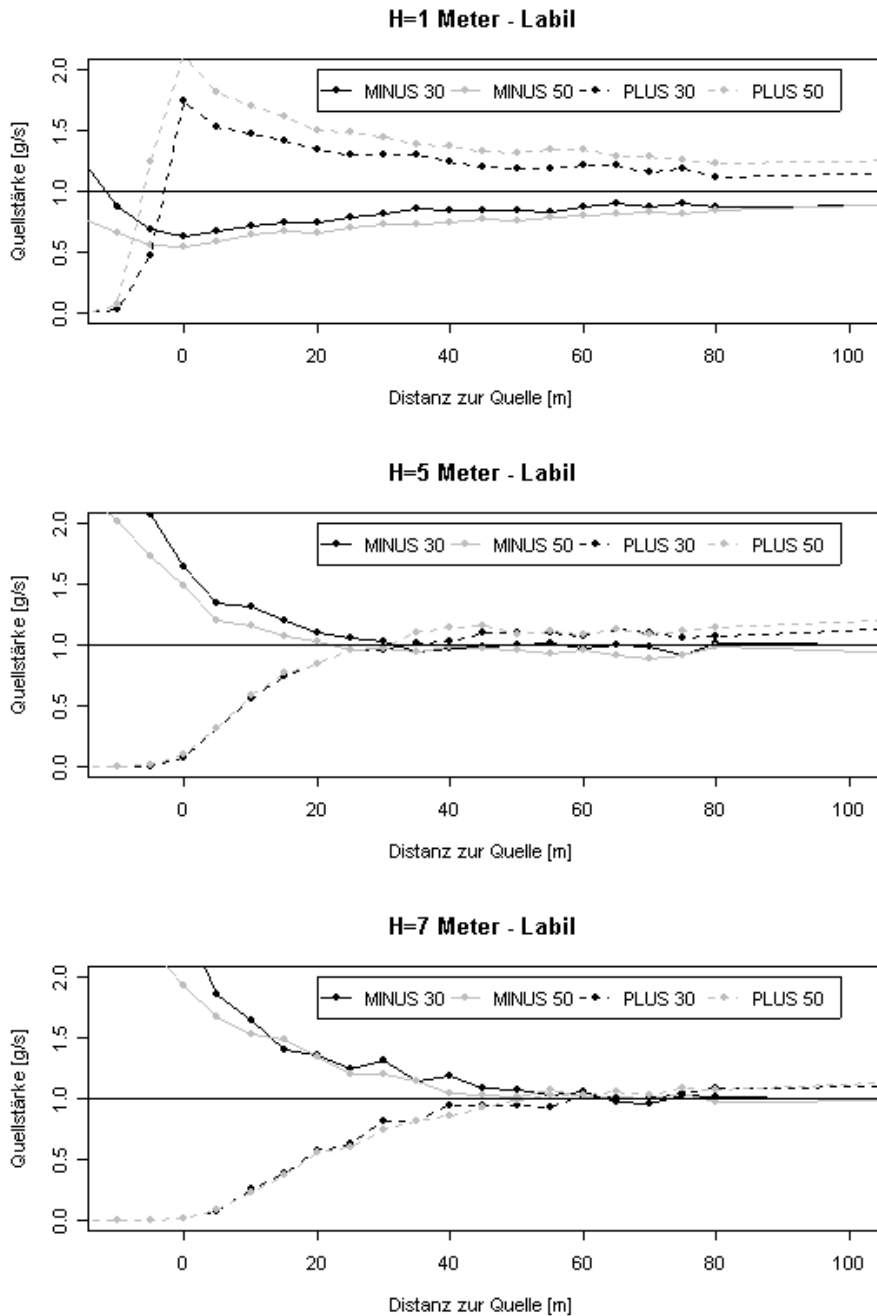
Dieses relativ klare Verhalten der Emissionsratenbestimmung, das sich durch eine Anpassung nahe der Quelle unabhängig von der Quelldimension und durch gute Schätzungen nach einer kritischen Distanz in Abhängigkeit der Stabilität und der Güte der Quellparametrisierung auszeichnet, verliert aber seine Gültigkeit, wenn andere als die bisher verwendete Quellhöhe  $h=5$  Meter verwendet werden. Die Abhängigkeit der Höhe ist in Abbildung 4.9 zu sehen. Es zeigt sich für eine Quellhöhe von 4 Metern ein ähnliches Bild, wie für die bisher untersuchten Quellhöhen von 5 Metern. Ist der Schwerpunkt der realen Quelle weiter entfernt, wird die Emissionsrate bei quellnaher Messung überschätzt. Ist er näher, wird die Emissionsrate unterschätzt. Die Eigenschaften der Ergebnisse beginnt sich aber mit abnehmender Quellhöhe zu ändern. Bei 3 Metern sind die Berechnungen in allen betrachteten Fällen sehr gut, während für noch kleinere Quellhöhen in den Fällen mit weiter entfernt (näheren) liegenden Punktquellen eine Überschätzung (Unterschätzung) zu beobachten ist. Diese Wechsel im Verhalten ist damit zu erklären, dass bei hohen Quellen die Modellpartikel am Boden reflektiert werden und sich demnach dort anreichern. Aus diesem Grund wird die Emissionsberechnung für hoch gelegene Quellen schon sehr quellnah zu guten Ergebnissen führen, unabhängig von der Güte der Quellparametrisierung. Bei bodennahen Quellen kann aber nicht mehr von einer derartigen ausgleichenden Wirkung des Bodens ausgegangen werden. Vielmehr ist entscheidend, dass die Modellpartikel nach oben (welches die vertikale Hauptausbreitungsrichtung ist) entweichen. Dies ist einerseits der Grund, warum es länger dauert, bis sich die mittels inverser Methode ermittelte Emissionsraten den wahren Emissionen annähern, aber auch, dass in Quellnähe eine Unterschätzung in den Fällen auftritt, die bei hohen Quellen eine Überschätzung aufweisen. Liegt also der Schwerpunkt der "realen" Punktquelle weiter aufwind, als der Schwerpunkt der "inver-



**Abbildung 4.9:** Höhenabhängigkeit der Emissionsratenberechnung in Abhängigkeit der Distanz der Messung zur Flächenquelle. Die Versuche MINUS, ZENTRAL, PLUS entsprechen dem Versuch D1.

sen" Quelle, dann ist die "reale" Konzentration geringer als bei der Invertierung erwartet und demnach wird die Emissionsrate unterschätzt. Für näher gelegene "reale" Quellen gilt mit umgekehrter Begründung dann eine Überschätzung.

Um auch für bodennahe Quellen Grenzen der Ungenauigkeit angeben zu können, sollen mit Versuch D2 extrem ungünstige Quellparametrisierungen untersucht werden. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.10 dargestellt. Einerseits zeigt sich, dass die Distanz zur Quelle, ab welcher die Berechnung der Emissionsraten der "wahren" Emissionsrate entspricht für Quellhöhen größer als fünf Meter größer wird, andererseits ändert sich aber das Verhalten der Lösung nicht wesentlich. Dies gilt für alle Quellhöhen größer als 4 Meter. Für kleinere Quellhöhen ist aber eine Abhängigkeit der Emissionsberechnung von der Dimension der Quelle zu beobachten. Je größer die Quelle, desto größer wird die Unsicherheit. Dies hängt damit zusammen, dass bei größerer Quelle die Transportdistanzen größer sind und somit ebenfalls die Unterschiede zwischen realer



**Abbildung 4.10:** Emissionsratenbestimmung in Abhängigkeit der Distanz zwischen Messung und Flächenquelle für verschiedene Quellhöhen und verschiedene Quelldimensionen (MINUS30, PLUS30, MINUS50, PLUS50), wie sie im Versuch D2 verwendet wurden.

und inverser Konzentration größer sind. Es fällt zudem auf, dass die größte Unsicherheit in unmittelbarer Nähe zur Quelle zu beobachten ist. Für die Quelle mit einer Länge von 30 Metern beträgt die maximale Emissionsrate 1.6 g/s (Stabil), 1.7 g/s (Neutral) und 1.8 g/s (Labil). Die Emissionsrate wird nach spätestens 20 Metern kleiner als 1.4 g/s und nach 35 Metern kleiner als 1.3 g/s. Unter stabilen Verhältnissen ist die Anpassung an den "wahren" Wert in geringerer Entfernung zur Quelle zu beobachten, da in diesem Fall die geringere Durchmischung nach oben dazu führt, dass die Unterschiede der "wahren" zur "inversen" Konzentration nicht sehr groß sind. Die minimale Emissionsrate ist 0.7 g/s (stabil), 0.6 g/s (neutral und labil). Die Anpassung zu Werten größer als 0.7 g/s erfolgt spätestens nach 10 Metern.

Die maximalen Werte für die Quelle mit 50 Metern Ausdehnung sind 1.9 g/s (stabil), 2.1 g/s (neutral) und 2.2 g/s. Die Anpassung unter 1.4 g/s erfolgt spätestens nach 45 Metern, während die Werte im stabilen Fall nach 55 Meter unterhalb 1.3 g/s fallen. Unter labilen Bedingungen wird dies innerhalb der 140 Metern des Rechengebietes nicht beobachtet. Die minimale Emissionsrate ist 0.6 g/s (stabil), 0.5 g/s (neutral und labil). Die Anpassung zu Werten größer als 0.7 g/s erfolgt spätestens nach 30 Metern.

Die Versuche zur Bestimmung des Einflusses der Quellparametrisierung auf das Ergebnis des inversen Dispersionsmodells EMiL zeigen zwei verschiedenen Ausprägungen. Für Quellhöhen größer als 4 Meter spielt die Dimension der Quellen keine Rolle und die Güte der Quellparametrisierung beeinflusst die berechnete Emissionsrate nur bei sehr quellnahen Messungen ( $< 35$  Meter). Bei weiter entfernt liegenden Messungen bleibt der Einfluss der Quellparametrisierung kleiner als 10 %. Für bodennahe Quellen (Quellhöhe kleiner als 4 Meter) zeigt sich ein anderes Verhalten und es lässt sich eine Abhängigkeit der Resultate von der Quelldimension erkennen. In den meisten Fällen erreicht die berechnete Emissionsrate für bodennahe Quellen den wahren Wert (innerhalb  $\pm 30$  %) für Messungen die 55 Metern oder weiter von den Quellen entfernt sind. Diese Aussage gilt für sehr ungünstige Parametrisierungen. In realen Anwendungen kann die Quelle besser angenähert werden als in diesen Versuchen und somit sind die 55 Meter als obere Grenze zu verstehen, bis zu welcher die Güte der Quellparametrisierung einen wesentlichen Einfluss auf die Qualität der inversen Dispersionsmodellierung ausübt.

# Kapitel 5

## Anwendungen

Die zuvor beschriebenen inverse Methoden wurden zur Emissionsratenbestimmung auf Flughäfen verwendet. Dazu wurden Messkampagnen von jeweils 2 bis 3 Wochen Dauer auf den Flughäfen Zürich und Budapest durchgeführt. Die Untersuchung auf dem Flughafen Zürich umfasste ein Gebiet der Größe 300 mal 200 Meter und die Anzahl der Quellen war überschaubar. Aus diesem Grund wurden für diesen Fall die pseudoinverse Methode zur Emissionsberechnung gewählt. Das Untersuchungsgebiet am Flughafen Budapest war etwa um einen Faktor 5 größer. Deshalb überstieg die Anzahl der Quellen die der Messungen bei weitem (3 Messungen und 13 definierten Quellregionen zur inversen Dispersionsmodellierung). Das dadurch unterbestimmte inverse Problem wurde mittels der Bayes'schen Methode gelöst.

### 5.1 Eingesetzte Messgeräte

Zur Bestimmung der Konzentrationen von  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  und  $\text{NO}_x$  in der Atmosphäre und zur Bestimmung meteorologischer Parameter (Wind, Stabilität), deren Kenntnis zur Ausbreitungsmodellierung notwendig ist, wurden während der beiden Messkampagnen verschiedene Messsysteme eingesetzt. Eine Zusammenstellung der verschiedenen eingesetzten Geräte gibt Tabelle 5.1.

Einerseits wurden zur Bestimmung der Konzentration in situ Messgeräte eingesetzt. Der derart gemessene Wert entspricht der lokale Konzentration an dem Ort, an dem die Luft zur Analyse angesaugt wurde. Andererseits wurden Offenpfadmesssysteme eingesetzt, die die molekilspezifische und wellenlängenabhängige Absorption von elektromagnetischer Strahlung durch Gasmoleküle analysiert und so die Konzentration bestimmt. Die dazu benötigte Strahlung wird von einem Sender ausgesandt, durchläuft einen Teil der Atmosphäre und das Spektrum der Strahlung wird dann mit einem Spektrometer gemessen. Aufgrund der Veränderung des Spektrums durch die Moleküle entlang des Lichtpfades, kann auf die Konzentration geschlossen werden. Derart gemessene Konzentrationen sind als räumliches Mittel entlang der Messstrecke zu interpretieren.

Es wurden also Messungen am Punkt (in situ Messung) und Messungen entlang einer Messstrecke (Offenpfadmessung) durchgeführt. Die Messprinzipien der verschiedenen Messgeräte sollen im folgenden kurz beschrieben werden; für eine tiefere Beschreibung sei aber auf die Fachliteratur verwiesen.

**Tabelle 5.1:** Messgeräte, die während den Flughafenmesskampagnen zur Bestimmung der Spurenstoffkonzentration, des Windes und der Stabilität der Atmosphäre eingesetzt wurden.

Gerätename	Messprinzip	gemessene Komponenten	zeitliche Auflösung [Minuten]	Flughafen	Referenz
Differentielle Optische Absorptionsspektroskopie (DOAS)	Offenpfadmessung	NO, NO <sub>2</sub>	ca. 2	BUD/ZRH	Opsis (1997)
Fourier Transformations Infrarot (FTIR) Spektrometer	Offenpfadmessung	CO, CO <sub>2</sub>	ca. 3	BUD/ZRH	Kayser-Threde (1998)
CO-Analysator AL5001	In situ Messung	CO	5	BUD	Aero-Laser (2004)
NO <sub>x</sub> -Analysator AC30M	In situ Messung	NO, NO <sub>x</sub>	30	ZRH	Antechnika GmbH (1983)
NO <sub>x</sub> -Analysator AC31M	In situ Messung	NO, NO <sub>x</sub>	30	BUD	Ansyco GmbH (1994)
NO <sub>x</sub> -Analysator 42 CTL	In situ Messung	NO, NO <sub>x</sub>	5	BUD	Analytical Systems (1999)
Wetterstation THIES	Windfahne und Schalenkreuzanemometer	Wind	60	BUD/ZRH	Thies Klima (1993)
Ultraschallanemometer	Ultraschall	Wind, Turbulenz	0.17	BUD/ZRH	METEK (2002)

**In situ NO<sub>x</sub>-Analysator** Die verwendeten NO<sub>x</sub>-Analysatoren basieren auf dem Prinzip der Chemilumineszenz, die bei der Reaktion von Ozon (O<sub>3</sub>) mit Stickstoffmonoxid (NO) auftritt. Die so entstehende Lichtintensität ist proportional zum NO-Mischungsverhältnis. Zur Messung von NO<sub>x</sub> (NO & NO<sub>2</sub>) wird erst das in der Luft vorhandene NO<sub>2</sub> mittels Molybdän zu NO reduziert und dann mit Ozon versetzt, um erneut das NO Mischungsverhältnis zu messen, das dem NO<sub>x</sub>-Mischungsverhältnis entspricht. Aus der Differenz der Mischungsverhältnisse von NO<sub>x</sub> und NO kann das NO<sub>2</sub>-Mischungsverhältnis berechnet werden. Die katalytische Umsetzung der Luft bei hohen Temperaturen mittels Molybdänkonverter führt nicht nur zu einer Umwandlung von NO<sub>2</sub> zu NO. Andere stickstoffhaltige Spezies (PAN, HONO, HONO<sub>2</sub>, RONO<sub>2</sub>) in der Luft werden ebenfalls zu NO umgesetzt (McClenny et al., 2002; Clemitshaw, 2004). Das führt zu einer möglichen Überschätzung der NO<sub>2</sub>-Konzentration, was bei typischen Umgebungsluftkonzentrationen der stickstoffhaltigen Spezies ("hohe" NO<sub>2</sub>- und "niedrige" andere Konzentrationen) vernachlässigt werden kann (Winer et al., 1974). Gerboles et al. (2003) identifizieren PAN als wichtigste Fehlerquelle der NO<sub>2</sub>-Messung mit dem beschriebenen Verfahren. Die Autoren berichten von typischen strassenanahen PAN-Konzentrationen von  $2 \mu\text{g m}^{-3}$ . Auf diesem Messprinzip beruhende Messgeräte wurden eines der Firma Antechnika (AC30M), eines der Firma ansyco (AC31M) und zwei von Analytical Systems (TE42C-95 und TE42C-96) eingesetzt.

**In situ CO-Analysator** Der verwendete CO Analysator der Firma Aero-Laser GmbH (AL 5001) basiert auf dem Prinzip der Fluoreszenz. Die Gasprobe wird mit Licht einer Wellenlänge von 150 nm bestrahlt und fluoresziert dabei. Aufgrund der Intensität kann auf die Konzentration von CO in der Probe geschlossen werden.

**Offenpfadmessungen** Als Offenpfadmessungen wurden einerseits "Fourier Transform Infrared" (FTIR)-Spektroskopie eingesetzt und andererseits differentielle optische Absorptionsspektroskopie (DOAS). Beide Systeme nutzen den physikalischen Effekt der Absorption elektromagnetischer Strahlung von Gasmolekülen bei spezifischen Wellenlängen aus. Die FTIR Messung besteht aus einer Infrarotquelle an einem Ende des Messpfades und einem Spektrometer am anderen Ende. Die Spurengaskonzentrationen wurden mit der differentiellen Absorptionmethode und einer Anpassung zwischen modelliertem und gemessenem Spektrum nach der Methode der kleinsten Quadrate ermittelt (Haus et al., 1994). Das verwendete Spektrometer K-300 (Kayser-Threde, 1998) erlaubt eine zeitliche Auflösung von etwa 3 Minuten. Während der Messung werden 50 Interferogramme gemittelt, um den statistischen Fehler zu verkleinern und aufgrund dieses Mittels wird dann die Konzentration der Gase (CO und CO<sub>2</sub>) berechnet. NO und NO<sub>2</sub> können im Ultravioletten und sichtbaren Wellenlängenbereich mit größerer Empfindlichkeit als im Infraroten bestimmt werden, da die Absorptionskoeffizienten größer sind. Die Messungen wurden mit dem DOAS-System der Firma Opsi (Opsi, 1997) durchgeführt. Die Sender/Empfänger-Einheit des DOAS-Systems ist mit einer Xenon-Lampe ausgestattet, die ultraviolettes und sichtbares Licht ausstrahlt. Am anderen Ende der Messstrecke befindet sich ein Retroreflektor, der die Strahlung Richtung Sender/Empfänger-Einheit reflektiert. Die Auswertung der einzelnen Komponenten durch das System erfolgt

sequentiell. Dies führt zu Messlücken in der Messung einzelner Komponenten. Die zeitliche Auflösung der Einzelmessung hängt von der gemessenen Komponente ab und beträgt 1 bis 3 Minuten.

## 5.2 Flughafen Zürich

Der Flughafen Zürich liegt etwa 10 km nördlich des Stadtzentrums von Zürich. Es ist der größte Flughafen der Schweiz und befördert im Jahr ca 17,9 Mio Passagier bei etwa 267'363 Flugbewegungen<sup>1</sup>. Im Vergleich dazu ist der Flughafen München etwa 1.5 mal größer und weist eine Fluggastzahl von 28,6 Millionen bei 386'841 Flugbewegungen<sup>2</sup> aus. Der Flughafen Zürich zeichnet sich dadurch aus, dass den Fluggesellschaften emissionsabhängige Flughafentaxen verrechnet werden. Dies bedingt die Erfassung der Emissionen jedes Flugzeuges das am Flughafen landet und startet. Diese Daten, zusammen mit den Flughafenlogbüchern, wurden vom Flughafen für die Dauer der Messkampagne zur Verfügung gestellt. Auf dem Flughafen Zürich stehen drei Start- und Landebahnen sowie drei Terminals zur Verfügung. Das neue Terminal E wurde erst wenige Monate vor der Messkampagne eröffnet. Die älteren Terminals A und B wurden aber weiterhin benutzt. Die Messkampagne fand im Sommer 2004 vom 1. - 14. Juli statt. Die Geräte zur Messung von Luftspurenstoffen wurden zwischen den Terminals A und B aufgestellt.

Zwischen Terminal A und B waren während der Messkampagne 4 Standplätze in Betrieb, die auch regelmäßig genutzt wurden. Während der Zeit der Messkampagne wurden im Untersuchungsgebiet im Schnitt pro Tag und Standplatz etwa 4 bis 5 Flugzeuge abgefertigt. Der Messaufbau ist in Abbildung 5.1 dargestellt.

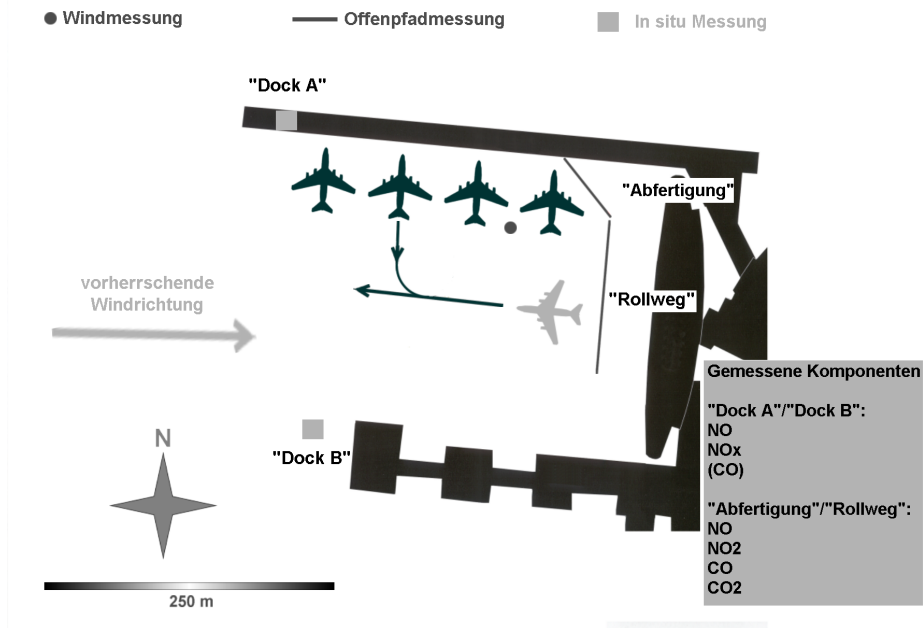
Während der Messkampagne wurden an vier verschiedenen Standorten Messungen von Spurenstoffen vorgenommen. An einem weiteren Standort wurden meteorologische Größen ermittelt. Die Ergebnisse dieser Messkampagne wurden in Schürmann et al. (2007) bereits veröffentlicht, weshalb hier nur die für die inverse Methode wesentlichen Ergänzungen wiedergegeben sind. Zwei der Messstandorte ("Dock A" und "Dock B") liegen westlich der Standplätze. Bei vorwiegen westlichem Wind sind diese Standorte dazu geeignet, Hintergrundkonzentrationen zu messen. Dass dies keiner reinen Hintergrundmessung entspricht, sondern weiter westlich ein Rollweg und eine Startbahn liegen, soll nicht unerwähnt bleiben. Der Einfluss dieser beiden Linienquellen auf das Untersuchungsgebiet ist normal zur Windrichtung homogen. Das Abklingen der Konzentration in Windrichtung wird im Untersuchungsgebiet (Von der Messstelle "Dock A" und "Dock B" bis zur "Rollbahn" und "Abfertigung") vernachlässigt, da die Quellintensität im Untersuchungsgebiet einen weitaus größeren Einfluss auf die lokalen Konzentrationsgradienten hat. Tatsächlich konnten in den Messungen keine Hinweise darauf gefunden werden, dass diese entfernt liegenden Quellen ein erkennbares Signal wiedergeben. Den Quellen im Untersuchungsgebiet können hingegen einzelne gemessene Konzentrationen zugeordnet werden. Dies kann auch daran liegen, dass auf Rollbahn und Startbahn keine dauernde Emission vorherrschte sondern die Emissionsereignisse sehr kurzfristig waren.

