

Universität Augsburg



Untersuchung von numerischen Verfahren
zur Modellierung von Transportprozessen
und chemischer Umwandlung im regionalen
Meteorologie-Chemie-Klima-Modell MCCM

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften

der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität Augsburg

vorgelegt von

Diplom Technomathematiker Edwin Haas

Tag der mündlichen Prüfung: 20. Juli 2007

Erster Gutachter: Prof. Dr. W. Seiler

Zweiter Gutachter: Prof. Dr. R. Hoppe



Forschungszentrum Karlsruhe
in der Helmholtz-Gemeinschaft

Institut für Meteorologie und Klimaforschung
Atmosphärische Umweltforschung (IMK-IFU)

**Universität
Augsburg**



Untersuchung von numerischen Verfahren zur
Modellierung von Transportprozessen und
chemischer Umwandlung im regionalen
Meteorologie-Chemie-Klima-Modell MCCM

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften

der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität Augsburg

vorgelegt von

Diplom Technomathematiker Edwin Haas

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden die für die Feuchteverteilung und luftchemische Zusammensetzung in MM5/MCCM relevanten numerischen Verfahren für den (i) advektiven Feuchtettransport, (ii) advektiven chemischen Spurenstofftransport und (iii) für die chemische Umwandlung der Spurenstoffe untersucht. Dabei wurden die verwendeten Verfahren untersucht, vorhandenen Defizite identifiziert und durch neu entwickelte alternative numerische Verfahren verbessert. Die neu entwickelten Verfahren wurden in das regionale Modell MM5/MCCM eingebaut und evaluiert.

Dabei lässt sich für die oben genannten drei Prozesse Folgendes zusammenfassen:

- (i) **Advektiver Feuchtettransport:** Für die Feuchteadvektion wird in MM5 ein Leapfrog-Verfahren mit einem Zeitfilter benutzt. Das Verfahren zeigt bekannte Defizite, so neigt es zu numerischen Oszillationen und erzeugt durch den glättenden Zeitfilter einen Phasenfehler. Dies kann z.B. zu falschen Unter- und Übersättigungen in der räumlichen Verteilung der Feuchtegrößen führen und damit physikalisch nicht gerechtfertigte Phasenumwandlungsprozesse auslösen. Die davon beeinflusste Temperatur-, Niederschlags- und Strahlungsverteilung ist demzufolge ebenfalls fehleranfällig. Deshalb wurde ein alternatives numerisches Integrations- und Advektionsverfahren entwickelt, welches die beschriebenen Defizite verringert und aufgrund seiner Komplexizität für Klimasimulationen von mehreren Dekaden geeignet ist. Dieses Verfahren wurde für die Feuchteadvektion in MM5 eingebaut. Eine Niederschlagsevaluierung einer einmonatigen Episodensimulation mit DWD-Beobachtungen zeigte für MM5 mit dem neu entwickelten Verfahren bessere Übereinstimmungen in Luv- und Lee-Bereich von Mittelgebirgen. In Bezug auf die simulierten Niederschlagssummen zeigte das neue MM5 ebenfalls bessere Übereinstimmungen mit der Literatur. Die Evaluierung von simulierten Wasserdampfverteilungen mit zeitlich hochaufgelösten vertikalen Lidar-Beobachtungen konnte keine eindeutige Aussage liefern, da die Simulationen aufgrund unzureichender Eingangsdaten zur exakten Modellinitialisierung die meteorologische Situation während des Beobachtungszeitraums nicht exakt wiedergeben konnten.
- (ii) **Advektion chemischer Spurenstoffe:** Räumliche detaillierte Emissionskataster aus Punktquellen (z.B. Schornsteinen und Industrieanlagen) und aus Linienquellen (z.B. Autobahnen) erfordern für hochaufgelöste Luftchemiesimulationen Advektionsverfahren, die die resultierenden starken Gradienten in den Spurenstoffverteilungen möglichst gut erhalten. Das bisherige in MCCM implementierte Advektionsverfahren MPDATA weist eine ausgeprägte numerische Diffusion auf. Um diese Diffusion zu reduzieren, wurden aus der Literatur zwei geeignete, Gradienten erhaltende Advektionsverfahren ausgewählt. Eine neue dreidimensionale Version der Verfahren wurde für die