---

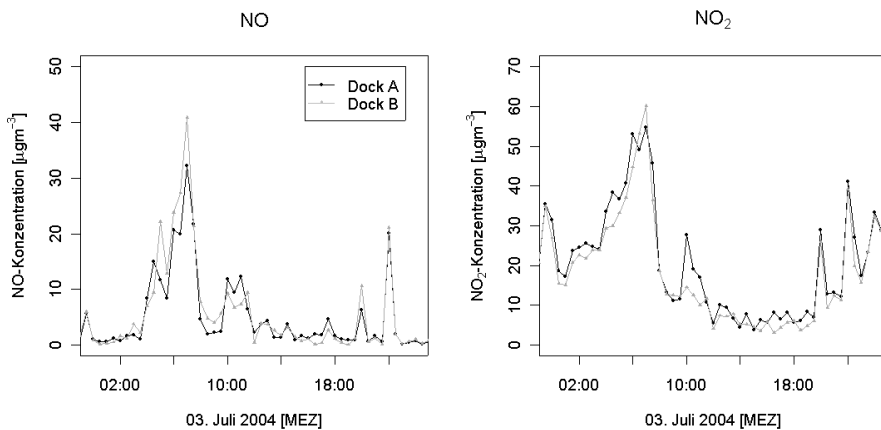
<sup>1</sup><http://www.unique.ch/dokumente/Jahrbuch2005.pdf>

<sup>2</sup>[http://www.munich-airport.de/Mediapool/Content/Download/Presse/jpk2006\\_PMzahlen.pdf](http://www.munich-airport.de/Mediapool/Content/Download/Presse/jpk2006_PMzahlen.pdf)

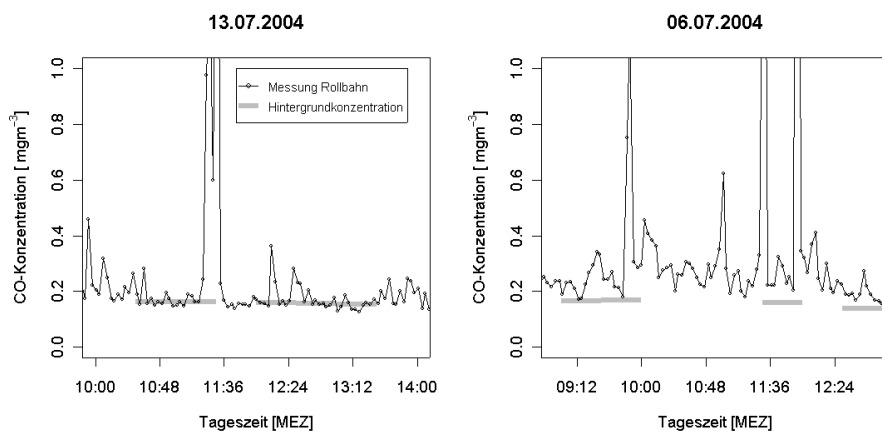




**Abbildung 5.1:** Anordnung der Messgeräte auf dem Flughafen Zürich. Die schwarzen Flugzeuge stehen auf den vier Standplätzen, während sich das graue Flugzeug auf dem Weg zur Rollbahn befindet. Nach der Abfertigung werden die Flugzeuge von einem Spezialfahrzeug rückwärts auf die Rollbahn geschoben. Während dieses Vorgangs startet der Pilot die Triebwerke des Flugzeuges. Auf der Rollbahn angekommen wird das Hilfsfahrzeug abgekoppelt und nach den letzten Funktionsprüfung verlässt das Flugzeug das Untersuchungsgebiet mit eigenem Antrieb.



**Abbildung 5.2:** NO- und NO<sub>2</sub>-Konzentration, gemessen an den Messstandorten Dock A und B, womit die Hintergrundkonzentration zur inversen Dispersionsmodellierung bestimmt wurde.



**Abbildung 5.3:** CO-Konzentrationsmessung auf dem Messpfad Rollbahn, verglichen mit der korrigierten Hintergrundkonzentration (siehe Text). Links ist ein gutes Beispiel am 13. Juli, rechts ein schlechtes am 6. Juli.

Für NO und NO<sub>2</sub> standen an den beiden Hintergrundmessstationen "Dock A" und "Dock B" jeweils Messresultate zur Verfügung, weswegen zur Ermittlung der Hintergrundkonzentration das arithmetische Mittel dieser beiden Messungen bestimmt wurde (Abbildung 5.2).

Für CO waren keine derartigen Hintergrundmessungen verfügbar. Am Standort "Dock B" wurde zwar CO gemessen, die Messwerte waren jedoch offensichtlich zu hoch ( $1.3 \text{ mg m}^{-3}$  am Messort "Dock B" und  $0.15 \text{ mg m}^{-3}$  als Hintergrundwert der Messstrecke "Rollbahn"). Aus diesem Grund wurde eine Korrektur dieser Messwerte um den Faktor 0.12 vorgenommen, der mittels Anpassung an einzelne Hintergrundwerte ermittelt wurde. Dass diese einfache Methode zur Korrektur der Hintergrundmesswerte für CO zu realistischen Werten führt, zeigt ein Vergleich der korrigierten Hintergrundkonzentration mit den Konzentrationen am Messort "Rollbahn" (siehe Abbildung 5.3). Der Vergleich mit der Rollbahn ist insofern sinnvoll, da auf der Rollbahn nur Flugzeuge als Quelle von CO vorkommen und deswegen häufig kein CO in unmittelbarer Nähe zu dieser Messstrecke emittiert wurde. In Abwesenheit eines Flugzeuges kann also angenommen werden, dass auf der Trasse "Rollbahn" Hintergrundkonzentrationen gemessen wurden. Am 13. Juli zeigt sich, dass die CO-Hintergrundkonzentration gut getroffen ist, während der 6. Juli das schlechteste Beispiel ist. Aber selbst bei diesem zeigt sich, dass die kleinsten Werte auf der Rollbahn die Hintergrundkonzentration erreichen. Grund für diese Abweichung sind Winde, die nicht mehr aus Westen kommen, sondern aus Norden und deshalb belastete Luft in die Trasse wehen, die von der Hintergrundstation nicht erfasst wird. Die ausgeprägten Maxima der CO-Konzentrationen werden von Flugzeugen verursacht, die das Untersuchungsgebiet mit eigenem Antrieb verlassen und deren Abgase in die Messstrecke "Rollbahn" getragen werden.

### 5.2.1 Inverse Methoden

Zur Anwendung der in dieser Arbeit verwendeten inversen Methode müssen Quellregionen definiert werden. Im Untersuchungsgebiet auf dem Flughafen Zürich treten zwei verschiedene Arten Emissionen auf. Einerseits ist dies die Emission aus Flugzeugtriebwerken, andererseits treten eine Vielzahl der Emissionen während der Abfertigung der Flugzeuge auf. Diese entstehen vorwiegend durch Dieselmotoren der diversen Spezialfahrzeuge, die das Flugzeug auf den nächsten Flug vorbereiten. Dies umfasst Tätigkeiten wie Betanken, Ent- und Beladen, sowie Catering und Reinigung. Für beinahe jede dieser Tätigkeit sind eigens dafür angefertigten Spezialfahrzeuge im Einsatz.

Während die Emissionen der Flugzeugtriebwerke an gut definierbaren Orten auftreten und von relativ kurzer Zeitdauer sind (etwa 5 Minuten), sind Emissionen der Abfertigungsfahrzeuge zwar auf das Gebiet um das Flugzeug beschränkt - darin kann aber keine genaue Position zugeordnet werden - und von relativ langer Dauer. Die Abfertigungsdauer eines Flugzeuges ist sehr variabel und betrug während der Messkampagne in den meisten Fällen etwa eine bis drei Stunden. In dieser Zeit sind allerdings nicht immer alle Abfertigungsfahrzeuge in Betrieb und einer der vorherrschenden Lastzustände ist Leerlauf (Margenat und Casanova, 2006). Diese Art Emissionen kann als diffuse Emissionen beschrieben werden, da der Ort der Emission der Einzelquelle nicht genau bekannt ist. Zur Modellierung wird deshalb der Ansatz gewählt, den Ort der Emission als Volumenquelle zu beschreiben. Für Zürich wird ein Standplatz mit der Volumenquelle der Grundfläche 70 mal 60 Meter und der Höhe 1 Meter in der Modellierung berücksichtigt.

Auch die Flugzeuge werden als Volumenquelle und nicht als Punktquelle angenommen. Grund für diese Vorgehensweise ist die spezielle Physik in der Abgasfahne eines Flugzeuges. Die Beschreibung der triebwerksnahen Ausbreitung und eine mögliche Beeinflussung durch den Flugzeugrumpf können vom verwendeten Ausbreitungsmodell AUSTAL2000 nicht berechnet werden, da dieses nur zur Ausbreitungsberechnung in der atmosphärischen Grenzschicht verwendet werden kann. Um dieser Problematik gerecht zu werden, wird die Quelle als Volumen definiert, deren horizontaler Ausdehnung (269 mal 30 Meter) der Rollbahn und deren Höhe (6 Meter) der Höhe eines Flugzeuges entspricht.

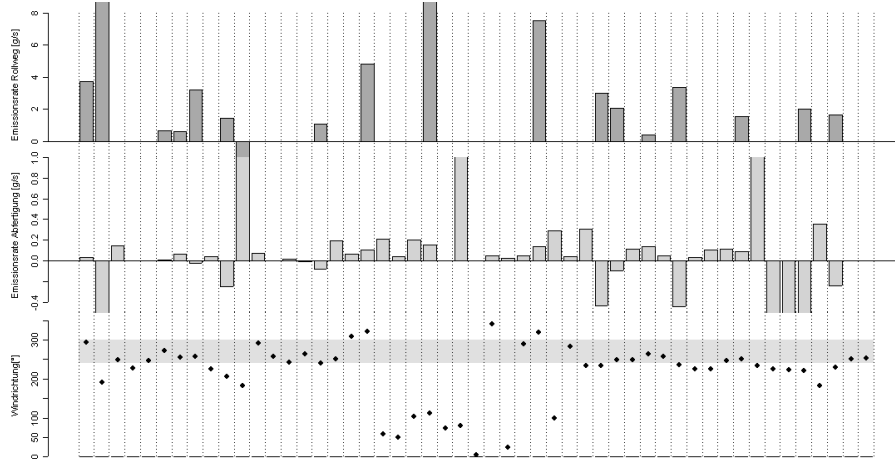
Im Untersuchungsgebiet befinden sich eine Rollbahn und vier Standplätze (Abbildung 5.1). Die vier Standplätze wurden als eine Quelle definiert, deren einzelne Emission aber von der Aktivität auf dem Standplatz abhängt. So wurde erst für jeden der vier Standplätze ein Vorwärtsmodell gerechnet und danach die Einflüsse gewichtet addiert. Als Gewicht fließt die Belegung des Standplatzes mit ein. Das Gewicht ist null, wenn kein Flugzeug abgefertigt wurde und eins, wenn ein Flugzeug abgefertigt wurde. Wurde ein Flugzeug nur teilweise abgefertigt, wurde das Gewicht entsprechend dem Verhältnis von Abfertigungszeit zur gesamten Mittelungszeit gewählt. Dieses etwas umständliche Vorgehen wurde gewählt, um die Anzahl der Messungen (zwei) und der Quellen (zwei) gleich groß zu halten. Da teilweise kein Flugzeug auf der Rollbahn war, konnte das zu lösende System entweder quadratisch oder überbestimmt sein. Aus diesem Grund wurde die Emissionsrate der Quellen mit der pseudoinversen Methode berechnet. Als Konzentration von CO und NO/NO<sub>2</sub> wurden Halbstundenmittelwerte verwendet, da die Hintergrundkonzentration nur in dieser zeitlichen Auflösung gemessen wurde.

### 5.2.2 Ergebnisse der Emissionsratenbestimmung

Auf Basis der Messungen am Flughafen Zürich wurden Emissionsraten für NO, NO<sub>2</sub> und CO mit inversen Methoden berechnet. Insgesamt wurden für CO 51, für NO 209 und für NO<sub>2</sub> 237 Fälle berechnet. Insgesamt ergaben sich so 96 Fälle, bei denen NO und NO<sub>2</sub> gleichzeitig ausgewertet wurde und somit auch eine Auswertung für NO<sub>x</sub> gemacht werden konnte. Allerdings konnten nicht für alle Fälle plausible Ergebnisse erzeugt werden. Dies soll anhand der Ergebnisse für CO erläutert werden (Abbildung 5.4). Es fällt erstens auf, dass in einigen Fällen entweder viel zu hohe, oder aber negative Emissionsraten bestimmt werden. Gibt es dafür Gründe? In den Fällen mit erhöhten Emissionsraten, war die vorherrschende Windrichtung nicht West. Dadurch können Emissionen in das Gebiet getragen werden, die nicht von der Hintergrundmessung erfasst werden, was zu einer Überschätzung der Emissionsraten führt. Zur Erklärung der negativen Emissionsraten sind zwei Effekte festzuhalten. Einerseits werden in der Hintergrundmessung leicht höhere Konzentrationen gemessen als auf der Messstrecke (minimale Differenz:  $-0.06 \text{ mg m}^{-3}$ ). Dies führt zusammen mit einem sehr schwachen Einfluss der Abfertigungsemissionen auf die Messung zu einer hohen negativen Emissionsrate. Insbesondere bei Südwestwinden ist dies der Fall, da dann die Abluftfahne zwar die Messtrasse "Abfertigung" streift, aber nur zu einem geringen Anteil. Dies führt zu dem eben besprochenen geringen Einfluss der Quelle auf die Messung. Andererseits wurde auch negative Emissionsraten der Abfertigung berechnet, wenn Flugzeuge auf der Rollbahn emittieren und ebenfalls südwestliche Winde vorherrschten. In diesen Fällen wird bei der Ausbreitungsmodellierung ein Teil der Flugzeugemissionen in die Trasse "Abfertigung" geweht. In Wahrheit wird aber durch den vom Triebwerk erzeugten Schub die Flugzeugemission anfänglich eine deutliche Westwindkomponente aufweisen. Dies führt dazu, dass der Einfluss der Flugzeugemission auf der Messtrasse "Abfertigung" überschätzt wird. Diese Überschätzung wird durch eine negative Emissionsrate der Standplätze ausgeglichen. Nachdem derartige Fälle aus der Analyse ausgeschlossen wurden, verblieben noch 84 Fälle zur Analyse von NO<sub>x</sub> und 34 Fälle für CO.

Emissionsraten für Flugzeuge konnten mit dieser Methode für 13 bzw. 15 Fälle (CO bzw. NO<sub>x</sub>) bestimmt werden (Abbildung 5.5). Emissionen von Flugzeugen variierten für CO zwischen 0.4 und 7.5 g/s und für NO<sub>x</sub> zwischen 28.6 und 520.8 mg/s. Schürmann et al. (2007) und Schäfer et al. (2004) berechnen für die gleiche Messkampagne Emissionsindizes (in g Spurenstoff pro kg Treibstoff) für Flugzeuge mit einer Verhältnismethode. Ein Vergleich dieser Resultate mit den Ergebnissen der inversen Ausbreitungsmodellierung zeigt befriedigende Ergebnisse innerhalb einer Fehlerspanne von  $\pm 30 \%$  (Abbildung 5.6).

Die Standplatzemissionen von CO waren etwa um einen Faktor 20 geringer als die Flugzeugemissionen und variierten zwischen 0.01 und 0.36 g/s. Die NO<sub>x</sub>-Emissionen der Standplätze waren im Mittel ebenfalls etwas geringer als die Flugzeugemissionen (etwa Faktor 2-3), erreichten aber ähnliche Maxima wie jene (Variation innerhalb 2.9 und 547.3 mg/s). Auch wenn die Emissionsraten auf den Standplätzen geringer sind als die Flugzeugemissionen, so treten diese bedeutend häufiger auf. CO-Emissionen auf den Standplätzen wurden in 29 und NO<sub>x</sub>-Emissionen für 51 Fällen beobachtet. Diese höhere Häufigkeit der Standplatzemissionen ist dadurch bedingt, dass eine Abfertigung länger dau-

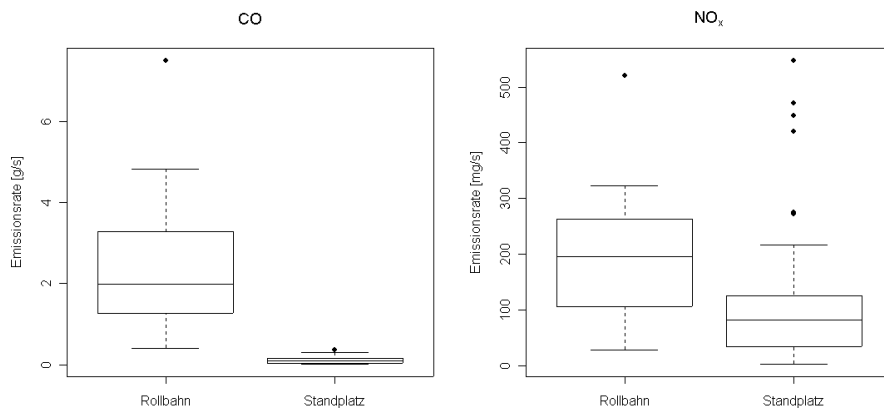


**Abbildung 5.4:** Emissionsraten der Rollbahnen (oben) und der Abfertigung (mitte) von CO für die 51 Fälle (auf der x-Achse). In der unteren Grafik sind die gemessene Windrichtung dargestellt, die für die inverse Modellierung verwendet wurden. Innerhalb des grauen Balkens (Windrichtung 240 - 300 °) befinden sich die Westwinde, die für den Versuchsaufbau erforderlich sind.

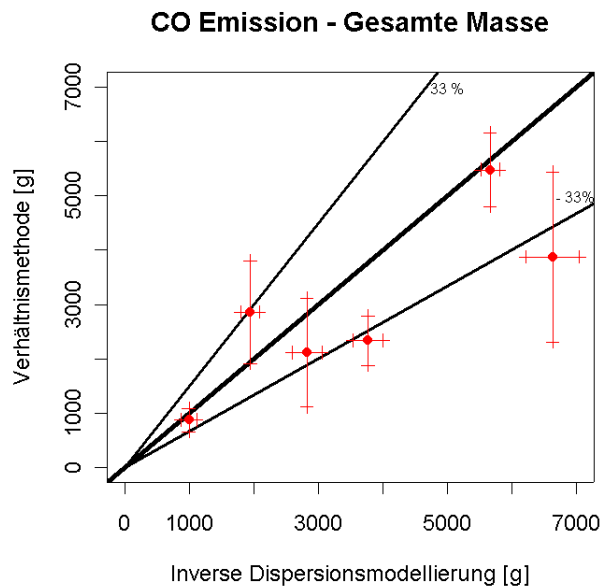
ert als das Wegrollen eines Flugzeuges, weswegen dieselbe Abfertigung während mehreren Mittelungsintervallen beobachtet werden konnte. Oftmals waren aber trotz Standplatzbelegung kaum Emissionsaktivitäten zu beobachten. Dies führt zu sehr geringen Emissionen und in der Statistik zu einer Verlagerung des Medians zu niedrigen Werten.

Wie in Abbildung 5.1 zu sehen ist, liegt der eine Standplatz (A44) sehr nahe an der Messstrecke "Abfertigung". Die Messstrecke schneidet sogar einen Teil des Emissionsgebietes. Wie bei den synthetischen Versuchen gezeigt, können Messung so nahen am definierten Emissionsgebiet zu Fehlern in der Emissionsberechnung aufgrund ungenügend aufgelöster räumlicher Emissionsstruktur führen. Abbildung 5.7 zeigt den Effekt der Belegung von Standplatz A44. Unter Berücksichtigung von Standplatz A44 zeigt sich eine Erhöhung der Emissionsrate zu höheren Werten. Eine Ausnahme bildet die CO Emission, wenn nur der Standplatz A44 berücksichtigt wurde. Allerdings sind in diesem Fall nur 6 Messungen vorhanden, was eine statistische Beurteilung der Daten schwierig macht. Für CO ergibt sich ohne Berücksichtigung von Standplatz A44 eine Halbierung der Emissionsraten, die nun zwischen 0.01 und 0.15 g/s variieren. Auch für diese Spanne lagen nur 6 Messungen vor, womit die Unsicherheit der Korrektur relativ groß ist. Eine geringfügig größere Anzahl an Werten (10 Messungen) finden sich bei der Auswertung von NO<sub>x</sub>. Hier variieren die Ergebnisse bei einem Ausschluss der Emissionen von Standplatzes A44 zwischen 2.9 und 122.0 mg/s. Auch für NO<sub>x</sub> findet sich eine Halbierung des Medians. Es muss aber hier noch einmal angemerkt sein, dass die Datenbasis bei einem Ausschluss von Standplatz A44 sehr gering ist, da dieser häufig belegt war und damit die Fälle ohne dessen Belegung selten waren.

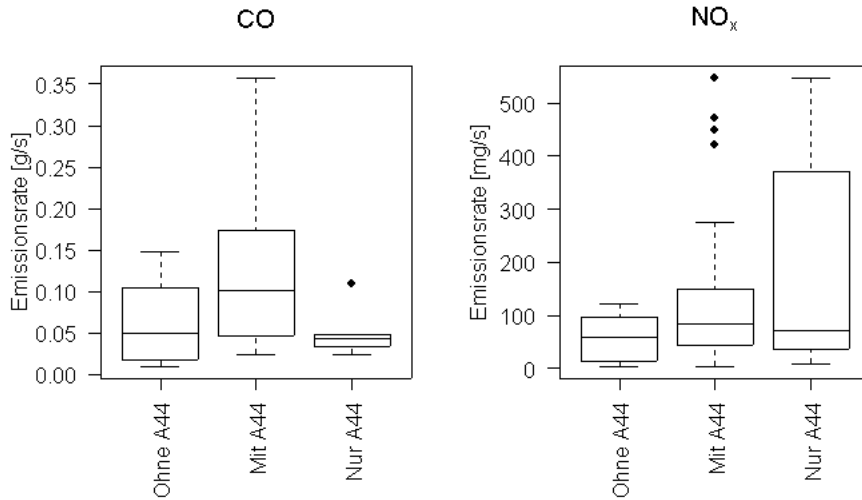
Die Ergebnisse der inversen Ausbreitungsmodellierung wurden oben dargestellt. Üblicherweise werden aber auf Flughäfen die Emissionen nicht gemessen, sondern mit Emissionsmodellen berechnet. Die Basis zur Bestimmung von



**Abbildung 5.5:** Zusammenfassung der Ergebnisse der pseudoinversen Methode für die Rollbahn und die Standplätze für alle berechneten Emissionsraten während der Messkampagne auf dem Flughafen Zürich. Gegeben sind jeweils Maximum und Minimum, sowie 1. 2. und 3. Quartil. Hierbei ausgeschlossene Extremwerte sind als Punkte dargestellt. Berechnungen dazu wurden mit der statistische Software R vorgenommen (R Development Core Team, 2003).



**Abbildung 5.6:** Vergleich der Flugzeugemissionen, die mit der inversen Dispersionsmodellierung bestimmt wurden, mit der Emissionsbestimmung mittels Verhältnismethode (siehe Text). Berücksichtigt wurden alle Fälle am Flughafen Zürich, für die beide Methoden angewendet werden konnten und für die Beobachtungen der Ereigniss auf dem Flughafen vorhanden waren.



**Abbildung 5.7:** Vergleich der Emissionsberechnung der Abfertigung mit und ohne Berücksichtigung des Standplatzes A44 für alle berechneten Fälle. Gegeben sind jeweils Maximum und Minimum, sowie 1. 2. und 3. Quartil. Hierbei ausgeschlossenen Extremwerte sind als Punkte dargestellt. Berechnungen dazu wurden mit der statistische Software R vorgenommen (R Development Core Team, 2003).