MCCM-Pseudoflussform und das bodenfolgende σ -Koordinatensystem entwickelt und in MCCM eingebaut. Durch eine Evaluierung von simulierten Spurenstoffkonzentrationen einer 18-tägigen Photosmogepisode mit Beobachtungen des bayerischen Landesamtes für Umwelt wurde gezeigt, dass die neuen Verfahren zu wesentlich realistischeren Spurenstoffkonzentrationen, vor allem während der photochemisch aktiven Tageszeit, führen. Ein Vergleich von simulierten *CO*-Abluffahnen zeigte für die neuen Verfahren deutlich höhere *CO*-Konzentrationen mit wesentlich stärker ausgeprägten Gradienten in den simulierten Abluffahnen. In der Referenzsimulation mit dem MPDATA-Advektionsverfahren wurden die Abluffahnen durch die numerische Diffusion sehr stark auf benachbarte Gitterzellen verteilt, so dass sie kaum mehr zu erkennen waren.

- (iii) **Chemische Umwandlung der Spurenstoffe:** In den letzten Jahren wurden die Gasphasenchemiemechanismen stetig weiterentwickelt, um dem Wissen über die troposphärische Ozon-Chemie und deren biogenen Vorläufersubstanzen Rechnung zu tragen. Es wurde allgemein erwartet, dass die genaueren und komplexeren neuen Mechanismen auch realistischere Spurenstoffverteilungen liefern sollten als der in MCCM verwendete einfachere und ältere RADM2-Mechanismus mit dem QSSA-Löser. Um die Evaluierung von Mechanismen und deren numerische Implementierung unabhängig zu machen, wurden Mechanismen und Integrationsverfahren entkoppelt. Ein neu entwickeltes Verfahren generiert im Preprocessing für jeden gegebenen Mechanismus ein identisches implizites numerisches Integrationsverfahren und stellt durch eine automatische Programmgenerierung dieses dem MCCM als Modul zur Verfügung. Der Vergleich der Chemiemechanismen RADM, RACM und RACM-MIM in MCCM hat für die RADM-Simulation einen systematischen Bias zu höheren Ozonkonzentrationen von ca. 4 ppb gezeigt. Die Unterschiede zwischen den komplexeren RACM und RACM-MIM Mechanismen liegen lediglich bei maximal 1%, mit größeren Unterschieden bei sehr hohen Ozonkonzentrationen. Die Evaluierung der Simulationen mit Beobachtungen an 8 Stationen zeigen anhand von statistischen Größen für RACM-MIM die geringsten Abweichungen und somit die besten Übereinstimmungen. In der praktischen Anwendung hat sich gezeigt, dass in einer regionalen Simulation mit MCCM der RACM-MIM-Mechanismus je nach Anzahl der Gitterpunkte ca. 10 bis 25 % mehr Rechenleistung zur Integration des Gesamtsystems erfordert, als der einfachere RADM-Mechanismus.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	v
1 Einleitung	1
2 Modellbeschreibung	3
2.1 Das Meteorologiemodell MM5	3
2.2 Das Meteorologie-Chemie-Modell MCCC	4
2.3 Nestung	4
2.4 Koordinaten und Gitterstruktur	6
2.5 Modellgleichungen	8
3 Feuchtetransport in MM5/MCCC	11
3.1 Modellierung der Feuchteprozesse in MM5/MCCC	12
3.2 Numerische Advektionsverfahren	13
3.3 Alternative numerische Verfahren und Evaluierungsmethoden	15
3.3.1 Alternatives Zeitintegrations- und Advektionsverfahren für die Feuchtegrößen in MM5/MCCC	16
3.3.2 Numerischer Advektionstest	18
3.3.3 Evaluierung regionaler MM5-Simulationen	19
3.4 Eindimensionale Advektionstests	21
3.5 Regionale Meteorologie-Simulationen mit MM5	24
3.5.1 Niederschlagsevaluierung mit DWD-Beobachtungen	24
3.5.2 Evaluierung der vertikalen Wasserdampfverteilung durch Lidar-Beobachtungen	30
3.5.2.1 Beobachtungsstation Lindenberg	31
3.5.2.2 Beobachtungsstation Leipzig	33
3.5.2.3 Beobachtungsstation Ziegendorf	36
3.6 Zusammenfassung und Bewertung	38
4 Advektion chemischer Spurenstoffe	40
4.1 Spurenstoffadvektion in MCCC und ihre mathematische Modellierung	41
4.1.1 Das Referenzverfahren MPDATA nach Smolarkiewicz	43
4.1.2 Alternative Advektionsverfahren nach Bott	44
4.2 Methoden zur Evaluierung der Advektionsverfahren in MCCC	47
4.2.1 Numerischer Advektionstest im dreidimensionalen regionalen Modell	47
4.2.2 Methoden zur Evaluierung von regionalen Luftchemiesimulationen	48
4.2.3 Untersuchung der Auswirkungen auf eine Photosmogepisode	52

4.3	Dreidimensionaler Advektionsest im regionalen Modell	53
4.4	Auswirkungen der Spurenstoffadvektion in MCCM	57
4.4.1	Spurenstoffverteilung in einer Abluftfahne	58
4.4.2	Regionale Luftchemiesimulationen für die Stadt-Umland Wechselwirkung	60
4.5	Zusammenfassung und Bewertung	72
5	Gasphasenchemiemechanismen in MCCM	78
5.1	Einleitung	78
5.2	Chemiemechanismen - Ein kurzer Überblick und Stand des Wissens	79
5.3	Evaluierungsmethoden für regionale Luftchemiesimulationen	86
5.4	Boxmodell-Vergleich verschiedener Integrationsverfahren und Chemiemechanismen	87
5.4.1	Evaluierung der numerischen Integrationsverfahren	89
5.4.2	Vergleich von Chemiemechanismen	91
5.5	Dreidimensionale Luftchemie-Simulationen	93
5.5.1	Graphische Modellevaluierung	93
5.5.2	Statistische Modellevaluierung	102
5.6	Zusammenfassung und Bewertung	112
6	Diskussion und Ausblick	115
6.1	Vertikale Feuchteadvektion in MM5/MCCM	115
6.2	Advektion chemischer Spurenstoffe	116
6.3	Vergleich von Mechanismen für die troposphärische Luftchemie	119
	Literaturverzeichnis	121
	Abbildungsverzeichnis	128
	Tabellenverzeichnis	132
	Danksagung	134
	Lebenslauf	135

1 Einleitung

Eine der großen Herausforderungen im Bereich der Atmosphärenforschung ist es, die Veränderungen des Klimas und ihre Folgen für Anthroposphäre und Biosphäre vorherzusagen. Dabei geht es zunächst darum, das System Erde, in dem eine Vielzahl komplexer Prozesse ablaufen, zu verstehen. Ein wichtiges Hilfsmittel zur Erlangung dieses Verständnisses sind numerische Modelle. Die Entwicklung numerischer Modelle hat in den letzten Jahrzehnten sehr große Fortschritte gemacht, sodass sie seit geraumer Zeit auch schon für eine Abschätzung des zukünftigen Klimawandels und seiner Folgen verwendet werden.

Globale Klimamodelle beschreiben die wichtigsten klimarelevanten physikalischen und chemischen Vorgänge und deren Wechselwirkungen in der Atmosphäre, den Ozeanen und auf der Erdoberfläche. Das System mit seinen Wechselwirkungen ist so umfangreich, dass die globalen Modelle nur in einer sehr groben räumlichen Auflösung (von mehreren hundert Kilometern) betrieben werden können und daher kaum in der Lage sind, regionale Besonderheiten zu berücksichtigen, die das regionale Klima und die daraus resultierenden Folgen bestimmen. Es ist deshalb zwingend erforderlich, regionale Modelle zu entwickeln, die je nach Anwendungsgebiet wesentlich feinere räumliche Auflösungen besitzen. Im Gegensatz zu den globalen Klimamodellen können die regionalen Klimamodelle nur einen begrenzten Teil der Erdoberfläche, dafür aber mit kleineren Gitterweiten behandeln. Die an den seitlichen Rändern benötigten Randbedingungen werden aus den Simulationen der Klimaszenarien mit einem globalen Modell gewonnen. Man spricht dabei vom Antrieb eines regionalen Modells durch ein globales Modell.