Flugzeugemissionen sind dabei die Daten der Internationalen Zivilluftfahrtbehörde (ICAO, 1993). Ein Vergleich der gemessenen Emissionen mit diese Daten kann durchgeführt, muss aber danach diskutiert werden, da die Aussagen des Vergleichs nur bedingt gültig sind. Der Vergleich zeigt eine maximale Unterschätzung der ICAO-Daten durch die inverse Modellierung um etwa den Faktor 4 und eine maximale Überschätzung um den Faktor 2.5. Die Mehrzahl der Vergleiche (10 von 16) zeigt eine Abweichung innerhalb von  $\pm 50\%$ . Diese große Variabilität rührt daher, dass die ICAO-Daten bei einem klar definierten Lastzustand gemessen werden, der nicht exakt dem in Realität anzutreffenden Verhältnissen entspricht. Vielmehr ist der reale Lastzustand beim Rollen variabel und hängt von einer Vielzahl von Einflussfaktoren ab. Es kann also nicht erwartet werden, dass die ICAO-Daten mit realen Emissionsindices perfekt übereinstimmen.

Bisher wurden lediglich Ergebnisse für NO<sub>x</sub> dargestellt. Gemessen wurde aber NO und NO<sub>2</sub> getrennt. Der Grund dafür liegt in einer möglichen "schnellen" chemischen Reaktion von NO zu NO<sub>2</sub>, die mit dem inversen Dispersionsmodell EMiL nicht berücksichtigt werden kann. Dennoch wurde die inverse Modellierung für diese beiden Komponenten getrennt durchgeführt, allerdings unter Vernachlässigung chemischer Umwandlungen. NO-Flugzeugemissionen sind geringer als deren NO<sub>2</sub>-Emissionen; der Median beträgt 63.9 g/s bzw. 83.5 g/s. Ein umgekehrtes Verhalten zeigen die Abfertigungsemissionen ohne Berücksichtigung des Standplatzes A44. Der Median von NO ist 22.6 mg/s und der von NO<sub>2</sub> ist 11.7 mg/s. Der Standplatz A44 wurde hier nicht nur wegen des oben beschriebenen Effektes der Quellparametrisierung ignoriert, sondern auch weil für eine Vergleichbarkeit eine gewisse Transportzeit nötig ist. Mit dem Ausschluss dieses

Standplatzes kann sichergestellt werden, dass die hohen NO-Emissionen nicht durch sehr nahe an der Messung gelegene Quellen hervorgerufen werden. Der beschriebene gegenteilige Effekt zwischen der Rollbahn und den Standplätzen tritt nicht nur im Median auf, sondern kann in allen betrachteten Kenngrößen (Minimum, Maximum, Quartile und Mittelwert) mehr oder weniger ausgeprägt beobachtet werden. Aus diesen Resultaten ist ersichtlich, dass das Verhältnis von emittierten NO zu NO<sub>2</sub> der Flugzeuge anders ist als bei Fahrzeugen, oder aber, dass die Chemie in den verschiedenen Abgasen wesentlich verschieden ist.

### 5.3 Flughafen Budapest

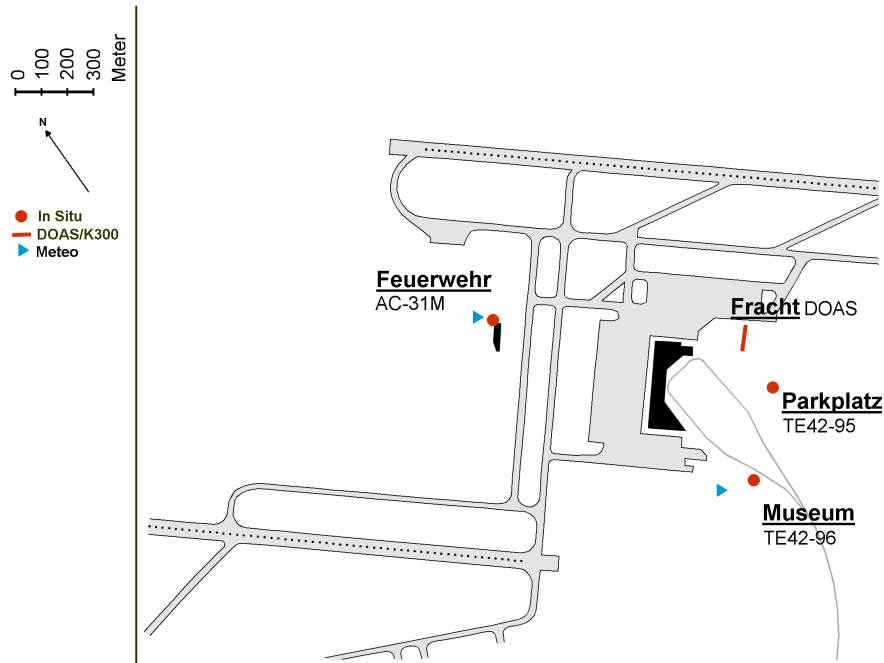
Der Flughafen Budapest Ferihegy liegt am südöstlichen Rand von Budapest, der Hauptstadt Ungarns. Er verfügt über zwei Terminals, sowie zwei Start- und Landebahnen. Während der Messkampagne wurde für den Passagierverkehr hauptsächlich das neuere Terminal 2 benutzt. Dieses liegt in der Mitte des Flughafengeländes. Andere Luftschadstoffquellen, die nicht zum Flughafen gehören, sind relativ weit entfernt (Stadtrand: 2.5 km, Fernstraße: 2 km). Im Jahr 2005 zählte der Flughafen Budapest etwa 8 Millionen Flugpassagiere bei 126'359 Flugbewegungen<sup>3</sup> und ist somit etwa halb so "groß" wie der Flughafen Zürich. Als Untersuchungsgebiet wird das Terminal 2 gewählt, da dieses zur Zeit der Messungen intensiv genutzt wurde und dort äußere Einflüsse der Stadt auf die Konzentrationen relativ gering sind. Die Umgebung des Flughafens ist flach. Erst nördlich von Budapest finden sich erste nennenswerte Erhebungen.

Im Frühjahr 2005 (12. - 27. April) wurde auf dem Flughafen Budapest eine Messkampagne durchgeführt. Unter anderem wurden Stickoxidkonzentrationen mit dem Ziel der inversen Emissionsratenbestimmung gemessen. Um die Vergleichbarkeit der verschiedenen eingesetzten Messsysteme zu bewerten, wurden zu Beginn der Messkampagne alle Geräte an einem Ort betrieben und die Ergebnisse miteinander verglichen. Während des zweiten Teils der Messkampagne wurden die Messgeräte an vier verschiedenen Standorten betrieben (Abbildung 5.8) und mit den gemessenen Konzentrationen die inverse Dispersionsmodellierung durchgeführt. Die Station "Feuerwehr" misst bei Nord-West- bis Süd-West-Winden die Hintergrundkonzentration, während an den Messorten "Fracht", "Parkplatz" und "Museum" in der belasteten Luft gemessen wurde.

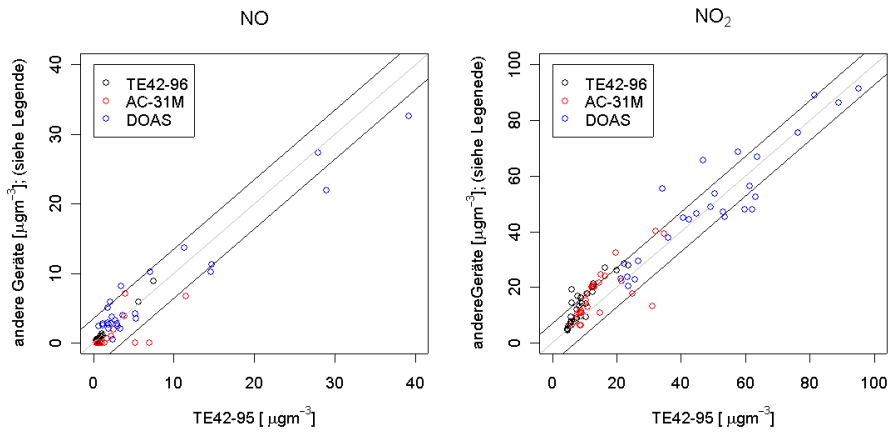
Der Vergleich der Messgeräte wurde am Standort "Museum" am 12. und 13. April und am 15. und 16. April am Standort "Feuerwehr" (ohne DOAS) durchgeführt. Zur Beurteilung der Vergleichbarkeit wurden die Differenzen der Stundenmittelwerte zwischen jeweils zwei Messgeräten gebildet, da auch die inverse Dispersionsmodellierung mit Stundenmittelwerten durchgeführt wurde. Der Mittelwert und die Standardabweichung dieser Differenz bieten nun die Möglichkeit die Vergleichbarkeit zu quantifizieren. Die größten Abweichungen dieses Vergleichs wurden zwischen den Geräten TE42-95 und TE42-96 ( $3.85 \pm 3.89 \mu\text{g m}^{-3}$ ) und zwischen dem DOAS und dem TE42-95 ( $-0.48 \pm 9.2 \mu\text{g m}^{-3}$ ) beobachtet. Im ersten Fall wurde der maximale Mittelwert und im zweiten die maximale Standardabweichung festgestellt. Ein Vergleich von NO und NO<sub>2</sub> getrennt ergibt für NO Abweichungen der Messgeräte zueinander innerhalb von  $5 \mu\text{g m}^{-3}$  und für NO<sub>2</sub> von  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  (siehe Abbildung 5.9).

<sup>3</sup>[http://www.bud.hu/index.nfo?tPath=/english/facts\\_and\\_figures/traffic\\_figures&prk=8205081261](http://www.bud.hu/index.nfo?tPath=/english/facts_and_figures/traffic_figures&prk=8205081261)





**Abbildung 5.8:** Terminal 2 des Flughafens Budapest und räumliche Anordnung der Messgeräte während der Messkampagne im April 2005. Neben der Namensgebung der Messstandorte ist auch das dort eingesetzte Messgerät angegeben.



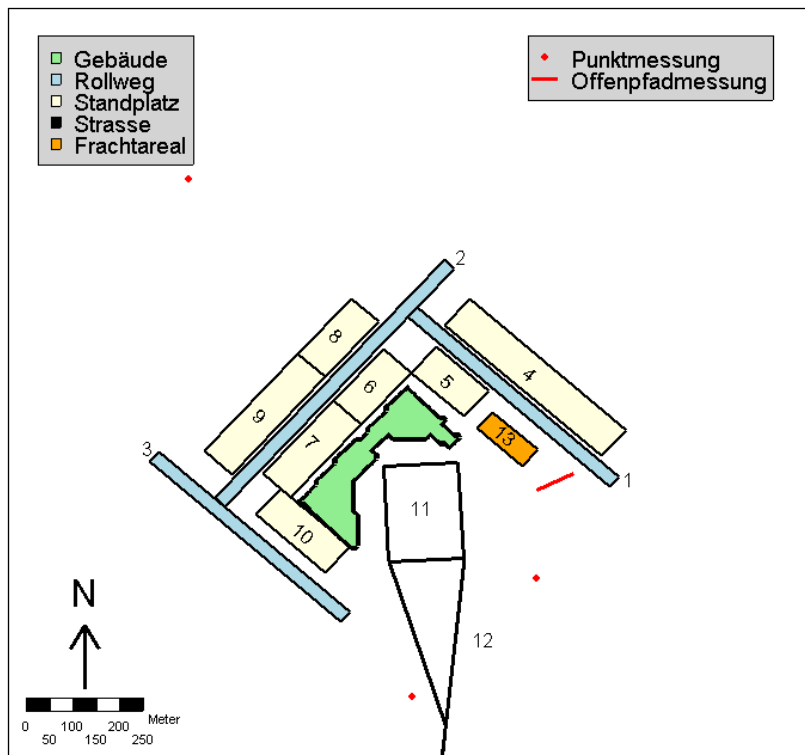
**Abbildung 5.9:** Vergleich des Messgerätes TE42-95 (x-Achse) mit den anderen eingesetzten  $\text{NO}_x$ -Messgeräten für (NO) und ( $\text{NO}_2$ ). Der Vergleich wurde am Anfang der Messkampagne vom 12. bis 16. April an den Standorten Museum und Feuerwehr vorgenommen. Die im Text beschriebenen Unsicherheiten von  $5 \mu\text{g m}^{-3}$  (NO) und von  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  ( $\text{NO}_2$ ) sind als durchgezogene Linie gegeben.

Gemessene Stundenmittelwerte von NO und NO<sub>2</sub> werden von Schäfer et al. (2006) diskutiert. NO-Konzentrationen bei der Messstation "Feuerwehr" waren jeweils am kleinsten (Mittelwert:  $1.1 \mu\text{g m}^{-3}$ ), und bei der "Fracht" am größten (Mittelwert:  $10.6 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Die beiden anderen Stationen wiesen Mittelwerte von  $3.2$  und  $3.9 \mu\text{g m}^{-3}$  auf. Die Differenzen zur "Feuerwehr"-Messung waren während West und Nordwestwinden am ausgeprägtesten. Unter solchen Bedingungen wurden an den anderen Stationen in der Abluft des Terminal 2 gemessen. Es konnte also ein Signal des Flughafens bestimmt werden. Die hohen Konzentration bei der Messstelle "Fracht" sind einerseits darauf zurückzuführen, dass an diesem Ort nur Messungen am Tag vorliegen, aber auch an der unmittelbaren Nähe des Frachtgeländes zur Messstation. NO<sub>2</sub> zeigt im allgemeinen ein ähnliches Verhalten mit Mittelwerten zwischen  $11.0 \mu\text{g m}^{-3}$  und  $35.3 \mu\text{g m}^{-3}$  (gemessen am Messort "Fracht"). Die größten Unterschiede zwischen den Messstationen treten aber während Ostwindbedingungen mit schwachen Windgeschwindigkeiten und einer maximalen Konzentration am Standort "Feuerwehr" auf ( $90.9 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Auch dies deutet auf den Einfluss des Flughafens hin. Aufgrund der schwachen Winde und der weiten Distanz dieser Messstation zu den Quellen, konnte innerhalb dieser relativ langen Zeitspanne bis zum Erreichen der Messstation alles emittierte NO zu NO<sub>2</sub> reagieren und dies führt so zu den hohen NO<sub>2</sub>-Konzentrationen. Bei schwachen Windbedingungen ist zudem die Durchmischung und Ausdünnung wegen kleinerer Turbulenzerzeugung geringer als bei starken Winden.

### 5.3.1 Durchführung der Inversion

Das Untersuchungsgebiet auf dem Flughafen Budapest, in dessen Zentrum das Terminal 2 liegt, ist etwa fünf mal größer als dasjenige auf dem Flughafen Zürich (Kapitel 5.2). Ein größeres Gebiet bedeutet aber auch ein Vielfaches an Quellen. Mit nur drei Messungen in der belasteten Luft und einer Messung zur Bestimmung der Hintergrundkonzentration wird das zu lösende inverse Problem unterbestimmt. Als Ansatz zur Lösung wurde deshalb die Bayes'sche Methode gewählt.

Die Vorwärtsmodellierung wird für den Flughafen Budapest mit dem Modell Austal2000 (Ingenieurbüro Janicke, 2004) durchgeführt. Insgesamt wurden 13 Quellregionen (Abbildung 5.10) definiert: Drei Rollbahnen (Quelle 1 bis 3), sieben Abfertigungsgebiete (Quelle 4 bis 10), eine Zubringerstraße zum Terminal 2 (Quelle 12), ein Parkplatz am Terminal 2 (Quelle 11) und ein Frachtgebiet (Quelle 13) nordöstlich des Terminals. Andere Quellen (insbesondere die Start- und Landebahnen) wurden nicht berücksichtigt, da sie alle relativ weit vom Terminal 2 entfernt sind und eine Berücksichtigung aller Quellen auf dem Flughafen die benötigte Rechenzeit unverhältnismäßig erhöht hätte. Nach der Definition der Quellgebiete müssen jene Fälle ausgesucht werden, für die die Invertierung durchgeführt werden soll. Als Grundlage zur Invertierung dienen Stundenmittelwerte der Konzentrationen. Einerseits mussten West oder Nordwestwinde vorherrschen, damit sichergestellt war, dass an der Messstation "Feuerwehr" unbelastete Luft gemessen wurde, andererseits wurden nur jene Fälle in Betracht gezogen, für die die Konzentrationsunterschiede an mindestens einer Station größer als  $5 \mu\text{g m}^{-3}$  für NO und größer als  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  für NO<sub>2</sub> waren. Zusätzlich wurden nur jene Fälle betrachtet, für die obige Bedingungen an mehreren Stunden hintereinander galten, damit eine zeitliche Entwicklung



**Abbildung 5.10:** Darstellung des Untersuchungsgebietes im Modell AUSTAL2000. Die Nummerierung der Quellen entspricht derjenigen im Text

der Emissionen betrachtet werden konnte. Diese Bedingungen wurden an drei Tagen erfüllt: Am 18. April (19:00 bis 23:00 Uhr), am 21. April (16:00 bis 19:00 Uhr und 22:00 bis 23:00 Uhr) und am 26. April (09:00 bis 19:00 Uhr - ohne 15:00 Uhr). Für diese 21 Stunden wurden jeweils einzeln eine Invertierung mit der Bayes'schen Methode durchgeführt.

Als nächstes müssen vor der Invertierung die a-priori Emissionsraten bestimmt werden. Dieser Wahl kommt spezielle Bedeutung zu, da das Ergebnis der inversen Methode nach Bayes entscheidend von dieser Wahl beeinflusst wird. Für die Rollbahn und Standplatzemissionen wurde jeweils eine a-priori Emissionsrate pro Flugzeug definiert. Diese wurde dann für den Einzelfall mit der Anzahl der Flugzeuge in der Quellregion multipliziert, um die verwendete a-priori Emissionsrate zu berechnen. Daten über den Verkehr auf dem Vorfeld wurden von der Flughafenverwaltung zur Verfügung gestellt. Landenden Flugzeuge wurden mit der Zeit der Landung und der Zeit des Andockens am Standplatz erfasst, startende Flugzeuge mit der Zeit des Abdockens und der des Starts. Zusätzlich wurde der Standplatz und die Start-/Landebahn erfasst. Mit diesen Daten konnte eine Aktivität pro Rollbahn und pro Standplatz definiert werden. Als Basis zur Bestimmung der a-priori Emissionsraten pro rollendem oder abgefertigtem Flugzeug dienten die Resultate der Messkampagne in Zürich.  $\text{NO}_x$ -Emissionen der Flugzeuge waren etwa  $160 \pm 68 \text{ mg/s}$ . Diese Werte gelten so aber nur für Zürich und sind als Halbstundenmittelwerte zu betrachten. Die gesamte emittierte Masse  $\text{NO}_x$ , basierend auf den eben genannten Emissionsraten, ist pro Flugzeug  $288 \pm 122 \text{ g}$ . Zur Anwendung dieser Zahl für den Flughafen Budapest ist eine Umrechnung des Wertes in eine Emissionsrate erforderlich. Die Länge der Rollbahn und die Dauer der Emission (abhängig von der Geschwindigkeit des Flugzeuges) sind die entscheidenden Einflussgrößen. Da die Rollbahn etwa doppelt so lang wie in Zürich ist, die Emissionsdauer aber kürzer (da die Flugzeuge hauptsächlich rollen, während in Zürich die Flugzeuge lange still gestanden sind), wird zur Bestimmung des A-priori von derselben emittierten Masse ausgegangen.

Für die Standplatzemissionen wurde in Zürich ein Median von  $80 \text{ mg/s}$  und ein drittes Quartil von  $180 \text{ mg/s}$  bestimmt. Da keine anderen Informationen über allenfalls andersartige Abfertigung der Flugzeuge in Budapest vorlagen wurde die a-priori Emissionsrate direkt aufgrund dieser Werte festgelegt. Die Bestimmung der a-priori Emissionsraten für den Parkplatz und die Strasse waren ungleich schwieriger, da weder Informationen über die Verkehrsdichte noch über die Fahrzeugzusammensetzung verfügbar waren. Ausgehend von 0.2 bis  $2 \text{ g/km NO}_x$ -Emissionen, wie sie im EMEP/CORINAIR - Emissionsinventar (European Environment Agency, 2005) für benzinbetriebene Personenwagen bei einer Geschwindigkeit von  $50 \text{ km/h}$  zu finden sind, wurden die a-priori Emissionsraten geschätzt. Diese Schätzung ist aber sehr willkürlich, insbesondere für das Parkplatzareal. Die a-priori Emissionsraten für das Frachtareal wurde in einer ersten Näherung gleich demjenigen für Abfertigungsgelände gesetzt, da ähnlich Fahrzeuge zu den Emissionen beitragen. Aufgrund der unbekanntem Intensität wurde aber auch die Unsicherheit wesentlich höher gewählt.

Wie sich in der Diskussion der Resultate zeigen wird, führte diese teilweise sehr willkürliche Wahl der a-priori Emissionsraten teilweise zu relativ großen Unterschieden zwischen modellierter und gemessener Konzentration. Aus diesem Grund wurden noch zwei weitere a-priori Emissionsraten zur Berechnung verwendet (Tabelle 5.2).

**Tabelle 5.2:** Die drei verschiedenen a-priori Emissionsraten, die für den Flughafen Budapest verwendet wurden.

Quelle	Versuch A [mg/s]	Versuch B [mg/s]	Versuch C [mg/s]
Rollbahn 1 (pro Flugzeug)	61 ± 61	40.7 ± 40.7	40.7 ± 40.7
Rollbahn 2 (pro Flugzeug)	77 ± 77	51.3 ± 51.3	51.3 ± 51.3
Rollbahn 3 (pro Flugzeug)	58 ± 58	38.7 ± 38.7	38.7 ± 38.7
Standplatz (pro Flugzeug)	100 ± 100	20 ± 50	20 ± 50
Straße	100 ± 100	150 ± 100	300 ± 300
Parkplatz	300 ± 300	500 ± 300	1700 ± 1700
Fracht	100 ± 400	300 ± 300	500 ± 500

In Abweichung von der ersten Wahl der a-priori Emissionsraten (Versuch A) wurde in einem ersten Schritt die Emissionsrate pro Flugzeug (Standplatz und den Faktor 1.5 und Rollbahn um den Faktor 5) verringert. Die Größe der Verringerung der a-priori Emissionsraten wurde aufgrund der ersten Invertierung vorgenommen. Die Verwendung dieses zweiten Satzes a-priori Emissionsraten (Versuch B) konnte aber immer noch nicht in allen Fällen eine befriedigende Übereinstimmung zwischen gemessener und modellierter Konzentration erzeugen. Die a-priori Emissionsrate für die Straße, den Parkplatz und die Fracht waren dabei zu niedrig und eine angemessene Anpassung an die Messungen deshalb nicht möglich. In einem dritten Schritt (Versuch C) wurden also auch diese a-priori Emissionsraten und deren Unsicherheit erhöht.

Als letzter Schritt vor der Invertierung muss die Unsicherheit der Messungen definiert werden. Da verschiedenartige Messsysteme verwendet wurden, wurde nicht die messgerätspezifische Unsicherheit der Messung gewählt, sondern die Unsicherheit, die sich beim Vergleich der Messgeräte untereinander ergibt. Nach diesem Vergleich wird als Messunsicherheit (Standardabweichung) an der Messstation "Museum" ein Wert von  $5 \mu\text{g m}^{-3}$ , an der Messstation "Parkplatz" von  $8 \mu\text{g m}^{-3}$  und an der Station "Fracht" von  $11 \mu\text{g m}^{-3}$  gewählt.

### 5.3.2 Ergebnisse der inversen Modellierung

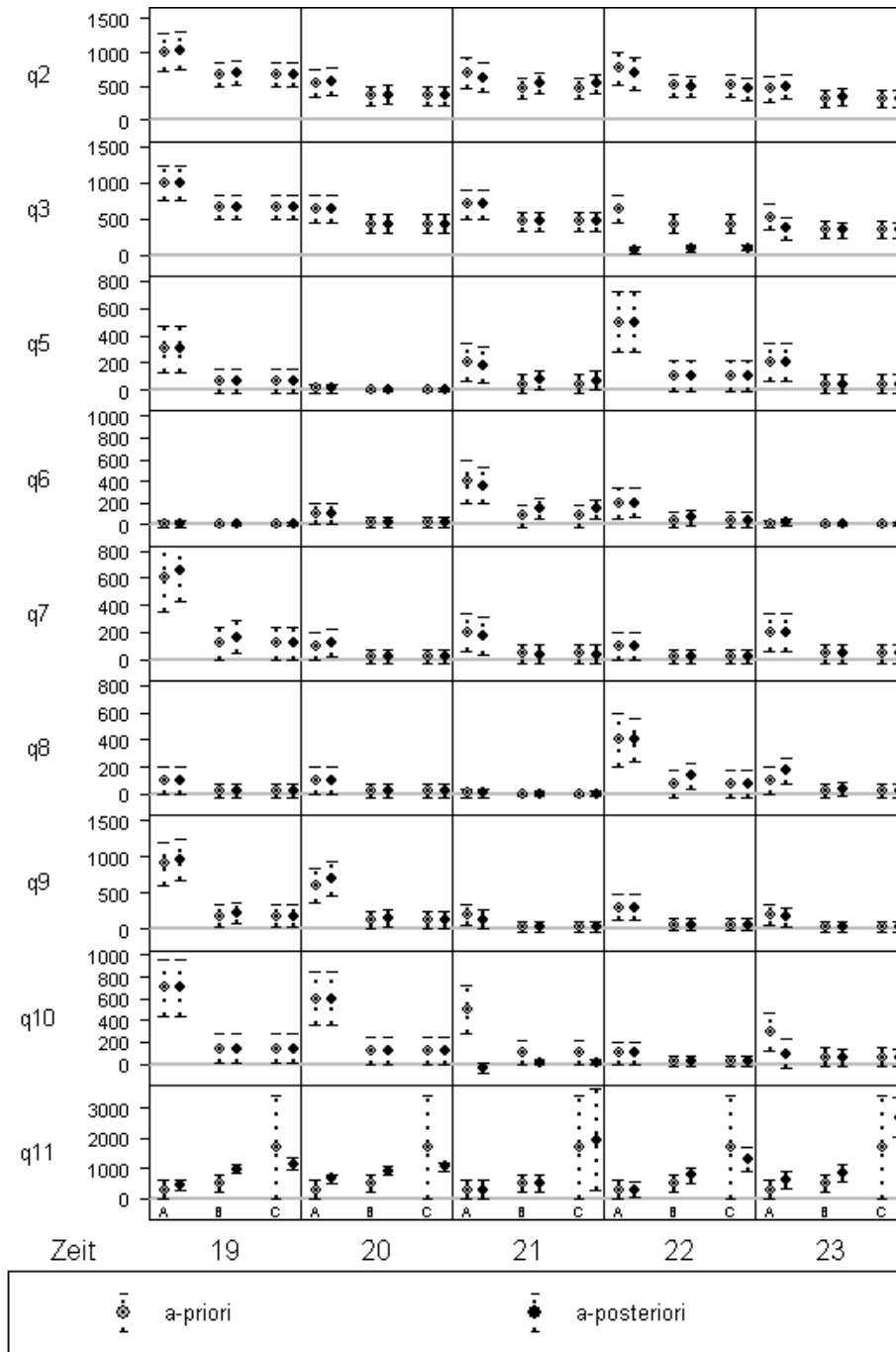
Die nun folgende Präsentation der Ergebnisse beschränkt sich nicht nur auf Emissionsraten. Zusätzlich werden auch die dazugehörigen Werte der Resolutionsmatrix und der Korrelationsmatrix vorgestellt, um eine Bewertung der Re-

sultate zu ermöglichen. Bei der Invertierung mit der Bayes'schen Methode wird ein Vorwissen aufgrund der Messungen angepasst. Als Ergebnis erhält man für jede Quelle eine Emissionsrate. Die so berechnete Emissionsrate kann durch die Konzentrationsmessung oder durch das a-priori Wissen dominiert werden. Dies zu bestimmen ist die entscheidende Frage, die mit der Resolutionsmatrix beantwortet werden soll und deren Beantwortung zu jeder Interpretation der Ergebnisse der Bayes'schen Invertierung gehören. Deshalb sei hier nochmals die Bedeutung dieser beiden Matrizen (Korrelations- und Resolutionsmatrix) erläutert. Die Resolutionsmatrix ist eine quadratische Matrix, deren Anzahl Spalten und Zeilen der Anzahl der Quellen entspricht. Sie ist ein Maß für den Informationsgehalt, der in den Messungen über die Emissionsraten enthalten ist. Bei einer "perfekten" Berechnung entspricht die Resolutionsmatrix einer Diagonalmatrix auf deren Diagonalen nur Einsen stehen. Kleine Werte hingegen stehen für einen geringen Informationsgewinn durch die Invertierung für diese Quelle und die berechnete Emissionsrate wird ähnlich der a-priori Emissionsrate sein. Um die Diskussion zu erleichtern, wird das  $i$ -te Diagonalelement der Resolutionsmatrix im folgenden Resolution der Quelle  $i$  genannt. Das  $k$ -te Element der  $i$ -ten Zeile beschreibt den Einfluss von Quelle  $k$  auf die Berechnung der Emissionsrate  $i$ . Im folgenden bedeutet also der Hinweis auf die Zeilen der Resolutionsmatrix, dass die Höhe des Einflusses anderer Quellen betrachtet wird. Hohe Werte der nicht-diagonalen Elemente deuten auf eine Abhängigkeit der Quellstärkenschätzung von anderen Quellen hin und die Wahl der a-priori Emissionsraten ist möglicherweise von großer Bedeutung.

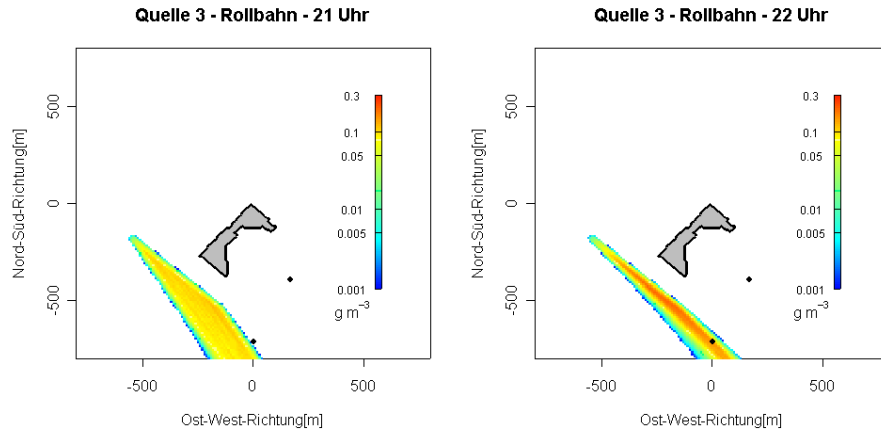
Im folgenden werden nur jene Resultate besprochen, deren Resolution groß genug ist, um von einer Beeinflussung des Resultats durch die Messung auszugehen. Bei der Präsentation der Ergebnisse am 18. April werden nicht nur die Ergebnisse vorgestellt, sondern auch die Bedeutung der a-priori Emissionsraten anhand zweier Beispiele dargelegt. Auf diese ausführliche Diskussion wird bei den Ergebnissen vom 21. und 26. April verzichtet, da die Zusammenhänge äquivalent sind.

### 5.3.2.1 18. April

Für den 18. April weisen die  $\text{NO}_x$ -Emissionsraten der Quellen 3 (Rollbahn), 10 (Standplatz) und 11 (Parkplatz) eine hohe Resolution auf und können somit bestimmt werden. Wie in Abbildung 5.11 ersichtlich wird, ist das Ergebnis der Invertierung — die a-posteriori Emissionsrate — zum Teil ähnlich oder gleich der a-priori Emissionsrate, teilweise weichen diese aber stark ab. Für Quelle 3 (Rollbahn) ergibt sich keine Änderung während der Invertierung um 19, 20 und 21 Uhr, aber eine solche wird um 22 und 23 Uhr beobachtet. In den ersten drei Fällen beeinflusst die Quelle 3 keine der Messungen, während in den zwei anderen Fällen die Windverhältnisse dazu führen, dass die Abgase der Quelle zu einer Messstation transportiert werden, was zu einer Verbesserung der a-priori Emissionsraten aufgrund von Konzentrationsmessungen führt (Abbildung 5.12). Um 23:00 Uhr beobachtet man für die  $\text{NO}_x$ -Emissionsrate der Quelle 3 eine schwache Änderung gegenüber des a-priori Versuchs A ( $369 \pm 153 \text{ mg/s}$ ), während für Versuch B und C kaum eine Anpassung stattfindet. Um 22 Uhr sind die Emissionsrate der Quelle 3  $66 \pm 43 \text{ mg/s}$  (Versuch A),  $92 \pm 39 \text{ mg/s}$  (Versuch B) und  $95 \pm 39 \text{ mg/s}$  (Versuch C). Die Resolution für diese Quelle ist mit einem Wert von jeweils  $> 0.9$  sehr gut. Die restlichen Quellen haben kaum



**Abbildung 5.11:** A-priori und a-posteriori Emissionsraten am 18. April (in mg/s) für ausgewählte Quellen und für die drei a-priori Versuche A, B und C. Ein kleines Quadrat zeigt jeweils die Emissionsraten mit Standardabweichung (y-Achse) für die drei a-priori Versuche (x-Achse). Dargestellt sind die a-priori Werte (grau) und die a-posteriori Werte (schwarz).

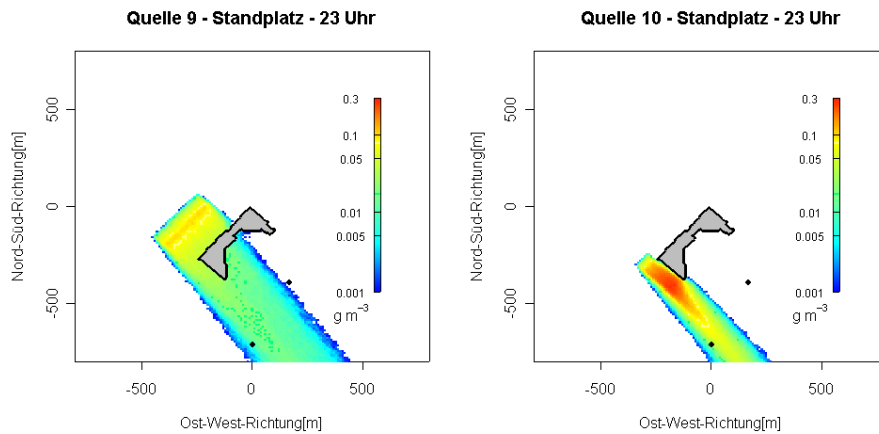


**Abbildung 5.12:** Modellerte Konzentrationsverteilung für Quelle 3 (Rollbahn) mit den meteorologischen Bedingungen vom 18. April. Basis der Modellierung ist eine Emissionsrate von 1 kg/s. Um 21 Uhr hat die Rollbahn keinen Einfluss auf die Messung, um 22 Uhr aber schon.

einen Einfluss auf diese Schätzung. Alle anderen Elemente der dritten Zeile der Resolutionsmatrix sind kleiner 0.1. Trotzdem zeigt sich in dem Ergebnis eine Korrelation von -0.48 (Versuch A) und -0.34 (Versuch B und C) zu Quelle 2, was aber aufgrund der Resolutionsmatrix eher auf eine Abhängigkeit der Berechnung von Quelle 2 vom Resultat der Quelle 3 hindeutet als umgekehrt.

$\text{NO}_x$ -Emissionsraten für Quelle 10 (Standplatz) können um 21 und 23 Uhr bestimmt werden. Um 23:00 gilt ähnliches wie für Quelle 3. Eine deutliche Anpassung findet sich nur gegenüber a-priori Versuch A ( $94 \pm 131 \text{ mg/s}$ ), während für Versuch B und C die Änderung gegenüber dem a-priori nur gering ist (a-priori:  $60 \pm 87 \text{ mg/s}$ ; a-posteriori:  $54 \pm 77 \text{ mg/s}$ ). Um 21:00 beobachtet man im Versuch A eine negative Emissionsrate ( $-41 \pm 48 \text{ mg/s}$ ), die sich in den Versuchen B und C auf einen positiven Wert ( $14 \pm 27 \text{ mg/s}$ ) mit einer Resolution von größer als 0.9 ändert. Dieses Verhalten muss erklärt werden, insbesondere die negative Emissionsrate. Die Ergebnisse der Quelle 10 wird durch die Quelle 9 beeinflusst, was durch die hohen Korrelation der beiden Quellen zueinander bestätigt wird (Versuch A: -0.85 bzw. Versuch B/C: -0.76). Physikalisch liegt der Grund dieser Korrelation daran, dass die beiden Quellen relativ zur Windrichtung hintereinander liegen und somit die gleiche Messung beeinflussen (Abbildung 5.13). Quelle 10 liegt bedeutend näher an den Messorten als Quelle 9. Emissionen der Quelle 10 haben also einen größeren Einfluss auf die modellierten Konzentrationen, als Emissionen der Quelle 9. Dies bedeutet aber auch, dass die a-posteriori Emissionsrate von Quelle 10 stärker vom A-priori abweicht als jene von Quelle 9. Um die gleiche Änderung in der modellierten Konzentration zu erreichen (im Vergleich zur Modellierung mit a-priori Emissionsraten) ist für Quelle 10 eine geringere Anpassung vom A-priori nötig als für Quelle 9, weswegen die resultierende Änderung der Quelle 10 größer ist. Die niedrigere a-priori Emissionsrate der Standplätze in den Versuchen B und C führt dazu, dass deren Anpassung für Quelle 10 nicht mehr so groß ist, wie im Versuch A

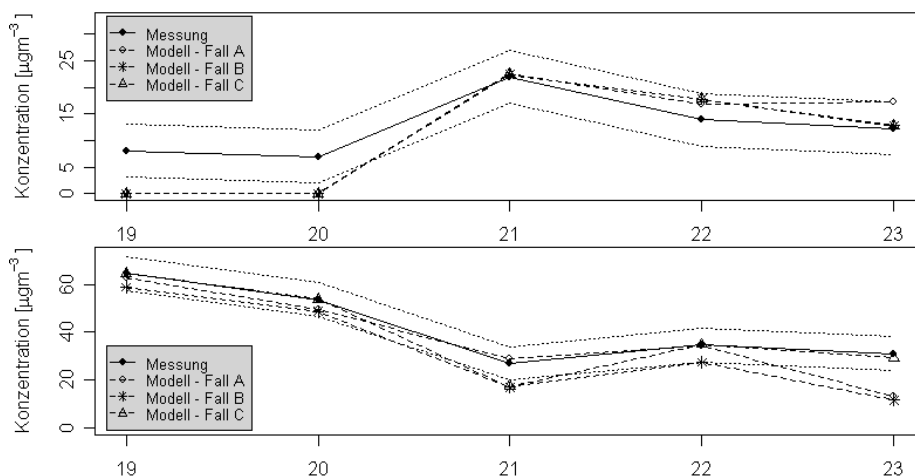




**Abbildung 5.13:** Modellierter Konzentrationsverteilung für zwei Abfertigungsquellen mit den meteorologischen Bedingungen vom 18. April 23:00 Uhr. Basis der Modellierung ist eine Emissionsrate von 1 kg/s. Quelle 10 liegt in Windrichtung hinter Quelle 9, wodurch sie einen größeren Einfluss auf die Messungen ausübt.

und somit die negative a-posteriori Emissionsrate verschwindet. Zusätzlich zu der relativ starken Korrelation mit Quelle 9 bestehen schwächere Korrelationen von Quelle 10 mit Quelle 2 (-0.23 bzw. -0.27) und Quelle 7 (-0.39 bzw. -0.35). Die Bestimmung der  $\text{NO}_x$ -Emissionsrate der Quelle 10 ist um 21:00 Uhr also nicht unabhängig von anderen Quellen möglich.

Die Bestimmung der  $\text{NO}_x$ -Emissionsrate von Quelle 11 (Parkplatz) ist um 19, 20, 22 und 23 Uhr möglich, zeigt aber eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Wahl der a-priori Emissionsrate. Um 19 Uhr verändert sich die berechnete Emissionsrate von  $455 \pm 178$  mg/s (Versuch A - Resolution: 0.61) über  $982 \pm 153$  mg/s (Versuch B - Resolution: 0.74) zu  $1158 \pm 177$  mg/s (Versuch C - Resolution: 0.99). Die hohe Resolution im letzten Fall ist mit einer großen Unsicherheit der a-priori Emissionsrate erkauft. Diese lässt eine große Variation der berechneten Emissionsrate zu, weshalb die modellierte Konzentration optimal an die gemessene angepasst werden kann. Diese Flexibilität führt dazu, dass die Lösung von der Wahl anderer a-priori Emissionsraten abhängt. In der 11. Zeile der Resolutionsmatrix sind die Einflüsse der anderen Quellen auf die berechnete Emissionsrate der Quelle 11 ersichtlich. Dieser Einfluss steigt bei Quelle 7 von 0.34 (Versuch A) auf 0.56 (Versuch C) und bei Quelle 9 von 0.24 (Versuch A) auf 0.38 (Versuch C). Somit kann zwar Quelle 11 geschätzt werden, aber nicht unabhängig von anderen Emissionen. Um 20 Uhr zeigen sich ähnliche Zusammenhänge wie die eben besprochenen. Die Emissionsraten sind im Versuch A  $656 \pm 159$  mg/s und im Versuch C  $1053 \pm 162$  mg/s. Um 22 Uhr wird für Quelle 11 und Versuch A nur eine Resolution von 0.21 erreicht. Wendet man aber die a-priori Emissionsrate des Versuchs C an, erhöht sich die die Resolution auf 0.94 (Emissionsrate:  $1308 \pm 407$  mg/s). Wie bereits zuvor ist auch in diesem Beispiel eine Schätzung der Emissionsrate erst möglich, wenn der a-priori Emissionsrate eine genügend große Unsicherheit zugeordnet wird. Die Emissionsberechnung ist hier aber sehr stark von den Quellen 6 und 8 abhängig (Einfluss aus der Reso-



**Abbildung 5.14:** Vergleich gemessener mit modellierter Konzentration am 18. April für die drei verschiedenen a-priori Emissionsraten. Die Uhrzeit [MEZ] der berechneten Fälle ist auf der x-Achse aufgetragen. Die gepunktete Linie gibt den Messfehler wieder, der bei der Invertierung den Messungen zugeordnet wurde.

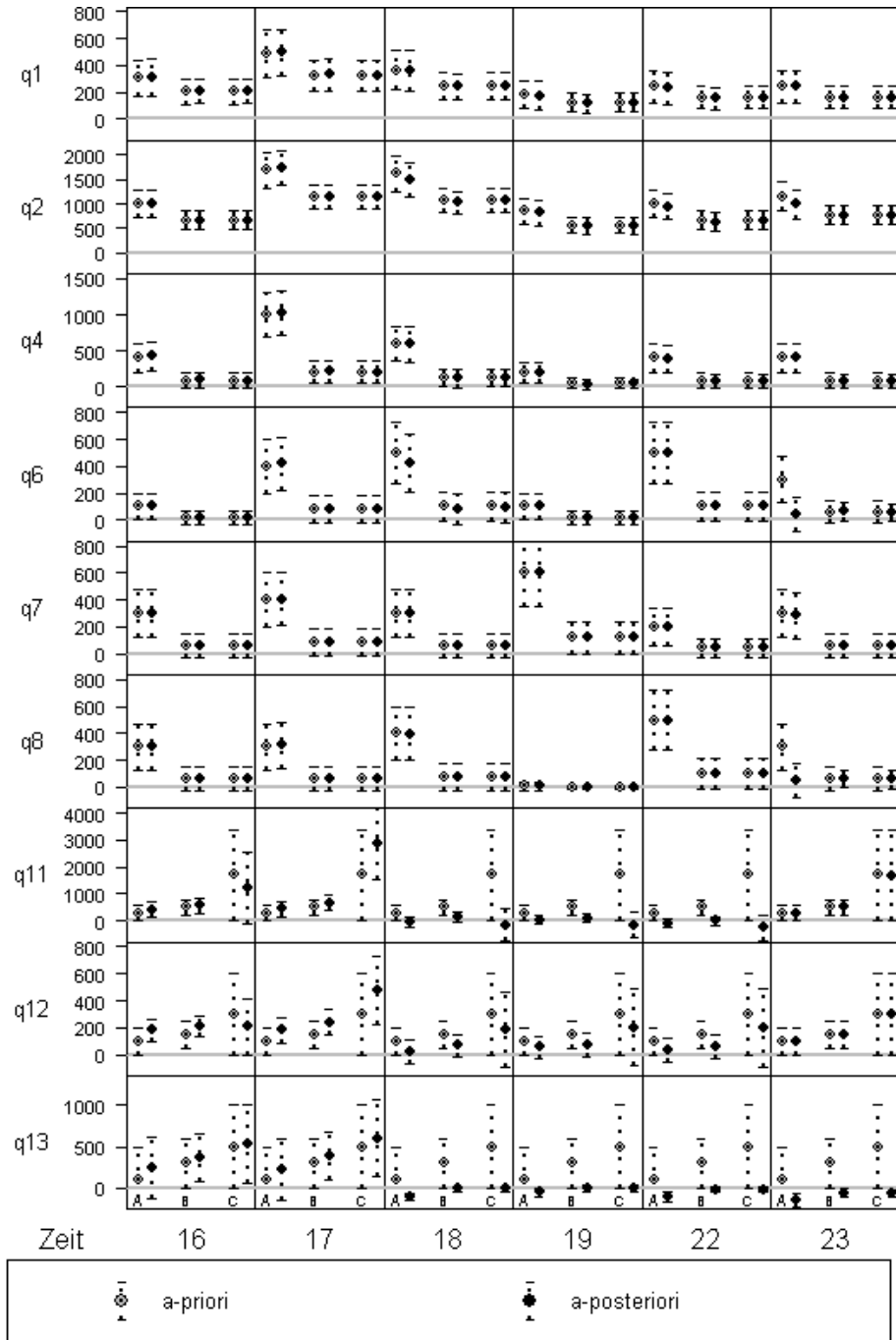
lutionsmatrix von 1.65 und 1.79). Die berechneten Emissionsraten der Quellen 6 und 8 weichen im Versuch C kaum von der a-priori Wahl ab. Die Anpassung der Emissionsrate zur Anpassung der modellierten Konzentration an die gemessene erfolgt also praktisch ausschließlich durch Anpassung der Quelle 11. Es kann abschließend nicht gesagt werden, ob der Quelle 11 tatsächlich eine so hohe Emissionsrate zuzuordnen ist, oder aber ob die Quellen 6 und/oder 8 zu diesem Zeitpunkt außerordentlich stark emittierten. Das gleiche wie um 22 Uhr gilt auch für die Bestimmung der Emissionsrate der Quelle 11 um 23 Uhr, deren Emissionsrate für den Versuch C  $2692 \pm 653$  mg/s beträgt.

Nach der Präsentation der  $\text{NO}_x$ -Emissionsraten bleibt nur die Frage, ob die modellierten mit den gemessenen Konzentrationen übereinstimmen und was für einen Einfluss das Ändern der a-priori Emissionsraten auf die Messungen hat. Die Auswirkung, die diese Anpassungen auf die modellierte Konzentration haben, sind relativ gering (Abbildung 5.14). Als erstes fällt aber auf, dass um 19 und 20 Uhr die modellierte Konzentration am Museum null ist. Das Modell hat in diesen beiden Fällen keinen Einfluss auf den Messort. Woher kommt das? Zu diesen beiden Stunden waren südwestliche Winde vorherrschend. Zwar nicht in unmittelbarer Nähe zum Untersuchungsgebiet, aber in etwa 1 km Entfernung liegen die Werftanlagen und Terminal 1 des Flughafens Budapest. Es erscheint deshalb wahrscheinlich, dass diese Belastung von einer nicht berücksichtigten Quelle stammt. Bei westlich und nordwestlichen Winden besteht dieses Problem nicht mehr, da davon ausgegangen werden kann, dass die Hintergrundbelastung am Messort Feuerwehr relativ homogen verteilt ist. Für die restlichen Fälle stimmt im allgemeinen die modellierte Konzentration mit der gemessenen überein, mit der Ausnahme der Messung am Parkplatz um 23 Uhr. Zu diesem Zeitpunkt ist nur die modellierte Konzentration des a-priori Versuchs C in der Lage, eine sehr gute Übereinstimmung zu erzielen.

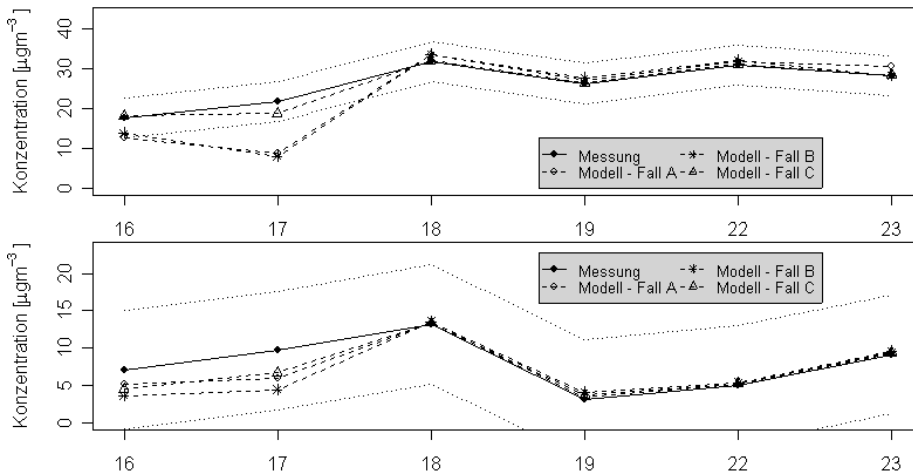
**5.3.2.2 21. April**

Die Ergebnisse der Invertierung für den 21. April sind in Abbildung 5.15 dargestellt. Auf Grund der Messungen wurden  $\text{NO}_x$ -Emissionsraten der Quellen 6 (Standplatz), 8 (Standplatz), 11 (Zubringerstrasse), 12 (Parkplatz) und 13 (Fracht) berechnet. Die Interpretation ist jedoch nicht mehr so eindeutig wie am 18. April. Die Emissionen der Quelle 6 und 8 um 23 Uhr können nicht unabhängig voneinander bestimmt werden, was sich an den hohen negativen Korrelationen von -0.83 (Versuch B) bis -0.62 (Versuch C) und an den Zeilen der Resolutionsmatrix erkennen lässt. Der Einfluss von Quelle 6 auf die Schätzung der Quelle 8 und umgekehrt, der Einfluss von Quelle 8 auf die Berechnung von Quelle 6, beträgt zwischen 0.39 und 0.45 (Werte der Resolutionsmatrix). Dies ist ähnlich groß wie die Resolution selbst, die für die beiden Quellen zwischen 0.37 und 0.47 variiert. Die Versuche B und C mit einer verminderten a-priori Emissionsrate führen zu ähnlichen Ergebnissen wie Versuch A. Aber das Ergebnis ist jeweils näher an der a-priori Wahl der Versuche B und C als bei Versuch A. Dies ist ein weiteres Indiz dafür, dass die niedrigere a-priori Wahl der Standplätze angebracht ist.

Die Bestimmung der Emissionsraten von Quelle 11 und 12 zeigt einerseits sehr hohe  $\text{NO}_x$ -Emissionen in den ersten beiden Stunden (16 und 17 Uhr), andererseits sehr niedrige Emissionen für die restlichen Stunden. Die höchste Resolution wird jeweils für den Versuch C erreicht, wenn mit hohen a-priori Emissionsraten und großen Unsicherheiten gerechnet wurde. In den ersten beiden Stunden ist für den a-priori Versuch C die Emissionsrate der Quelle 11 sehr stark von derjenigen von Quelle 12 abhängig (Wert in der 11. Zeile der Resolutionsmatrix von 2.5 (16 Uhr) und 1.9 (17 Uhr)). Die Resolution für Quelle 12 beträgt um 16 Uhr 0.51 und um 17 Uhr 0.3 und für Quelle 11 0.39 (16 Uhr) und 0.38 (17 Uhr). Dementsprechend ist eine absolute Bestimmung der Emissionsraten dieser Quellen schwierig, da diese große Abhängigkeiten untereinander aufweisen. Die Bedeutung der Wahl des a-priori Versuchs C wird aber deutlich beim Vergleich der gemessenen mit der modellierten Konzentration. Die Unterschiede sind für den Versuch C bedeutend geringer, als für den Versuch A oder B, insbesondere um 17 Uhr (Versuch A und B :  $13 \mu\text{g m}^{-3}$ ; Versuch C:  $3 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Im Prinzip gilt dasselbe auch für die drei folgenden Stunden (18, 19 und 22 Uhr). Die Emissionsrate der Quelle 11 ist aber sehr nahe an null oder wird sogar negativ (jeweils Versuch C). Ein Blick auf die Resolution von Quelle 11 für diese drei Stunden zeigt, dass diese im Versuch A immer größer ist als 0.58 und im Versuch C sogar immer größer als 0.88. Die Korrelation von Quelle 11 mit Quelle 12 ist für alle Fälle kleiner als -0.72. Die negativen Emissionsraten der Quelle 11 werden also durch die hohe Korrelation mit Quelle 12 erklärt, deren Emissionsraten immer positiv sind. Da der Einfluss von Quelle 11 auf die Messung aber größer ist, als derjenige von Quelle 12, wird auch die Anpassung von Quelle 11 nach der Invertierung größer sein und Quelle 12 wird mehr oder weniger an der a-priori Emissionsrate "festgebunden". Auch wenn aufgrund der hier beschriebenen Ergebnisse und der hohen Korrelationen keine Quantifizierung der Emission von Quelle 11 und 12 möglich ist (Dazu wäre eine Information über das Verhältnis der beiden Emissionsraten zueinander nötig), kann eine klare Verbesserung der modellierten Konzentration (Abbildung 5.16) für den a-priori Versuch C beobachtet werden. Dies ist ein deutlicher Hinweis, dass die Erhöhung der a-priori Emissionsraten gerechtfertigt war, insbesondere,



**Abbildung 5.15:** A-priori und a-posteriori Emissionsraten am 21. April (in mg/s) für ausgewählte Quellen und für die drei a-priori Versuche A, B und C. Ein kleines Quadrat zeigt jeweils die Emissionsraten mit Standardabweichung (y-Achse) für die drei a-priori Versuche (x-Achse). Dargestellt sind die a-priori Werte (grau) und die a-posteriori Werte (schwarz).



**Abbildung 5.16:** Vergleich gemessener mit modellierter Konzentration am 21. April für die drei verschiedenen a-priori Emissionsraten. Die Uhrzeit [MEZ] der berechneten Fälle ist auf der x-Achse aufgetragen. Die gepunktete Linie gibt den Messfehler wieder, der bei der Invertierung den Messungen zugeordnet wurde.

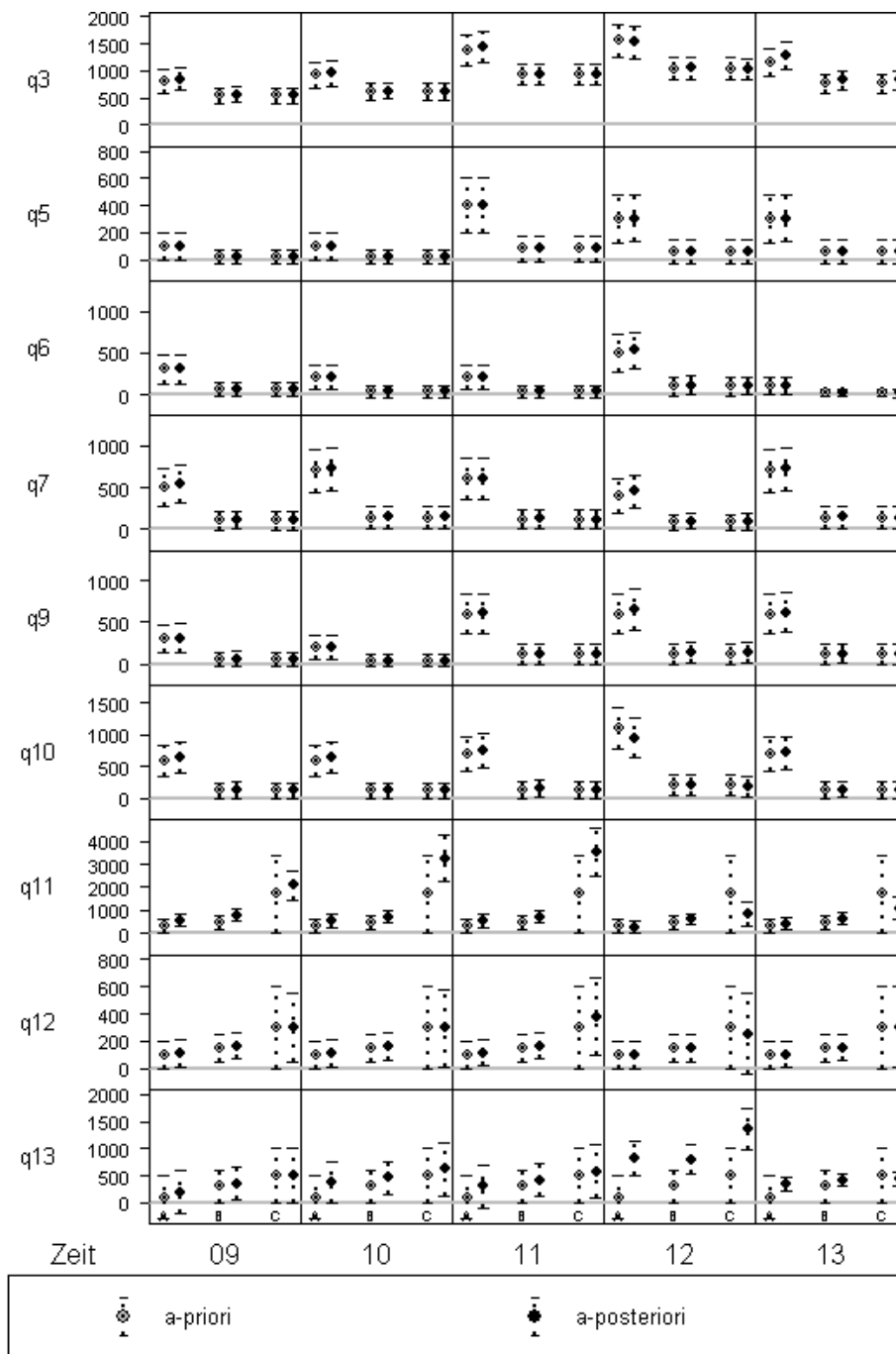
da eine Anpassung an niedrigere Emissionen stattfindet, wie die Ergebnisse um 18, 19 und 22 Uhr zeigen.

Die NO<sub>x</sub>-Emissionsraten der Quelle 13 zwischen 18 und 23 Uhr sind alle negativ (Minimum:  $-144.75 \pm 80.69$  mg/s für den Versuch C um 23 Uhr). Die Berechnung zeigt aber für diese Fälle immer eine hohe Korrelation mit anderen Quellen. Für die Stunden 18, 19 und 22 Uhr ist dies Quelle 4 mit Korrelationen kleiner als -0.49 (meistens  $< -0.8$ ). Um 23 Uhr tritt die Korrelation mit Quelle 5 auf und ist immer kleiner als -0.9. Quelle 13 beeinflusst den Messort "Parkplatz". An diesem Ort wurden sehr geringe Konzentrationsunterschiede im Vergleich zum Hintergrund gemessen (Abbildung 5.16), die meistens sogar kleiner waren als die Messunsicherheiten (siehe Kapitel 5.3.1). Es kann also davon ausgegangen werden, dass Quelle 13 zu diesen Zeitpunkten nicht oder nur schwach emittierte.

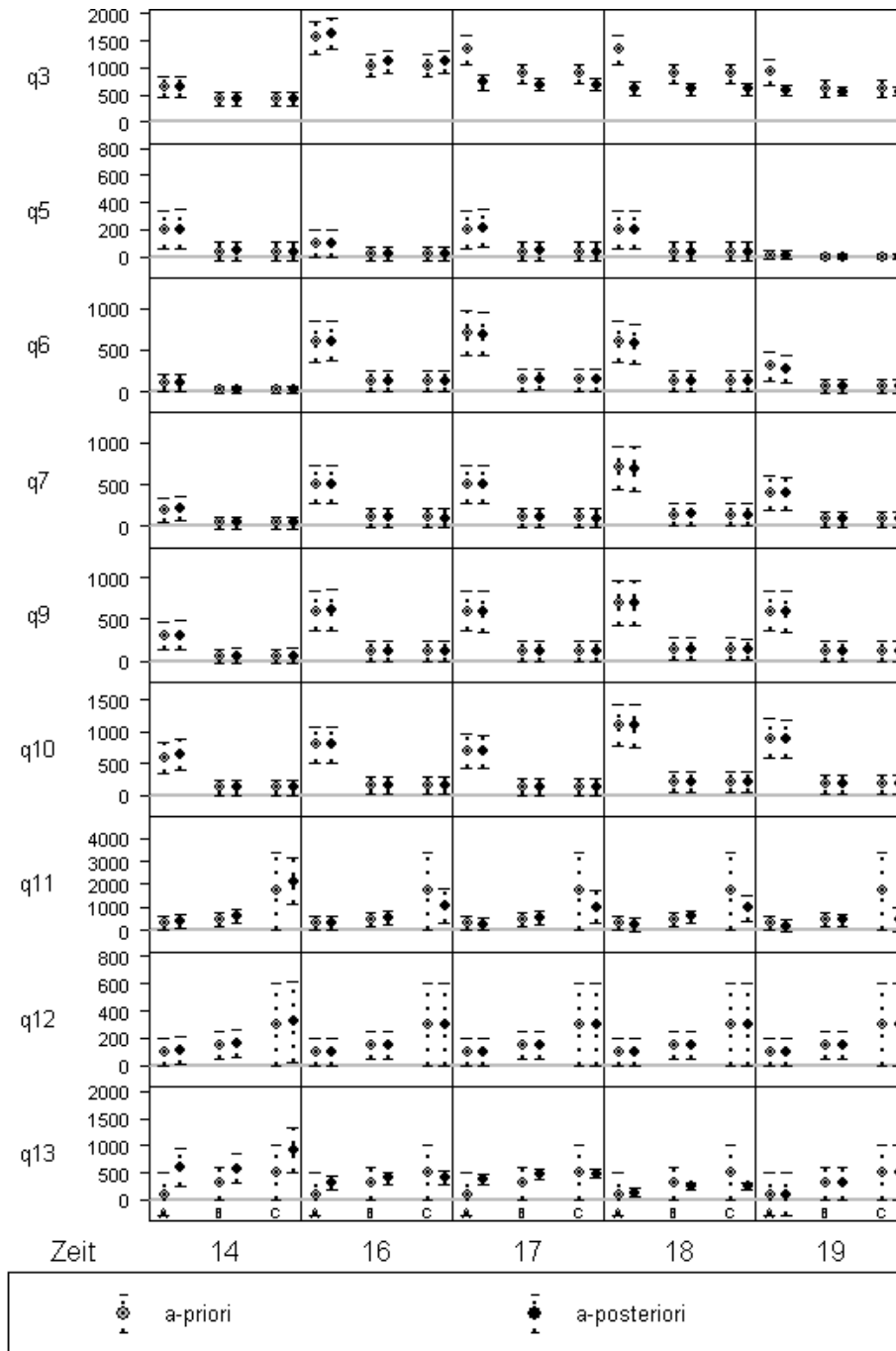
### 5.3.2.3 26. April

Am 26. April wurden 10 Stunden ausgewertet. Erkenntnisse konnten über die Quellen 3 (Rollbahn), 11 (Parkplatz) und 13 (Fracht) gewonnen werden (Abbildung 5.17 und 5.18). NO<sub>x</sub>-Emissionsraten für Quelle 3 variieren zwischen  $565 \pm 87$  und  $732 \pm 142$  mg/s (Zwischen 17 und 19 Uhr). Die Korrelationen mit anderen Quellen liegen zwischen -0.1 und 0.1. Die Berechnung dieser Emissionsraten ist somit annähernd unabhängig von anderen Einflüssen. Die Resolution liegt zwischen 0.56 und 0.83.

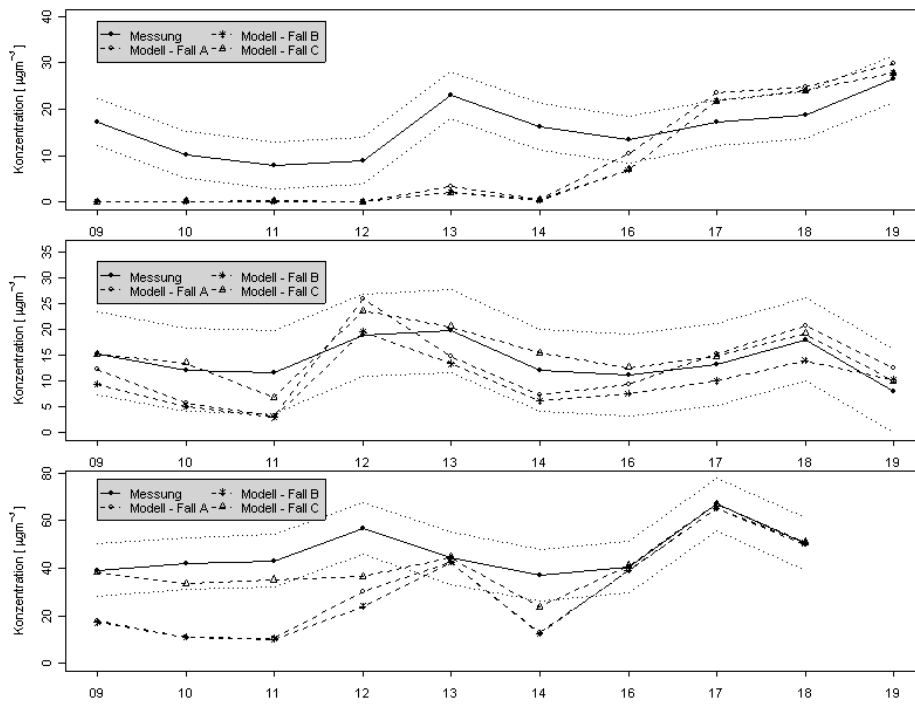
NO<sub>x</sub>-Emissionsraten von Quelle 11 können für alle Stunden am 26. April berechnet werden. Für die Versuche A und B ist die Resolution zwischen 0.05 und 0.27 und für den Versuch C zwischen 0.63 und 0.92. Dieser Unterschied zwischen den Versuchen A/B und C ist mit zu kleinen a-priori Emissionsraten und zu kleinen a-priori Unsicherheiten für diese Quelle im Versuch A und B zu erklären. Das führte während der Invertierung dazu, dass die berechnete



**Abbildung 5.17:** A-priori und a-posteriori Emissionsraten am 26. April (in mg/s) für ausgewählte Quellen und für die drei a-priori Versuche A, B und C - Teil 1. Ein kleines Quadrat zeigt jeweils die Emissionsraten mit Standardabweichung (y-Achse) für die drei a-priori Fälle (x-Achse). Dargestellt sind die a-priori Werte (grau) und die a-posteriori Werte (schwarz).



**Abbildung 5.18:** A-priori und a-posteriori Emissionsraten am 26. April (in mg/s) für ausgewählte Quellen und für die drei a-priori Versuche A, B und C - Teil 2. Ein kleines Quadrat zeigt jeweils die Emissionsraten mit Standardabweichung (y-Achse) für die drei a-priori Fälle (x-Achse). Dargestellt sind die a-priori Werte (grau) und die a-posteriori Werte (schwarz).



**Abbildung 5.19:** Vergleich gemessener mit modellierter Konzentration am 26. April für die drei verschiedenen a-priori Emissionsraten. Die Uhrzeit [MEZ] der berechneten Fälle ist auf der x-Achse aufgetragen. Die gepunktete Linie gibt den Messfehler wieder, der bei der Invertierung den Messungen zugeordnet wurde.



Emissionsrate nur wenig von der a-priori Emissionsrate abweicht. Im Versuch C wird die Anpassung bedeutend stärker. Die Rechtfertigung für die hohe a-priori Emissionsrate des Versuchs C liefert der Vergleich der gemessenen mit der modellierten Konzentration (Abbildung 5.19), der im Versuch C bedeuten besser ausfällt als im Versuch A und B. Nur wenn hohe Emissionsraten für die Quelle 11 zugelassen werden, kann die hohe gemessene Konzentration auch modelliert werden. Die so berechneten Emissionsraten variieren zwischen  $441 \pm 512$  und  $3515 \pm 1031$  mg/s. Diese Schätzungen hängen zum Teil auch von anderen Quellen ab. Größere Werte als 0.4 in den Zeilen der Resolutionsmatrix treten um 10 Uhr mit Quelle 13 (Wert in der Resolutionsmatrix 0.44), um 12 Uhr mit Quelle 12 (0.40) und 9 (0.71) und um 14 Uhr mit Quelle 12 (0.45) auf.

Die  $\text{NO}_x$ -Emission von Quelle 13 kann um 13, 16, 17 und 18 Uhr bestimmt werden. Die Resolution ist in allen drei Versuchen größer als 0.9. Die berechneten Emissionsraten ist abhängig von Quelle 5. Der entsprechende Wert in der 13. Zeile der Resolutionsmatrix variiert zwischen 0.13 bis 0.36. Die so bestimmten Emissionsraten variieren zwischen  $129.31 \pm 81.03$  und  $485 \pm 90$  mg/s. Eine noch höhere Emissionsrate wird um 12 Uhr (zwischen  $814 \pm 325$  und  $1355 \pm 373$  mg/s) und um 14 Uhr (zwischen  $582 \pm 277$  und  $920 \pm 420$  mg/s) berechnet. Die Resolution dieser beiden Berechnungen liegt aber maximal bei 0.44 (Versuch C, 12 Uhr) und bei 0.29 (Versuch C, 14 Uhr). Für diese beiden Stunden fällt auch auf, dass die modellierte Konzentration (Abbildung 5.19) niedriger ist als die gemessene. Eine mögliche Erklärung dafür wäre eine besonders hohe Emission der Fracht die aufgrund einer zu kleinen a-priori Emissionsrate nicht bestimmt werden konnte und deshalb keine vollständige Anpassung der modellierten an die gemessene Konzentrationen möglich war.

Am 26 April kann mit den Ergebnissen des a-priori Versuchs C im Allgemeinen eine ausreichend gute Übereinstimmung zwischen modellierter und gemessener Konzentration beobachtet werden (Abbildung 5.19). Dies gilt nicht für die Messung am Museum zwischen 9 und 14 Uhr. Hier sind die gemessenen Konzentration immer größer als die modellierten. Im Modell wird dieser Messort hauptsächlich durch Quelle 3 beeinflusst, liegt aber am Rand der Abluftfahne. Eine Messung am Rand der Abluftfahne ist mit großen Unsicherheiten verbunden. Eine schwach variierende Windrichtung kann dort zu großen Unterschieden im Vergleich zur gemessenen Konzentration führen. Solche Effekte können von einem Dispersionsmodell nur ungenügend modelliert werden, da nur zeitlich gemittelte Situationen betrachtet werden können. Nach 14 Uhr dreht der Wind nordwärts und die Messung am Museum liegt nicht mehr am Rande der Abluftfahne, sondern in deren Mitte. Die modellierten Konzentrationen liegen dann näher an den gemessenen und die Emissionsrate für Quelle 3 kann bestimmt werden.

# Kapitel 6

## Diskussion

In dieser Arbeit wurde das inverse Dispersionsmodell EMiL zur Berechnung von diffusen Emissionen von Luftspurenstoffen vorgestellt. Damit wurden Grenzen der inversen Modellierung zur Emissionsratenbestimmung unter Vernachlässigung möglicher Unsicherheiten der Ausbreitungsmodellierung untersucht. Das Modell wurde des weiteren zur Emissionsratenbestimmung von diffusen Quellen auf den Flughäfen Zürich und Budapest eingesetzt. Im folgenden sollen diese Ergebnisse kritisch beleuchtet und in einen größeren Kontext gestellt werden.

### 6.1 Inverse Methoden

In der hier vorgelegten Arbeit werden zwei Methoden der inversen Spurenstofftransportmodellierung verwendet. Neben den zahlreichen Anwendungen der Methoden in der Geophysik sind in der Atmosphäre einige Arbeiten zu finden, die diese Methoden auf globaler und kontinentaler Skala anwenden. Dies sind in den meisten Fällen Anwendungen der Bayes'schen Methode. Auf lokaler Skala finden sich hingegen Anwendungen, die gut gestellte Probleme lösen und Ansätze ähnlich der hier verwendeten pseudoinversen Methode benutzen. Dabei gehen diese meistens von Backward-Lagrange-Modellen aus, um diffuse Quellen zu bestimmen. Zwischen diesen beiden Skalen klafft bei der Anwendung inverser Modellierung im Moment noch eine Lücke. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die inverse Dispersionsmodellierung für diesen Skalenbereich angewendet. Im Speziellen wurden, im Unterschied zu den meisten bisherigen Anwendungen der kleinskaligen Invertierung, Emissionen aus mehr als einer Quelle quantifiziert. Im Gegensatz zu den globalen Anwendungen wurden die Messungen der Spurenstoffe relativ quellnah vorgenommen. Dies zieht nach sich, dass die zeitliche und räumliche Veränderung der Quellen sehr gut bekannt sein muss, damit dies in der Wahl des a-priori Wissens berücksichtigt werden kann. Dies ist möglicherweise die größte Schwierigkeit inverser Modellierung auf derart kleinen Skalen. Die zeitliche Änderung der Quellen führt dazu, dass jeder Zeitpunkt im Prinzip einen Einzelfall darstellt. Die zusätzliche Information, die durch Zeitreihenmessungen gewonnen werden kann und die durch sich ändernde meteorologische Bedingungen (zum Beispiel eine Drehung des Windes) zu einer Stabilisierung der Lösung beitragen kann, ist schwierig zu erlangen. In dieser Arbeit wurde die zeitliche Information mittels Daten über den Flugverkehr mitberücksichtigt,

um ein genaueres Bild des Flughafens zu erhalten. Diese Vorgehensweise scheint viel versprechend, es fehlen jedoch noch weitere Erfahrungswerte sowie Analyseverfahren zur Interpretation der Ergebnisse.

Bezüglich der gleichzeitigen Bestimmung mehrerer diffuser Quellen stellt sich die Frage, welche Voraussetzungen erfüllt sein müssen, um Quellen getrennt voneinander bestimmen zu können, und welchen Einfluss die Annahme der homogenen Emission über die gesamte Fläche der diffusen Quelle auf die Invertierung hat. Derartige Fragestellungen wurden mit Hilfe synthetischer Versuche untersucht. Diese haben sich als geeignetes Werkzeug erwiesen, um damit Grenzen der verwendeten Methode zu ermitteln.

Eine erste Fragestellung, die mit den synthetischen Versuchen untersucht wurde, war der Einfluss falscher Annahmen zur Quellgeometrie. Dazu wurden synthetisch Konzentrationen für eine gegebenen Quellgeometrie berechnet, die Invertierung dann aber mit einer geänderten Quellgeometrie vorgenommen. Die durchgeführten Versuche waren so gewählt, dass die synthetischen Quellen innerhalb der diffusen Quelle am Rande und asymmetrisch angeordnet waren. Fiel der Schwerpunkt der diffusen Quelle mit dem Schwerpunkt der synthetischen Quelle zusammen, so waren die Lösungen meistens schon sehr quellnah zufrieden stellend. Allerdings muss diese Aussage als Hypothese stehen bleiben, da mit den hier gemachten Versuchen extreme Grenzen der Methoden ausgelotet werden sollten und deshalb der genaue Sachverhalt nicht im Detail untersucht wurde. Betrachtet man den Abstand zur Quelle, in der eine Messung mindestens liegen muss, stellt man fest, dass dieser von der Stabilität der Atmosphäre abhängt, aber auch von der Höhe der Quelle. Es wird weiter festgestellt, dass bei hohen Quellen eine Distanz existiert, ab der eine inverse Emissionsratenbestimmung möglich ist, die scheinbar unabhängig von der Quelldimension ist. Interessanterweise ist dies unabhängig davon, ob die diffuse Quellgeometrie die synthetische Quellgeometrie gut wiedergibt oder nicht. Folgende Erkenntnisse konnten für Quellen mit einer Höhe größer als 4 Meter gewonnen werden:

- Es existiert eine kritische Distanz, in deren Entfernung zur inversen Quelle die Ergebnisse gut werden. Diese Distanz ist nicht abhängig von der Ausdehnung der Quelle, aber von der Stabilität der Atmosphäre.
- Die Form der Lösung hängt von der Lage der synthetischen Quellen innerhalb der inversen Quelle ab.

Diese Punkte konnten bestätigt werden, aber nur solange mit einer Quellhöhe von 5 Metern gerechnet wurde. Die Quellhöhe hat aber ebenfalls einen bedeutenden Einfluss auf das Resultat der inversen Berechnung.

Liegt die Quelle am Boden (Quellhöhe kleiner 4 Meter), existiert keine Distanz mehr, ab welcher die Resultate der inversen Dispersionsmodellierung gut werden. Es kann nur noch eine allgemeine Unsicherheit angegeben werden, mit welcher die Quelle bestimmt werden kann. Der Grund hierfür liegt in der Präsenz des Bodens im Modell. Am Boden werden die von oben kommenden Konzentrationen "reflektiert". Die Schadstoffe sammeln sich in Bodennähe, was ab einer gewissen Distanz zur Quelle die Bedeutung der Quellgeometrie verschwinden lässt. Dies ist für bodennahe Quellen nicht der Fall, da die Luft nach oben entweichen kann. Deshalb dauert es länger, bis Annahmen zur Quellgeometrie unbedeutend werden. Trotz dieser Einschränkung kann für die untersuchten

Quelldimensionen der diffusen Quelle (10 bis 60 Meter Durchmesser) eine untere Grenze der Distanz zwischen Quelle und Messung angegeben werden, für die das Resultat immer innerhalb eines Faktor 2 des wahren Wertes war. Wie bereits erwähnt, ist dies jedoch als extreme Grenze zu verstehen, die auch für außerordentlich schlecht gewählte Quellparametrisierungen und Messungen in unmittelbarer Quellnähe Gültigkeit behält. Bei bodennahen Quellen kann abschliessend gesagt werden, dass ab einer Distanz der Messung zur Quelle von 50 Metern der Fehler der Emissionsratenbestimmung in den meisten Versuchen kleiner als 30 % wird. Dies bedeutet, dass bei quellenahen Messungen der Fehler aufgrund von schlechter Quellparametrisierung die gleiche Größenordnung annehmen kann, wie die Unsicherheit der gesamten inversen Dispersionsmodellierung, der von verschiedenen Autoren zwischen 20 und 40 % beziffert wird.

Die obere Grenze für eine Distanz zwischen Quelle und Messung ergibt sich jeweils durch die konkrete Fragestellung. In dieser Arbeit wurde untersucht, in welcher Distanz die Emissionen zweier Quellen mit Hilfe von zwei Messungen noch voneinander getrennt bestimmt werden können. Ist die Entfernung der Messung zur Quelle größer als 150 - 200 m war in allen Fällen eine Trennung der beiden Quellen möglich auch wenn die Punktquellen in einer Distanz von 10 Metern zueinander angeordnet waren. Unter stabilen Bedingungen konnte die Entfernung der Messung zur Quelle, bis zu welcher die Unterscheidung möglich war, aber auch bedeutend größer (bis über 1000 m) sein. Um Quellen getrennt voneinander betrachten zu können, kann also nicht beliebig weit weg gemessen werden. Die konkret zu wählende Distanz ist stark von der betrachteten Situation abhängig. Des weiteren konnte gezeigt werden, dass diese Problemstellung sehr komplex ist und nicht nur von der Distanz der Messung zur Quelle, der Stabilität der Atmosphäre und der Entfernung der Quellen zueinander abhängt, sondern dass auch die Länge der Messstrecke einen bedeutenden Einfluss auf das Systemverhalten ausübt. Im Gesamtrahmen des inversen Dispersionsmodells EMiL ist die Trennbarkeit zweier Quellen vor allem für Anwendung mit der pseudoinversen Methode wichtig, da bei dieser Methode keine Stabilisierung der berechneten Lösungen mittels a-priori Wissen möglich ist.

Beide Ergebnisse, die Untersuchung des Einflusses der Quellparametrisierung und die getrennte Bestimmung zweier Quellen, wurden mit demselben Vorwärtsmodell untersucht. Inwieweit diese Ergebnisse auch für andere Vorwärtsmodelle übertragbar sind bleibt offen. Es kann anhand der hier gemachten Untersuchungen auch nicht definitiv bestimmt werden, ob diese Aussagen unter realen Bedingungen noch Gültigkeit haben. Dies zu beantworten kann nur mittels kontrollierter Feldversuche gelingen (Beispielsweise wie in Flesch et al. (2004)).

## 6.2 Messkampagnen zur Bestimmung von Flughafenemissionen

Flughäfen haben einen wesentlichen Einfluss auf die Luftqualität in ihrer unmittelbaren Umgebung. Dies zeigt sich beispielsweise in typischen Belastungskarten, die durch die lokalen Behörden erstellt werden (Beispielsweise für Zürich<sup>1</sup>), in denen der Flughafen jeweils eine erhöhte NO<sub>2</sub>-Belastung aufweist. Diese ist nicht nur durch Flugzeuge bedingt, sondern wird auch durch andere Quellen,

---

<sup>1</sup><http://www.ostluft.ch/main.php?section=messdaten>

die dem Flughafen zuzuordnen sind, beeinflusst. Die Bedeutung der einzelnen Quellen einzuschätzen, ist ein notwendiger Arbeitsschritt zur Ergreifung geeigneter Minderungsmaßnahmen. Auf den Flughäfen Zürich und Budapest wurde jeweils für Teilgebiete dieser Flughäfen die Emissionen einzelner Quellen mittels inverser Ausbreitungsmodellierung quantifiziert.

### 6.2.1 Zürich

In dem kleinräumigen Untersuchungsgebiet (200 mal 300 Meter) des Flughafen Zürich wurden  $\text{NO}_x$ - und CO-Emissionen von Flugzeugen und Abfertigungsemissionen auf Basis von Halbstundenmittelwerten bestimmt. Bei einer typischen Transportzeit von 1/2 - 2 Minuten, können diese Stoffe aufgrund ihrer Reaktionsgeschwindigkeiten als inert betrachtet werden, womit eine wesentliche Voraussetzung zur Benutzung des inversen Modells EMiL gegeben ist.

CO-Emissionen der Flugzeuge (0.4 bis 7.5 g/s) waren bedeutend größer als  $\text{NO}_x$ -Emissionen (28.6 bis 520.8 mg/s). Dies ist in der besonderen Emissionscharakteristik von Flugzeugtriebwerken begründet. Die höchste Auslastung erfährt ein solches während des Startens eines Flugzeuges. Zur Bewegung auf dem Flughafen wird im Vergleich dazu nur ein geringer Teil der maximalen Leistung eines Triebwerks benötigt. Bei niedrigen Lastzuständen — die Internationale Zivilluftfahrtbehörde (ICAO, 1993) spricht sogar von Leerlauf — treten hohe CO-Emissionen auf. Durch die niedrigen Temperatur im Triebwerk während des Leerlaufs wird aber kaum  $\text{NO}_x$  gebildet. Bei hohem Schub erreicht das Triebwerk hohe Temperaturen und die Verbrennung ist nahezu ideal. Dementsprechend gering sind die CO-Emissionen und die  $\text{NO}_x$ -Emissionen erreichen ihr Maximum. Die Messungen am Flughafen Zürich fanden bei rollenden oder stehenden Flugzeugen statt, was annähernd einem "Leerlauf"-Lastzustand entspricht. Deshalb konnte das berechnete Resultat der hohen CO und geringen  $\text{NO}_x$ -Emissionen erwartet werden. Auch die, im Vergleich zu CO, hohen  $\text{NO}_x$ -Emissionen der Abfertigung sind insofern erklärbar, als dass diese Emissionen vor allem durch Dieselmotoren verursacht wurden, welche höhere  $\text{NO}_x$ - als CO-Emissionen aufweisen (Margenat und Casanova, 2006; Fleuti, 2004).

Wie sich bei den synthetischen Versuchen (Kapitel 4) gezeigt hat, hängt die Güte der inversen Modellierung von der Distanz der Messung zur Quelle ab. Der Standplatz A44 grenzt unmittelbar an den Ort der Messung. Der Unterschied der Emissionsratenberechnung mit und ohne Berücksichtigung dieser Quelle wurde im Resultateteil vorgestellt. Es findet sich dabei eine Halbierung der Emissionsraten, wenn der nahe gelegene Standplatz nicht berücksichtigt wird. Die Datenbasis dieses Vergleichs ist mit 6 und 10 Messungen aber relativ gering. Die Halbierung des Medians könnte also auch damit erklärt werden, dass in diesen wenigen Fällen nur geringe Abfertigungsaktivitäten zu verzeichnen waren. Dies liegt durchaus im Bereich des Möglichen, da die Abfertigungsemissionen über drei Größenordnungen variieren. Wird der Standplatz A44 aber mitberücksichtigt - also mit einer Messung sehr nahe am Standplatz - müssen die Ergebnisse der synthetischen Versuche miteinbezogen werden, da bei quellnahen Messungen systematische Fehler der inversen Dispersionsmodellierung auftreten können. Für bodennahe Emissionen zeigt sich bei diesen Ergebnissen auch für sehr quellnahe Messungen und äußerst ungünstigen (asymmetrischen) Quellgeometrien, dass die inverse Dispersionsmodellierung innerhalb eines Faktors 2 des wahren Wertes liegt.

Die Qualität der Flugzeugemissionsbestimmung mittels inverser Dispersionsmodellierung wurde durch einen Vergleich mit einer anderen Methode zur Emissionsbestimmung von Flugzeugen (Schürmann et al., 2007) geprüft. Das gute Ergebnis, mit einer Übereinstimmung innerhalb 30 %, ist insofern erstaunlich, da flugzeuginduzierte Turbulenz und vertikaler Impuls bei der Ausbreitungsmodellierung vernachlässigt wurden. Dies lässt sich einerseits damit begründen, dass nur Westwindbedingungen zur Berechnung in Betracht gezogen wurden, wodurch der triebwerkinduzierte Impuls in die gleiche Richtung wirkte wie der mittlere Wind, und andererseits damit, dass längenmittelnde Verfahren zur Messung der Spurengaskonzentration eingesetzt wurden. Dadurch wird ein Querschnitt durch die Triebwerksabgase gemessen und durch diese Mittelung werden bei kompletter Erfassung der Abgasfahne Unsicherheiten der Ausbreitungsmodellierung reduziert. Die Datenbasis dieses Vergleichs ist aber mit 6 Flugzeugen zu gering, um den Fehler von 30 % abschließend als Unsicherheit der inversen Dispersionsmodellierung zur Bestimmung von Flugzeugemissionen anzugeben, aber andere Untersuchungen mit inversen Methoden nennen eine Genauigkeit in der gleichen Größenordnung (Flesch et al., 2004).

Nicht nur die getrennten Betrachtung der Emissionen von Flugzeugen und Abfertigung ist ein wesentlicher Aspekt der Messkampagne, sondern auch der Vergleich dieser beiden Quellen, der auf Basis von Halbstundenmittelwerten erfolgt. CO-Emissionen der Flugzeuge sind mit einem Median von 2.0 g/s etwa 20 mal höher als die Abfertigungsemissionen (0.09 g/s). Dies ist selbst unter Berücksichtigung der oben beschriebenen Unsicherheiten ein deutlicher Unterschied. NO<sub>x</sub>-Emissionen der Flugzeuge (195 mg/s) sind etwa um einen Faktor 2-3 höher als diejenigen der Standplätze (82 mg/s). Für eine Beurteilung der Bedeutung der einzelnen Emissionen muss aber deren Häufigkeit mitberücksichtigt werden. Flugzeugemissionen treten kurzfristig (ca. 5 Minuten) auf, während Abfertigungsemissionen länger (> 30 Minuten) dauern. Für CO wurden etwa doppelt so viele Standplatzemissionen beobachtet wie Flugzeugemissionen, und für NO<sub>x</sub> sogar 3.5 mal soviel. Dieser Unterschied ergibt sich durch die verschiedene Anzahl der betrachteten Fälle für CO und NO<sub>x</sub> und ist somit auch ein erster Eindruck für die Unsicherheit des Verhältnisses der Häufigkeiten der Abfertigungsemissionen zu derjenigen der Flugzeuge. Aufgrund dieser Häufigkeiten waren CO-Emissionen der Flugzeuge im betrachteten Gebiet etwa 10 mal so bedeutend wie Abfertigungsemissionen. NO<sub>x</sub>-Emissionen sind, innerhalb der relativ großen Unsicherheiten (30 % und 50 %), aber für Standplätze und Flugzeuge von gleicher Bedeutung.

Die eben diskutierte Bedeutung der verschiedenen Quellen gilt nur für das untersuchte Gebiet. Eine Extrapolation dieser Ergebnisse auf den gesamten Flughafen ist schwierig und soll aus diesem Grund hier auch nicht quantitativ, sondern nur qualitativ erfolgen. Der hohe Ausstoß an CO, der durch rollende Flugzeuge hervorgerufen wird, wird sich auch im Kontext des gesamten Flughafens nicht ändern, da die Rollzeiten der Flugzeuge für den Flughafen länger sind als nur im Untersuchungsgebiet, die Abfertigungsemissionen aber bezüglich gesamtem Flughafen keine wesentlichen Änderungen erfahren. Die Bedeutung der NO<sub>x</sub>-Emissionen von Flugzeugen wird aber für den gesamten Flughafen gegenüber den Abfertigungsemissionen an Bedeutung gewinnen. Auf dem Weg zur Startbahn wird weiter NO<sub>x</sub> emittiert und auf der Startbahn selbst, unter dem Einfluss des hohen Schubes, der zum Starten benötigt wird, erreichen die NO<sub>x</sub>-Emissionen ihre höchsten Werte. Die Startbahnemission ist von relativ kurzer

Dauer, da das Flugzeug relativ schnell große Höhen erreicht, wodurch sich die Spurenstoffemissionen vor dem Erreichen des Bodens bereits verdünnen. Trotzdem wird durch eine Gesamtbetrachtung des Flughafens die Menge der Abfertigungsemission relativ geringeren Anteil an der Gesamtemission haben als im Untersuchungsgebiet dieser Arbeit. Hier muss im Hinblick auf das Gefahrenpotential der Schadstoffeinträge für den Menschen aber angemerkt werden, dass Standplätze häufig in der Nähe von Passagieren und Arbeitsplätzen liegen. Startbahnen sind hingegen weiter von Personen entfernt. Da die relative Lage der Emissionen zu von Personen stark frequentierten Gebieten aber von Flughafen zu Flughafen verschieden sein kann, muss diese Sachlage fallweise betrachtet werden.

### 6.2.2 Budapest

Am Flughafen Budapest wurden eine Bayes'sche Invertierung zur Bestimmung der  $\text{NO}_x$ -Emission von Rollbahnen, Standplätzen, Zubringerverkehr und vom Frachtareal durchgeführt. Eine Bestimmung der Emissionen, die nur wenig von der Wahl der a-priori Emissionsraten abhing, was in der Resolutionsmatrix und der Kovarianzmatrix der Ergebnisse ersichtlich ist, konnte für einzelne Stunden vorgenommen werden. Der Fehler, der durch eine Vernachlässigung des chemischen Abbaus gemacht wird, ist bei typischen Transportzeiten von 2- 5 Minuten bedeutend geringer als 10 % (siehe Kapitel 3).

Rollbahnemissionen erreichen Werte zwischen  $95 \pm 39 \text{ mg/s}$  und  $732 \pm 142 \text{ mg/s}$  für die drei untersuchten a-priori Fälle A, B und C. Pro Flugzeug ergibt dies Emissionen in vier der fünf Fälle zwischen 26 und  $38 \text{ mg/s}$ . Der fünfte beobachtete Wert betrug pro Flugzeug  $9 \text{ mg/s}$  und war somit sehr gering. Der für Fall C verwendete a-priori Wert für diese Rollbahn war  $38.7 \text{ mg/s}$ . Daraus kann gefolgert werden, dass dieser a-priori Wert die Bedingungen am Flughafen Budapest relativ gut wiedergibt. Emissionen für den Parkplatz konnten am 26. April ermittelt werden. Sie variierten zwischen  $441 \pm 512 \text{ mg/s}$  und  $3515 \pm 1031 \text{ mg/s}$ . Sichere Emissionen für die Fracht erreichten am 26. April Werte zwischen  $129 \pm 81 \text{ mg/s}$  und  $485 \pm 90 \text{ mg/s}$ . Maximale Emissionen erreichten mittags Werte bis zu  $1355 \pm 373 \text{ mg/s}$ . Aufgrund der in diesen Fällen zu niedrigen modellierten Konzentration am Messstandort "Fracht" kann davon ausgegangen werden, dass diese Emissionen noch höher waren. Abfertigungsemissionen konnten an keiner Stelle unabhängig von anderen Emissionen bestimmt werden.

Meistens war keine eindeutige Bestimmung einzelner Emissionsraten möglich, da einzelne Quellen nicht unabhängig voneinander bestimmt werden können, beispielsweise weil sie bezüglich der Windrichtung hintereinander gelegen sind. Durch die Wahl einer geeigneten a-priori Emissionsraten können aber derartige Fälle trotzdem untersucht werden. Dies zeigt sich besonders deutlich am 21. April, wo zu keiner Quelle quantitativ Emissionsraten bestimmt werden konnten. Dennoch wurde durch geeignete Wahl der a-priori Emissionsrate die Differenz zwischen gemessener und modellierter Konzentration verringert. Dies ist allerdings immer möglich, da ein unterbestimmtes Problem im Prinzip immer unendlich viele Lösungen aufweist und demnach immer ein A-priori gefunden werden kann, das die Messung "perfekt" beschreibt, welches allerdings nicht zwingend mit der wahren Emissionsrate in Einklang steht. Die a-priori Emissionsraten dienen der Ermittlung einer plausiblen Lösung innerhalb der Unendlichkeit aller Lösungen. Es muss also erstens begründet werden, weshalb gerade

in dieser Arbeit eine Änderung des A-priori statthaft ist, und es muss zweitens begründet werden, dass die Art der Änderung sinnvoll ist.

Ersteres begründet sich dadurch, dass insgesamt 21 Einzelfälle betrachtet wurden, aber für jeden Einzelfall die gleichen a-priori Emissionsraten verwendet wurden, und die a-priori Werte teilweise durch Berechnungen gestützt wurden, die nicht von anderen Quellen beeinflusst waren. Für die Rollbahnen und Standplätze waren dies a-priori Emissionsraten pro Flugzeug, die aufgrund der Anzahl der Flugzeuge zum a-priori im Einzelfall geändert wurden. Für den Zubringerverkehr, den Parkplatz und die Fracht war das a-priori immer dasselbe. Eine durch die Analyse eines Einzelfalls gemachte Änderung des A-priori wirkt sich also auch auf die anderen Fälle aus. Eine schlechte Wahl müsste sich in den anderen Fällen bemerkbar machen. Dies war nicht der Fall. Im Gegenteil, die Berechnungen waren mit der dritten Wahl der a-priori Emissionsraten durchgehend besser.

Die zweite Frage, ob die Änderungen des A-priori sinnvoll sind, soll nun beantwortet werden. Das erste A-priori der Flugzeugemissionen wurde aufgrund der Ergebnisse in Zürich bestimmt. Die Situation in Zürich und Budapest waren aber verschieden (Länge der Rollbahn, Dauer der Emissionen, Geschwindigkeit des Flugzeuges), so dass die geringfügige Anpassung der a-priori Emissionsraten gerechtfertigt scheint. Das erste A-priori der Standplätze basierte auch auf den Ergebnissen aus Zürich. Die Anpassungen waren aber bedeutend stärker als für die Flugzeugemissionen. Dafür dass für die Standplatzemissionen ein niedrigeres A-priori sinnvoll ist, kann es verschiedene Gründe geben. Erstens waren die Ergebnisse in Zürich Halbstundenmittel und in Budapest Stundenmittel und zweitens hat sich in Zürich eine sehr große Spannweite der Abfertigungsemissionen gezeigt. Es muss auch davon ausgegangen werden, dass diese Quelle zeitlich sehr heterogen war. Durch die geänderte Wahl der a-priori Emissionsraten konnte insbesondere in einigen Fällen verhindert werden, dass physikalisch unsinnige negative Emissionsraten bestimmt wurden. Eine direkte Bestimmung der Abfertigungsemission war aber nur selten möglich und häufig waren kleine Unterschiede zwischen a-priori und a-posteriori der Standplätze festzustellen. Dies ist darin begründet, dass meistens zwischen den Standplätzen und der Messung noch andere Quellen lagen. Eine Verbesserung der Kenntnisse über die Abfertigungsemissionen auf dem Flughafen Budapest ist mit dem hier verwendeten Datensatz nur möglich, wenn genaue Emissionen der anderen Quellen bekannt sind, was bis jetzt nicht der Fall ist. Die Änderung der anderen drei a-priori Emissionsraten (Straße, Parkplatz und Fracht) begründet sich dadurch, dass über diese Quellen nur sehr wenig bekannt war und von Anfang an diesen Schätzungen mit Vorsicht begegnet wurde.

Abschließend konnte also keine offensichtliche Unstimmigkeit des dritten a-priori Versuches festgestellt werden. Es muss aber darauf hingewiesen werden, dass die dem A-priori zugewiesenen Fehler zum Teil sehr groß waren und dass mit der Berücksichtigung von zeitlich Variablen a-priori auch für die Zufahrtsstraße und die Fracht noch verbesserte Ergebnisse möglich wären.

Welches sind nun wichtige Quellen für  $\text{NO}_x$  und welche sind weniger bedeutend? Der Vergleich zwischen Flugzeugemissionen und Abfertigungsemissionen kann mit den a-priori Emissionsraten vorgenommen werden, die zur kleinsten Differenz zwischen modellierter und gemessener Konzentration führt (Versuch C). In diesem Sinne sind die Flugzeugemissionen etwa 2-4 mal stärker als die Abfertigungsemissionen. Betrachtet man die gesamten Emissionen basierend auf



den Berechnungen mit a-priori Versuch C und unter Berücksichtigung aller Ergebnisse (also auch jene, für die keine Messungen, sondern nur a-priori Wissen vorliegen), ergibt sich als Summe über alle Standplätze eine Emission von  $258 \pm 175 \text{ mg/s}$  bis  $904 \pm 335 \text{ mg/s}$ . Die Summe der Rollbahnemissionen variiert zwischen  $682 \pm 168 \text{ mg/s}$  und  $2545 \pm 336 \text{ mg/s}$  und 75 % dieser Emissionen sind zwischen 2.5 und 3.5 mal größer als die Abfertigungsemissionen (Alle Faktoren variieren zwischen 1.8 und 4.4).

Der Vergleich mit den drei verbleibenden Quellen (Parkplatz, Straße und Frachtareal) wird wegen der Unsicherheit der a-priori Emissionsraten nicht aufgrund aller berechneten Stunden vorgenommen, sondern nur unter Berücksichtigung der durch Konzentrationsmessung dominierten Berechnungen für den a-priori Fall C. Die Emission der Straße waren nicht unabhängig bestimmbar und erreichen einen maximalen Wert von  $473 \pm 251 \text{ mg/s}$ , weswegen sie die schwächste Quelle während der Messkampagne war. Parkplatzemissionen variieren zwischen  $441 \pm 512 \text{ mg/s}$  und  $3515 \pm 1031 \text{ mg/s}$  und sind somit von ähnlicher Stärke wie die Flugzeugemissionen. Frachtemissionen sind zeitlich sehr variabel und erreichen Werte zwischen  $129 \pm 31 \text{ mg/s}$  und  $1355 \pm 373 \text{ mg/s}$ . Im Gegensatz zu den Rollbahnemissionen ist in Budapest über Emissionen des Parkplatzes und der Fracht relativ wenig bekannt. Die Ursache der hohen Emissionen in diesen beiden Quellgebieten ist eine offene Frage, deren Beantwortung für Luftqualitätsuntersuchungen von großer Bedeutung ist. Emissionen von Parkplätzen entstehen hauptsächlich durch Fahrzeuge, die bei niedrigen Geschwindigkeiten oder sogar im Leerlauf operieren, und somit im Vergleich zu fahrenden Fahrzeugen relativ lange in einem kleinräumigen Gebiet emittieren. Höglund (2004) bestimmt  $\text{NO}_x$ -Emissionsfaktoren für Parkplatzverkehr exemplarisch mit einem Wert von  $0.25 \text{ g/Fahrzeug}$ . Wie auch Emissionen von fahrenden Personenwagen ist aber eine große Variation dieses Wertes von Fahrzeug zu Fahrzeug zu erwarten. Gemessene Emissionen von fahrenden Fahrzeugen sind etwa  $0.25 \text{ g NO}_x / \text{km}$  für einen warmen Motor und  $0.32 \text{ g/km}$  für einen kalten Motor (Mensik et al., 2000). Es kann also davon ausgegangen werden, dass Parkplätze in ihrer unmittelbaren Umgebung eine wesentlichen Quelle für  $\text{NO}_x$  darstellen.

### 6.2.3 Flughafenemissionen - Zusammenfassung und Ausblick

Einige wenige wissenschaftliche Studien existieren, die die Bedeutung verschiedener Flughafenquellen gegeneinander abwägen und deren Basis Konzentrationsmessungen sind. Diesen Studien ist gemein, dass jeweils Flugzeuge als wichtige Quelle benannt werden, wobei andere Quellen (v.a. Zubringerverkehr) nicht vernachlässigt werden können (Unal et al., 2005; Yu et al., 2004). Als große Unbekannte wurde erst kürzlich die Emission von bodengebundenen Servicefahrzeuge identifiziert (S. C. Herndon wurde von Cooney, 2006, in einem Editorial zitiert) Dies kristallisiert sich auch in der hier vorgestellten Arbeit heraus. In Zürich wurde gezeigt, dass  $\text{NO}_x$ -Emissionen der Flugzeuge in der Nähe von Standplätzen etwa gleich bedeutend sind wie Abfertigungsemissionen. Am Flughafen Budapest waren Flugzeugemissionen aber 2.5 bis 3.5 mal stärker als Abfertigungsemissionen. Dieser Unterschied bedarf der Erklärung, auch wenn jeder Flughafen seine eigene Emissionscharakteristik hat und deswegen nicht die gleichen Emissionsraten zu erwarten sind. In Zürich wurden ankommende

Flugzeuge nicht bei der Invertierung mitberücksichtigt, in Budapest wurden jedoch alle Flugzeuge erfasst. Dies beeinflusst das Gesamtbild der Flugzeugemissionen, aber nicht dasjenige der Abfertigungsemissionen. Berücksichtigt man diese Sachverhalt, dann sind die Verhältnisse zwischen Rollbahn und Abfertigungsemissionen innerhalb der relativ großen Unsicherheiten etwa von gleicher Größenordnung.

Luftreinhaltegrenzwerte existieren für  $\text{NO}_2$ . Flugzeugemissionen werden jedoch für  $\text{NO}_x$  erfasst. Aus diesem Grund ist es für eine Modellierung und Bewertung von Luftqualitätsepisoden notwendig zu wissen, wie viel  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  emittiert werden. Die Resultate auf dem Flughafen Zürich zeigen, dass sich  $\text{NO}$ - bzw.  $\text{NO}_2$ -Emissionen von Flugzeugen deutlich von denen von Fahrzeugen unterscheiden.  $\text{NO}_2$ -Emissionen sind bei Flugzeugen bedeutend höher als  $\text{NO}$ -Emissionen. Auch wenn keine absolute Quantifizierung möglich ist, da keine Chemie berücksichtigt wurde, waren die Transportzeiten der Luft von der Quelle zur Messung für Flugzeugquellen und Abfertigungsemissionen etwa gleich groß, oder durch den vertikalen, triebwerksinduzierten Impuls bei Flugzeugen sogar kürzer, weswegen atmosphärenchemische Prozesse mit Sicherheit als Grund für diesen Unterschied ausgeschlossen werden können. Messungen direkt am Triebwerksausgang (Schäfer et al., 2000) zeigen bei hohen Lastzuständen hohe  $\text{NO}$ -Konzentrationen. Somit würde man also ein ähnliches Verhalten wie bei den Fahrzeugemissionen erwarten. Mögliche Erklärungen für den Unterschied sind schnell ablaufende chemische Reaktionen innerhalb der heißen Abgase der Triebwerke, oder aber andere physikalisch-chemische Aspekte der Triebwerksabgase und deren Interaktion mit der Umgebung. Möglicherweise spielt auch die chemische Zusammensetzung der vom Triebwerk angesaugten Luft eine Rolle. Dies sind jedoch Spekulationen und Themen die nicht in dieser Arbeit betrachtet wurden, und deren Beantwortung in zukünftigen Untersuchungen zu suchen ist.

Die physikalisch-chemischen Vorgänge in den Triebwerksabgasen zeigen aber noch eine weitere Problematik auf. Die Emission direkt am Triebwerksausgang werden noch durch Prozesse ausgedünnt und umgewandelt, die durch Atmosphärenmodelle so nicht berücksichtigt werden (hohe Temperaturen, durch das Triebwerk induzierter Vertikalbewegung). Um die Auswirkung eines Flughafens auf die nähere Umgebung mit Hilfe eines Chemie-Transport-Modells zu bestimmen, können diese kleinskaligen Prozesse mit einer effektiven Emission parametrisiert werden. Die effektive Emission stellt die Emission dar, welche bereits durch chemisch-physikalische Prozesse in der Umgebung (Ausdünnung und Umwandlung) verändert wurde. Derartige Emissionen können mit der hier vorgestellten inversen Dispersionsmodellierung indirekt gemessen werden.

### 6.3 Pseudoinverse und Bayes - Ein Methodenvergleich

Die pseudoinverse Methode wurde für die Messkampagne auf dem Flughafen Zürich angewandt. Für ein derart überschaubares Untersuchungsgebiet ist diese Methode gut geeignet, solange die Anzahl der Quellen diejenige der Messungen nicht übersteigt. Für den Flughafen Budapest, wo das Untersuchungsgebiet etwa 5 Mal größer war als in Zürich, konnte dies nicht mehr eingehalten werden. Die Anzahl der Quellen war zu groß, um mit den drei Messungen und der

Anwendung der pseudoinversen Methode vernünftige Ergebnisse zu erwarten, insbesondere auch deshalb, weil die Quellen auf einem Flughafen zeitlich sehr stark variieren und deshalb die zeitliche Auflösung der Invertierung sehr kurz gewählt wurde (1/2 bzw. 1 Stunde). In Budapest wurde aus diesem Grund die Bayes'sche Methode angewendet, die a-priori Wissen über die Quellstärken voraussetzt. Wie sich gezeigt hat, kann die Wahl des A-priori entscheidenden Einfluss auf das Resultat der Invertierung erlangen. Dies ist insbesondere dann der Fall, wenn zwei Quellen nicht mehr voneinander getrennt werden können, da sie die Messungen in gleichem Maße beeinflussen, wie dies beispielsweise zwei Quellen tun, die in Windrichtung hintereinander liegen. In dieser Abhängigkeit liegt auch der größte Unterschied der beiden Methoden. Die pseudoinverse Methode ist eine deterministische Methode, mit der Emissionsraten bestimmt werden können. Die Genauigkeit der Bestimmung hängt hierbei hauptsächlich von den Modellannahmen des Vorwärtsmodells ab. Bei der Anwendung der Bayes'schen Methode, einer statistischen Methode, hat der Anwender durch die Wahl des a-priori Wissens aktiven Einfluss auf das Ergebnis. Aus diesem Grund müssen aber die Ergebnisse der Bayes'schen Methode immer mit einer gewissen Vorsicht betrachtet werden und eine wiederholte Prüfung der erzielten Ergebnisse mittels neuer Messungen führt zu mehr Vertrauen in die Resultate. Der Wahl des A-prioris kommt aber immer noch große Bedeutung zu. Durch diesen großen Einfluss sollte bei Untersuchungen mit der Bayes'schen Methode bereits bei der Versuchsplanung die Bestimmung der a-piori Emissionsraten und der zugehörigen Kovarianzmatrix mitberücksichtigt werden.

Beide Methoden haben ihre Stärken und Schwächen. Während die pseudoinverse Methode für kleine Untersuchungsgebiete mit wenigen Quelle geeignet ist, ist die Bayes'sche Methode für größere Gebiete mit vielen Quellen vorzuziehen.

## Kapitel 7

# Schlussfolgerung

Die Bestimmung der Quellstärken von diffusen Emissionen ist Thema der vorliegenden Arbeit. Dazu wurden inverse Methoden zusammen mit einem Lagrange'schen Dispersionsmodell zur Quantifizierung der Emissionen von Luftspurenstoffen benutzt. Einerseits ist dies die pseudoinverse Methode, womit für kleinräumige und gut gestellte Probleme gleichzeitig mehrere Quellstärken bestimmt werden können. Übersteigt die Anzahl der zu bestimmenden Quellen aber die Anzahl der zur Verfügung stehenden Messungen, spricht man von einem schlecht gestellten Problem. In solchen Fällen liefert die pseudoinverse Methode unendlich viele mögliche Lösungen. Um dennoch eine realistische Lösung zu bestimmen, müssen weitere Informationen über die Stärke der Quellen herangezogen werden. Zur Lösung derartiger Probleme ist ein Ansatz nach Bayes geeignet, wobei von einem Vorwissen über die Stärke der einzelnen Quellen ausgegangen wird. Mit einer geeigneten Wahl der a-priori Quellstärken (Vorwissen) kann Erkenntnis über Emissionen auch in einem größeren Untersuchungsgebiet (hier bis 1000 m, im Prinzip aber auch mehr) gewonnen werden. Um auf einer Skala zwischen 100 und 1000 Metern Emissionen mittels inverser Dispersionsmodellierung zu bestimmen, wurde die Software EMiL geschaffen, die die Invertierung des Lagrange'schen Dispersionsmodells Austal2000 mit der pseudoinversen und der Bayes'schen Methode gleichzeitig vornimmt.

Die gleichzeitige Bestimmung von mehreren Quellen, die quer zur Windrichtung eine bestimmte Entfernung (10 - 60 m) zueinander aufweisen, wird ohne die Verwendung von Vorwissen nach einer gewissen Distanz der Messung zu den Quellen nicht mehr möglich, da sich die Abgasfahnen derart überlagern, dass sie nicht mehr einzelnen Quellen zugeordnet werden können. Die Distanz, ab welcher eine Trennung von zwei Quellen nicht mehr möglich ist, hängt sehr stark von der Stabilität der Atmosphäre ab, aber bedeutend geringer von der Entfernung der beiden Quellen zueinander. Der minimale Abstand zwischen Quelle und Messung, ab welchem immer eine Trennung der beiden Quellen möglich war, betrug 150 bis 200 Meter, konnte aber im Einzelfall über 1000 Meter betragen. Besteht bei einer Anwendung Zweifel darüber, ob die getrennte Bestimmung der verschiedenen Emissionsraten möglich ist, sollte dies für den konkreten Einzelfall geprüft werden.

Eine weitere Problematik bei der Bestimmung von diffusen Emissionen besteht darin, dass der genaue Ort der Emission nicht bekannt ist. Damit müssen Annahmen über die Quellgeometrie getroffen werden. Um so entstehende Un-

sicherheiten zu bestimmen, wurden zwei Punktquellen, die längs zur Windrichtung angeordnet waren, durch eine Flächenquelle angenähert. Sehr quellnahe Messungen führten teilweise zu relativ großen ( $\pm 100\%$ ) Unsicherheiten. Die Distanz der Messung zur Quelle, ab welcher Annahmen über die Quellverteilung vernachlässigt werden können, ist abhängig von der Höhe der Quelle und der Stabilität der Atmosphäre. Quellen ab einer Höhe von 4 m über Boden ergeben bei bodennahen Messungen nach einer kritischen Distanz zur Quelle immer die richtige Lösung, unabhängig von der Annahme über die wahre Quellgeometrie. Dies ist bei einer Quellhöhe von 5 m etwa 30 m Distanz. Unterhalb dieser kritischen Distanz ergibt sich eine teilweise starke Unsicherheit, die umso größer ist, je schlechter die wahre Quellgeometrie angenähert wurde. Für bodennahe Emissionen mit Quellhöhen kleiner als 4 m zeigt sich ein anderes Verhalten. Die Unsicherheit ist ebenfalls bei quellnahen Messungen am größten, erreicht jedoch nicht die hohen Werte wie bei höher gelegenen Quellen. Es kann aber keine kritische Distanz bestimmt werden, ab welcher die Berechnung gut wird. Die Annäherung der inversen Berechnung an den wahren Wert erfolgt vielmehr sehr langsam. In der überwiegenden Mehrzahl der untersuchten Fälle betrug der aufgrund der Quellparametrisierung begangene Fehler bei einer Messung 50 Meter oder mehr von der Quelle entfernt weniger als 30 %.

Die hier vorgestellten inversen Methoden wurden auf den Flughäfen Budapest und Zürich eingesetzt, um Emissionen auf Flughäfen zu bestimmen. Neben Emissionen von rollenden Flugzeugen wurden die diffusen Emissionen der Abfertigung und der Fracht, sowie Emissionen einer Zubringerstrasse und eines Parkplatzes ermittelt. Die Emissionen der Flugzeuge waren jeweils die stärksten, aber immer in ähnlicher Größenordnung wie die Emissionen der Abfertigung und der Fracht. In Budapest hat sich zudem gezeigt, dass die inverse Methode nach Bayes dazu benutzt werden kann, trotz einer größeren Zahl unbekannter Quellen als bekannter Messungen, einen Erkenntnisgewinn über die Stärke der Emissionen zu erlangen. Für beide Flughäfen wurden die rollenden Flugzeuge als wichtigste Quelle für Stickoxide und Kohlenmonoxid identifiziert. Für die Stickoxide sind jedoch zusätzlich die Emissionen von bodengebundenen Servicefahrzeugen (Abfertigung und Fracht) und von Zubringerstraßen in ähnlicher Größenordnung wie die Flugzeugemissionen. Für Luftqualitätsuntersuchungen bezüglich Stickoxiden können diese Emissionen also nicht vernachlässigt werden.

Die inverse Dispersionsmodellierung wurde hier in einem klar definierten Umfeld vorgenommen. Aufgrund der Arbeit kann aber trotzdem gesagt werden, in welche Richtung die Modelle weiterentwickelt werden können, damit noch bessere Schätzungen möglich sind. Benutzt man die pseudoinverse Methode für relativ kleinräumige Probleme, steht und fällt die Qualität der Ergebnisse mit derjenigen der Vorwärtsmodellierung. Verbesserungen in dieser Sparte werden also vor allem mit einer Verbesserung der Vorwärtsmodelle erreicht werden. Verwendet man allerdings die Bayes'sche Methode für etwas größere Skalen, ist die größte Schwäche des hier vorgestellten Modells die fehlende Berücksichtigung der Chemie. Dies kann behoben werden, indem als Vorwärtsmodell nicht ein Lagrange'sches Dispersionsmodell verwendet wird, sondern ein Modell, welches bereits chemische Umwandlung mitberücksichtigt. Die Verknüpfung von derartigen Chemie-Transport-Modellen mit inversen Methoden bietet aber neben der Handhabung von chemischer Umwandlung noch weitere Möglichkeiten. Emissionen, die von derartigen Modellen benötigt werden, werden mittels Emissionsmodellen bestimmt (beispielsweise wie in Kühlwein und Friedrich, 2005, benutzt).

Wie sich am Beispiel der Flugzeugemissionen von NO und NO<sub>2</sub> andeutete, kann aber quellnah, auf dem Weg von der Punktquelle zum Rand der Gitterzelle eines Chemie-Transport-Modells, bereits wesentliche Chemie oder Physik stattfinden. Mittels inverser Dispersionsmodellierung würde diese effektive Emission direkt bestimmt, und nicht die "reale" Emission am Ort der Quelle. Dadurch könnten durch inverse Methoden verbesserte Emissionen zu einer Verbesserung der Chemie-Transport-Modellierung beitragen. Eine derartige Weiterentwicklung bietet mit der Bayes'schen Methode ein weites Feld an möglichen Anwendungen:

**Überprüfung von Emissionskatastern** Wählt man als a-priori Wissen ein bekanntes Emissionskataster kann mit Hilfe der Baye'schen Methode dieses überprüft und verbessert werden.

**Parameterschätzung** Statt nur die Quellterme mitzuschätzen könnten mittels Bayes'scher Invertierung auch Parameter der Modellierung (Bsp: Diffusionskoeffizient oder Quellausdehnung) mitberücksichtigt werden. Dies wäre dann eine Verknüpfung von Parameterschätzmethoden und inversen Methoden, die methodisch sehr nah verwandt sind.

Zudem kann die Anwendung von Bayes'schen Methoden nicht nur für die reine Forschung von großem Nutzen sein, sondern auch ein Einsatz zur routinemäßigen Bewertung der Luftqualität könnte für zuständige Behörden von großem Interessen sein:

**"Operationelle" Anwendung** Mittels ständiger Kombination von Ausbreitungsmodellierung und Messung durch inverse Methoden auf der einen Seite und der Verwendung von Emissionskatastern als Vorwissen könnten Belastungskarten für Luftschadstoffe verbessert werden. Dank der Anwendung eines Bayes'schen Ansatzes wird dann die Belastung nur dort durch das Emissionskataster bestimmt, wo keine Messung vorliegt. In diesem Sinne entspricht dies einer Datenassimilation für den Spurenstofftransport.

Im Vergleich zu anderen Anwendungen der inversen Methoden in der Atmosphäre (globaler Treibhausgastransport, Bestimmung von Vertikalprofilen) steckt diese für den lokalen Spurenstofftransport noch in den Kinderschuhen. Das Potential das in der Methode, insbesondere im Ansatz nach Bayes, steckt ist noch nicht ausgeschöpft. Mit dieser Arbeit wurde ein erster Schritt in diese Richtung getan und der weitere Weg zum besseren Verständnis der Methode und deren Interpretation verspricht vielfältige Möglichkeiten zur Anwendung inverser Methoden.

"Wer am Ende ist, kann von vorn anfangen, denn das Ende ist der Anfang von der anderen Seite."  
(Karl Valentin)

# Literaturverzeichnis

- AERO-LASER, 2004. CO-Analysator AL5001; Handbuch Version 1.14. Aero-Laser GmbH, Garmisch-Partenkirchen.
- ANALYTICAL SYSTEMS, 1999. TE42C-TL; NO-NOX-NO<sub>2</sub>-Trace Level Analyser. Analytical Systems GmbH, Herne.
- ANSYCO GMBH, 1994. NO/NO<sub>x</sub>-Analysator (Chemilumineszenz), Modell AC31M, zur Immissionsmessung. Ansyco (Analytische Systeme und Komponenten) GmbH, Karlsruhe.
- ANTECHNIKA GMBH, 1983. AC30M; Chemiluminescent nitrogen oxides analyzer. Antechnika GmbH, Karlsruhe.
- ATKINSON R., 2000. *Atmospheric chemistry of VOCs and NO<sub>x</sub>*. Atmospheric Environment **34**, 2063 – 2101.
- BENNETT A.F., 2002. Inverse Modelling of the Ocean and Atmosphere. Cambridge University Press, Cambridge.
- BLACKALL T.D., THEOBALD M.R., MILFORD C., HARGREAVES K.J., NEMITZ E., WILSON L.J., BULL J., BACON P.J., HAMER K.C., WANLESS S., SUTTON M.A., 2004. *Application of tracer ratio and inverse dispersion methods with boat-based plume measurements to estimate ammonia emissions from seabird colonies*. Water, Air, & Soil Pollution: Focus **4**, 279 – 285.
- BOUSQUET P., CIAIS P., PEYLIN P., RAMONET M., MONFRAY P., 1999a. *Inverse modeling of annual atmospheric CO<sub>2</sub> sources and sinks, 1. Method and control inversion*. Journal of Geophysical Research **104**, 26161 – 26178.
- BOUSQUET P., CIAIS P., PEYLIN P., RAMONET M., MONFRAY P., 1999b. *Inverse modeling of annual atmospheric CO<sub>2</sub> sources and sinks, 2. Sensitivity study*. Journal of Geophysical Research **104**, 26179 – 26193.
- CHAI T., CARMICHAEL G.R., SANDU A., TANG Y., DAESCU D.N., 2006. *Chemical data assimilation of transport and chemical evolution over the pacific (TRACE-P) aircraft measurements*. Journal of Geophysical Research **111**, D2301(1–18). doi:10.1029/2005JD005883.
- CLEMITSHAW K.C., 2004. *A review of instrumentation and measurement techniques for ground-based and airborne field studies of gas-phase tropospheric chemistry*. Critical Reviews in Environmental Science and Technology **34**, 1 – 108.

- COONEY C.M., 2006. *Capturing "real-world" aircraft emissions*. Environmental Science & Technology **40**, 4330 – 4331.
- CORSMEIER U., IMHOF D., KOHLER M., KÜHLWEIN J., KURTENBACH R., PETREA M., ROSENBOHM E., VOGEL B., VOGT U., 2005. *Comparison of measured and mode-calculated real-world traffic emissions*. Atmospheric Environment **39**, 5760 – 5775.
- DESJARDINS R.L., DENMEAD O.T., HARPER L., MCBAIN M., MASSÉ D., KAHARABATA S., 2004. *Evaluation of a micrometeorological mass balance method employing an open-path laser for measuring methane emissions*. Atmospheric Environment **38**, 6855 – 6866.
- ELBERN H., SCHMIDT H., TALAGRAND O., EBEL A., 2000. *4D-variational data assimilation with an adjoint air quality model for emission analysis*. Environmental Modelling and Software **15**, 539 – 548.
- ENTING I.G., 2002. *Inverse Problems in Atmospheric Constituent Transport*. Cambridge University Press, Cambridge.
- EUROPEAN ENVIRONMENT AGENCY , 2005. *EMEP/CORINAIR Emission Inventory Guidebook - 2005*. Technical Report, EEA (European Environment Agency).
- FLESCH T.K., 1996. *The footprint for flux measurements, from backward Lagrangian stochastic models*. Boundary-Layer Meteorology **78**, 399 – 404.
- FLESCH T.K., WILSON J.D., YEE E., 1995. *Backward-time Lagrangian stochastic dispersion models and their application to estimate gaseous emissions*. Journal of Applied Meteorology **34**, 1320 – 1332.
- FLESCH T.K., WILSON J.D., HARPER L.A., CRENNAN B.P., SHARPE R.R., 2004. *Deducing ground-to-air emissions from observed trace gas concentrations: A field trial*. Journal of Applied Meteorology **43**, 487 – 502.
- FLESCH T.K., WILSON J.D., HARPER L.A., CRENNAN B.P., 2005. *Estimating gas emissions from a farm with an inverse-dispersion technique*. Atmospheric Environment **39**, 4863 – 4874.
- FLEUTI E., 2004. *Aircraft Ground Handling Emissions at Zurich airport; Methodology and Emission Factors*. Technical Report, Unique (Flughafen Zürich AG).
- FRIEDRICH R., WICKERT B., BLANK P., EMEIS S., ENGEWALD W., HASSEL D., HOFFMANN H., MICHAEL H., OBERMEIER A., SCHÄFER K., SCHMIT T., SEDLMAIER A., STOCKHAUSE M., THELOKE J., WEBER F.J., 2002. *Development of emission models and improvement of emission data for Germany*. Journal of Atmospheric Chemistry **42**, 179 – 206.
- GALLE B., SAMUELSON J., SVENSON B.H., BÖRJESSON G., 2001. *Measurement of methane emissions from landfills using a time correlation tracer method based on FTIR absorption spectroscopy*. Environmental Science & Technology **35**, 21 – 25.



## LITERATURVERZEICHNIS

---

- GERBOLES M., LAGLER F., REMBGES D., BRUN C., 2003. *Assessment of uncertainty of NO<sub>2</sub> measurements by the chemiluminescence method and discussion of the quality objective of the NO<sub>2</sub> european directive*. Journal of Environmental Monitoring **5**, 529 – 540.
- GIMSON N.R., ULIASZ M., 2003. *The determination of agricultural methane emissions in New Zealand using inverse modelling techniques*. Atmospheric Environment **37**, 3903 – 3912.
- GUBBINS D., 2004. *Time Series Analysis and Inverse Theory for Geophysicists*. Cambridge University Press, Cambridge.
- HASHMONAY R.A., YOST M.G., 1999. *Innovative approach for estimating fugitive gaseous fluxes using computed tomography and remote sensing techniques*. Journal of the Air & Waste Management Association **49**, 966 – 972.
- HASHMONAY R.A., YOST M.G., MAMANE Y., BENAYAHU Y., 1999. *Emission rate apportionment from fugitive sources using open-path FTIR and mathematical inversion*. Atmospheric Environment **33**, 735 – 743.
- HASHMONAY R.A., NATSCHKE D.F., WAGONER K., HARRIS D.B., THOMPSON E.L., YOST M.G., 2001. *Field evaluation of a method for estimating gaseous fluxes from area sources using open-path Fourier transform infrared*. Environmental Science & Technology **35**, 2309 – 2313.
- HAUS R., SCHÄFER K., BAUTZER W., HELAND J., MOSEBACH H., BITTNER H., EISENMANN T., 1994. *Mobile Fourier-transform infrared spectroscopy monitoring of air pollution*. Applied Optics **33**, 5682 – 5689.
- HERNDON S.C., SHORTER J.H., ZAHNISER M.S., NELSON D.D., JAYNE J., BROWN R.C., MIAKE-LYE R.C., WAITZ I., SILVA P., LANNI T., DEMERJIAN K., KOLB C.E., 2004. *NO and NO<sub>2</sub> emission ratios measured from in-use commercial aircraft during taxi and takeoff*. Environmental Science & Technology **38**, 6078 – 6084.
- HOURLIN F., TALAGRAND O., 2006. *Eulerian backtracking of atmospheric tracers: Adjoint derivation and parametrization of subgrid-scale transport*. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society **132**, 567 – 583.
- HÖGLUND P.G., 2004. *Parking, energy consumption and air pollution*. Science of the Total Environment **334 - 335**, 39 – 45.
- ICAO, 1993. *Environmental protection, annex 16 vol II, aircraft engine emissions, 2nd edition*. Document sales unit, 1000 Sherbrooke Street West, Suite 400, Montreal, Quebec.
- INGENIEURBÜRO JANICKE, 2004. AUSTAL2000; Programmbeschreibung zu Version 2.1; Stand 2004-12-23. Ingenieurbüro Janicke, Dunum.
- JANICKE L., 2000. *A random walk model for turbulent diffusion*. Bericht zur Umweltphysik, Ingenieurbüro Janicke.
- JANICKE L., JANICKE U., 2000. *Vorschlag eines meteorologischen Grenzschichtmodells für Lagrangesche Ausbreitungsmodelle*. Technical Report, Ingenieurbüro Janicke.

- JANICKE U., JANICKE L., 2004. Weiterentwicklung eines diagnostischen Windfeldmodells für den anlagenbezogenen Immissionschutz (TA Luft). Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit - UFOPLAN 20343256, Im Auftrag des Umweltbundesamtes Berlin.
- JOHNSON K., HUYLIER M., WESTBERG H., LAMB B., ZIMMERMANN P., 1994. *Measurement of methane emissions from ruminant livestock using a SF<sub>6</sub> tracer technique*. Environmental Science & Technology **28**, 359 – 362.
- KAYSER-THREDE, 1998. K300 - Handbuch. Kayser-Threde, München.
- KIRCHGESSNER D.A., PICCOT S.D., CHADHA A., 1993. *Estimation of methane emissions from a surface coal mine using open-path FTIR-spectroscopy and modeling techniques*. Chemosphere **26**, 23 – 44.
- KLJUN N., ROTACH M.W., SCHMID H.P., 2002. *A three-dimensional backward-Lagrangian footprint model for a wide range of boundary-layer stratifications*. Boundary-Layer Meteorology **103**, 205 – 226.
- KÜHLWEIN J., FRIEDRICH R., 2005. *Traffic measurements and high-performance modelling of motorway emission rates*. Atmospheric Environment **39**, 5722 – 5736.
- LAUBACH J., KELLIHER F.M., 2005a. *Measuring methane emission rates of a dairy cow herd (II): results from a backward-Lagrangian stochastic model*. Agricultural and Forest Meteorology **129**, 137 – 150.
- LAUBACH J., KELLIHER F.M., 2005b. *Methane emissions from dairy cows: Comparing open-path laser measurement to profile-based techniques*. Agricultural and Forest Meteorology **135**, 340 – 345.
- LELIEVRE C.P., MAGNANI G., RAMAROSON R., GOURIOU F., SCHAEFER M.T.E.F.G.S.K., CORNIER I., EMEIS S., VANNIER F., PAUX E., COPALLE A., PERROS P., 2006. *Air quality and engine emissions at Paris CDG airport during AIRPUR field campaign*. In LONGHURST J.W.S., BREBBIA C.A., eds., Air Pollution XIV. Proceedings of the 14th International Conference on Air Pollution. WIT Press, Southampton, Boston, 261–276.
- MARGENAT S., CASANOVA J., 2006. *In-use load and emission factors characterization for industrial engines based on exhaust gas analysis*. In JOURMARD R., ed., 2nd conference Environment & Transport, including 15th Transport and Air Pollution. INRETS, volume 2, 304 – 309.
- MARTIEN P., HARLEY R., CACUCI D., 2006. *Adjoint sensitivity analysis for a three-dimensional photochemical model: Implementation and method comparison*. Environmental Science & Technology **40**(8), 2663–2670.
- MCBAIN M.C., DESJARDINS R.L., 2005. *The evaluation of a backward Lagrangian stochastic (bLS) model to estimate greenhouse gas emissions from agricultural sources using a synthetic tracer source*. Agricultural and Forest Meteorology **135**, 61 – 72.

- McCLENNY W.A., WILLIAMS E.J., COHEN R.C., STUTZ J., 2002. *Preparing to measure the effects of the NO<sub>x</sub> SIP call-methods for ambient air monitoring of NO, NO<sub>2</sub>, NO<sub>y</sub>, and individual NO<sub>z</sub> species.* Journal of the Air & Waste Management Association **52**, 542 – 562.
- MCINTYRE A.E., PERRY R.P., 1988. *An air quality impact assessment for the proposed development of Stansted airport.* Journal of the Institution of Water and Environmental Management **2**, 35 – 42.
- MENDOZA-DOMINGUEZ A., RUSSELL A.G., 2001. *Estimation of emission adjustments from the application of four-dimensional data assimilation to photochemical air quality modeling.* Atmospheric Environment **35**, 2879–2894.
- MENSIK C., DE VLIETGER I., NYS J., 2000. *An urban transport emission model for the Antwerp area.* Atmospheric Environment **34**, 4595 – 4602.
- METEK, 2002. USA-1 Ultraschall Anemometer Benutzerhandbuch. Meteorologische Messtechnik GmbH, Elmshorn.
- MOUSSIOPOULOS N., SAHM P., KARATZAS K., PAPALEXIOU S., KARAGIANIDIS A., 1997. *Assessing the impact of the new Athens airport to urban air quality with contemporary air pollution models.* Atmospheric Environment **31**, 1497 – 1511.
- MULHOLLAND M., SEINFELD J.H., 1995. *Inverse air pollution modelling of urban-scale carbon monoxide emissions.* Atmospheric Environment **29**, 497 – 516.
- MÜLLER J.F., STAVRAKOU T., 2005. *Inversion of CO and NO<sub>x</sub> emissions using the adjoint of the IMAGES model.* Atmospheric Chemistry & Physics **5**, 1157–1186.
- NESTER K., PANITZ H.J., 2006. *Sensitivity analysis by the adjoint chemistry transport model DRAIS for an episode in the berlin ozone (berlioz) experiment.* Atmospheric Chemistry & Physics **6**, 2091–2106.
- NUNNEMACKER L.J., KLEINMAN L.I., IMRE D., DAUM P.H., LEE Y.N., LEE J.H., SPRINGSTON S.R., NEWMAN L., GILLANI N., 2000. *NO<sub>y</sub> lifetimes and O<sub>3</sub> production efficiencies in urban and power plant plumes: Analysis of field data.* Journal of Geophysical Research **105**, 9165–9176. doi: 10.1029/1999JD900753.
- OHLROGGE K., WIND J., SCHÄFER K., HOFFMANN H., DORMUTH I., JAHN C., EMEIS S., SZALATA P., FRÖHLING J.C., MARINKAS W., SCHRÖDER H., 2004. Emissionsmessungen an einer Tankstelle mit dem VACONOVENT-System. Deutsche Wissenschaftliche Gesellschaft für Erdöl, Erdgas und Kohle e.V. (DGMK); Forschungsbericht 550-03.
- OP SIS, 1997. DOAS User Guide. Opsis AB, Furulund.
- PICCOT S.D., MASEMORE S.S., RINGLER E.S., SRINIVASAN S., KIRCHGESNER D.A., HERGET W.F., 1994. *Validation of a method for estimating pollution emission rates from area sources using open-path FTIR spectroscopy and dispersion modeling techniques.* Journal of the Air & Waste Management Association **44**, 271 – 279.

## LITERATURVERZEICHNIS

---

- POPP P.J., BISHOP G.A., STEDMAN D.H., 1999. *Method for commercial aircraft nitric oxide emission measurements*. Environmental Science & Technology **33**, 1542 – 1544.
- PRESS W.H., TEUKOLSKY S.A., VETTERLING W.T., FLANNERY B.P., 1992. Numerical Recipes in FORTRAN; The Art of Scientific Computing. Cambridge University Press, Cambridge.
- QUÉLO D., MALLET V., SPORTISSE B., 2005. *Inverse modeling of NO<sub>x</sub> emissions at regional scale over northern france: Preliminary investigation of the second-order sensitivity*. Journal of Geophysical Research **110**, 24310 (1–18). doi:10.1029/2005JD006151.
- R DEVELOPMENT CORE TEAM, 2003. R: A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria.
- RENNER E., GERBER S., 2004. *Bestimmung der Quellstärke diffuser Quellen mittels DOAS-Trassenmessung und anschließender inverser Modellierung*. Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft **64**, 291 – 294.
- RODEAN H.C., 1996. Stochastic Lagrangian models of turbulent diffusion - Meteorological Monographs (Volume 26, Number 48). American Meteorological Society, Boston.
- RODGERS C.D., 2000. Inverse Methods for Atmospheric Sounding; Theory and Praxis. World Scientific Publishing.
- ROGERS H.L., LEE D.S., RAPER D.W., DE F. FOSTER P.M., WILSON C.W., NEWTON P.J., 2002. *The impact of aviation on the atmosphere*. The Aeronautical Journal **106**, 521 – 546.
- ROTACH M.W., GRYNING S.E., TASSONE C., 1996. *A two-dimensional Lagrangian stochastic dispersion model for daytime conditions*. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society **122**, 367 – 389.
- SAMOLI E., AGA E., TOULOUMI G., NISLOTIS K., FORSBERG B., LEFRANC A., PEKKANEN J., WOJTYNIAK B., SCHINDLER C., NICIU E., BRUNSTEIN R., FIKFAK M., SCHWARTZ J., KATSOUYANNI K., 2006. *Short-term effects of nitrogen dioxide on mortality: an analysis within the APHEA project*. European Respiratory Journal **27**, 1129 – 1137.
- SCHMID H.P., 2002. *Footprint modeling for vegetation atmosphere exchange studies: a review and perspective*. Agricultural and Forest Meteorology **113**, 259 – 183.
- SCHÄFER K., STOCKHAUSE M., HOFFMANN H., SEDLMAIER A., EMEIS S., 1998. *Emission source strengths of gasoline-filling processes determined by open-path spectroscopic techniques and inverse modeling*. In SCHAEFER K., ed., Spectroscopic Atmospheric Environmental Monitoring Techniques. SPIE, volume 3493, 223–230.
- SCHÄFER K., EMEIS S.M., STOCKHAUSE M., SEDLMAIER A., HOFFMANN H., DEPTA G., GRONAUER A., 1999. *Emission rates of benzene and ammonia area sources determined by spectroscopic remote measurements and inverse*

- dispersion modeling.* In VO-DINH T., SPELLICY R.L., eds., Environmental Monitoring and Remediation Technologies. SPIE, volume 3534, 212–219.
- SCHÄFER K., HELAND J., LISTER D.H., WILSON C.W., HOWES R.J., FALK R.S., LINDERMEIR E., BIRK M., WAGNER G., HASCHBERGER P., BERNARD M., LEGRAS O., WIESEN P., KURTENBACH R., BROCKMANN K.J., KRIESCHE V., HILTON M., BISHOP G., CLARKE R., WORKMAN J., CAOLA M., GEATCHES R., BURROWS R., BLACK J.D., HERVÉ P., VALLY J., 2000. *Nonintrusive optical measurements of aircraft engine exhaust emissions and comparison with standard intrusive techniques.* Applied Optics **39**, 441 – 455.
- SCHÄFER K., JAHN C., STURM P., LECHNER B., BACHER M., 2003. *Aircraft emission measurements by remote sensing methodologies at airports.* Atmospheric Environment **37**, 5261 – 5271.
- SCHÄFER K., SCHÜRMAN G., JAHN C., FLORES-JARDINES E., UTZIG S., HOFFMANN H., RAPPENGLÜCK B., TÖRÖK S., GROMA V., OSAN. J., 2004. Air Quality Monitoring Campaign at Zurich Airport from 30 June until 15 July 2004. Technical Report, Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK-IFU) & KFKI Atomic Energy Research Institute (KFKI AEKI).
- SCHÄFER K., JAHN C., UTZIG S., FLORES-JARDINES E., SCHÜRMAN G., HOFFMANN H., RUSCH P., R.HARIG, 2005. *Non-intrusive measurements of aircraft exhausts at airports.* VDI-Berichte **1885**, 281 – 285.
- SCHÄFER K., SCHÜRMAN G., JAHN C., FLORES-JARDINES E., UTZIG S., HOFFMANN H., BAUERFEIND M., STEINBRECHER R., STEIGNER D., EMEIS S., TÖRÖK S., GROMA V., OSAN. J., 2006. Airport air quality investigations at the airport Budapest Ferihegy Final Report (Draft). Technical Report, Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK-IFU) & KFKI Atomic Energy Research Institute (KFKI AEKI).
- SCHÜRMAN G., SCHÄFER K., EMEIS S.M., 2004. *Apportionment of emission source strengths using optical remote sensing and dispersion modeling.* In COMERON A., CARLEER M.R., PICARD R.H., SIFAKIS N.I., eds., Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere IX. SPIE, volume 5571, 433–440.
- SCHÜRMAN G., SCHÄFER K., JAHN C., HOFFMANN H., UTZIG S., 2005. *Detection of emission indices of aircraft exhaust compounds by open-path optical methods at airports.* In SCHÄFER K., COMERON A., SLUSSER J.R., PICARD R.H., CARLEER M.R., SIFAKIS N.I., eds., Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere X. SPIE, volume 5979.
- SCHÜRMAN G., SCHÄFER K., EMEIS S., 2006a. *Determination of airport emissions using inverse methods and dispersion models.* In Proceedings of the 7th International Conference on Emission Monitoring.
- SCHÜRMAN G., SCHÄFER K., EMEIS S., JAHN C., HOFFMANN H., 2006b. *Several remote sensing methods for direct determination of aircraft emission at the airports Zurich and Budapest.* In JOUMARD R., ed., 2nd Conference Environment and Transport, including the 15th conference Transport & Air Pollution.

## LITERATURVERZEICHNIS

---

- SCHÜRMAN G., SCHÄFER K., JAHN C., HOFMANN H., BAUERFEIND M., FLEUTI E., RAPPENGLÜCK B., 2007. *The impact of NO<sub>x</sub>, CO and VOC emissions on the air quality of Zurich airport*. Atmospheric Environment **41**, 103 – 118.
- SEINFELD J.H., 1986. Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution. John Wiley & Sons, New York.
- SIEFERT R.L., SCUDLARK J.R., POTTER A.G., SIMONSEN K.A., SAVIDGE K.B., 2004. *Characterization of atmospheric ammonia emissions from a commercial chicken house on the Delmarva Peninsula*. Environmental Science & Technology **38**, 2769 – 2778.
- STAHEL W.A., 1995. Statistische Datenanalyse. Friedr. Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft, Braunschweig.
- STOCKHAUSE M., 2000. Bestimmung von Emissionsraten diffuser Quellen mit Hilfe inverser Modellierung. Schriftenreihe des Fraunhofer-Institut Atmosphärische Umweltforschung, Garmisch-Partenkirchen.
- TA - LUFT, 2002. Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft) Vom 24. Juli 2002. Carl Heymanns Verlag.
- TARANTOLA A., 1987. Inverse Problem Theory. Elsevier Science Publishers B.V., Amsterdam, 2 edition.
- THIES CLIMA, 1993. Gebrauchsanweisung - Kombiniertes Wingeber. Adolf Thies GmbH & Co KG, Göttingen.
- THOMSON D.J., 1987. *Criteria for the selection of stochastic models of particle trajectories in turbulent flow*. Journal of Fluid Mechanics **180**, 529 – 556.
- UNAL A., YONGTAO H., CHANG M.E., ODMAN M.T., RUSSELL A.G., 2005. *Airport related emissions and impacts on air quality: Application to the Atlanta International Airport*. Atmospheric Environment **39**, 5787 – 5798.
- VAUTARD R., BEEKMANN M., MENUT L., 2000. *Application of adjoint modelling in atmospheric chemistry: Sensitivity and inverse modelling*. Environmental Modelling and Software **15**, 703 – 709.
- VDI, 2000. Umweltmeteorologie - Atmosphärische Ausbreitungsmodelle - Partikelmodell; VDI 3945 Blatt 3. Technical Report, Verein Deutscher Ingenieure.
- VDI, 2002. Emissionsbestimmung bei diffusen Quellen; VDI 4285. Technical Report, Verein Deutscher Ingenieure.
- WANG Y.P., BARRETT D.J., 2003. *Estimating regional terrestrial carbon fluxes for the Australian continent using a multiple-constraint approach*. Tellus B **55**, 270 – 289.
- WANG Y.P., BENTLEY S.T., 2002. *Development of a spatially explicit inventory of methane emissions from Australia and its verification using atmospheric concentration data*. Atmospheric Environment **36**, 4965 – 4975.

LITERATURVERZEICHNIS

---

- WILSON J.D., THURTELL G.W., KIDD G.E., BEAUCHAMP E.G., 1982. *Estimation of the rate of gaseous mass transfer from a surface source plot to the atmosphere*. Atmospheric Environment **16**, 1861 – 1867.
- WINER A.M., PETERS J.W., SMITH J.P., PITTS JR. J.N., 1974. *Response of commercial chemiluminescent NO-NO<sub>2</sub> analyzers to other nitrogen-containing compounds*. Environmental Science & Technology **8**, 1118 – 1121.
- YU K.N., CHEUNG Y.P., CHEUNG T., HENRY R.C., 2004. *Identifying the impact of large urban airports on local air quality by nonparametric regression*. Atmospheric Environment **38**, 4501 – 4507.

# Curriculum Vitae

## Angaben zur Person

Name	Gregor Schürmann
Geburtsdatum	22. Oktober 1975
Heimatort	Hildisrieden, Schweiz
Nationalität	Schweizer

## Ausbildung

April 1982 bis Juni 1990 Grundschule in Sommeri und Tägerwilen.

August 1990 bis Januar 1995 Kantonsschule in Kreuzlingen.

Oktober 1995 bis November 2001 Studium der Umweltwissenschaften an der Eidgenössischen Technischen Hochschule (ETH) Zürich. Diplomarbeit am Institut für Atmosphäre und Klima der ETH Zürich mit dem Thema: "Plume-Rise in einem Lagrange'schen Dispersionsmodell".

März 2003 bis Juni 2006 Doktorarbeit am Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Bereich Atmosphärische Umweltforschung, Garmisch-Partenkirchen und an der Fakultät für Angewandte Informatik der Universität Augsburg.