Globalen und regionalen Klimamodellen ist es gemein, dass sie klimarelevante Prozesse nur vereinfacht darstellen können. Zu erwähnen sind hier vor allem Prozesse in der Biosphäre und der Atmosphäre sowie deren komplexe Wechselwirkungen, die meistens nur sehr eingeschränkt und vereinfacht berücksichtigt werden können. Um auch die durch die Klimaänderung ausgelösten Rückkopplungsmechanismen verschiedener Prozesse berücksichtigen zu können, werden gekoppelte Klimamodelle entwickelt, in denen die regionalen Klimamodelle mit anderen Modellen, z.B. der Biosphäre, Luftchemie, Hydrologie u.a. gekoppelt werden.

Ein solches gekoppeltes regionales Luftchemie-Klimamodell ist das mesoskalige Meteorologie-Chemie-Modell MCCM (Multiscale Climate Chemistry Model, Grell u.a. 2000) das am IMK-IFU entwickelt worden ist. Es basiert auf dem mesoskaligen Meteorologiemodell MM5 (Dudhia, 1993; Grell u.a., 1994), das in den 90er Jahren von der Penn State University und NCAR (National Center for Atmospheric Research) als Nachfolgemodell des hydrostatischen Modells MM4 (Anthes u.a., 1987) entwickelt wurde. MM5 ist ein Community Modell, das im Laufe der Jahre durch eine Vielzahl von Anwendern ständig erweitert und verbessert wurde. Die zugrunde liegenden Diskretisierungen der partiellen Differentialgleichungen beruhen aber immer noch auf den Verfahren aus MM4 (Anthes u.a., 1987; Grell u.a., 1994). Aus der

Literatur sind erhebliche Defizite der verwendeten numerischen Verfahren bekannt. Diese Defizite können zu einer ungenauen Behandlung physikalischer und chemischer Prozesse und damit zu einer fehlerhaften Beschreibung klimarelevanter Modellgrößen führen.

Diese Arbeit konzentriert sich insbesondere auf die luftchemische Zusammensetzung und die Feuchteverteilung der Troposphäre, die unseren Lebensraum in starkem Maße beeinflussen. Dies gilt insbesondere für die in klimasensitiven Regionen, in denen bereits kleine Änderungen im Niederschlag große Auswirkungen auf die Vegetation und die dortigen Lebensbedingungen haben. Darüber hinaus beeinflusst der atmosphärische Feuchtezustand auch die Bewölkungsverhältnisse und damit weitgehend auch das Strahlungsfeld. Dieses wirkt sich direkt auf die Photolyse und damit auch auf die luftchemische Zusammensetzung in der Atmosphäre aus. Die chemische Zusammensetzung wiederum ist für die Lebensbedingungen insbesondere in Großstädten und Ballungsräumen von großer Bedeutung.

Entscheidende Prozesse für die Feuchteverteilung und luftchemische Zusammensetzung sind (i) der Feuchtetransport, (ii) der Transport und (iii) die chemische Umwandlung der chemischen Spurenstoffe. Im Rahmen dieser Arbeit werden dabei die relevanten numerischen Verfahren in MM5/MCCM untersucht, die vorhandenen Defizite identifiziert und durch die Entwicklung neuer numerischer Verfahren verbessert.

Die Modellierung und Simulation von Detailprozessen für die oben genannten drei Teilspekte (i) - (iii) erfolgte zunächst in einem einfachen isolierten numerischen Modell, mit dem sich die zu untersuchenden Prozesse nachbilden ließen. Nur in einem solchen von äußeren Einflüssen isolierten Modell können die numerischen Eigenschaften ungestört untersucht und bewertet werden. Mit Hilfe der so gewonnen Erkenntnisse konnte ein Verfahren letztlich als geeignet ausgewählt und in das regionale Modell eingebaut werden.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in insgesamt sechs Kapitel. Zunächst werden in Kapitel 2 die Modelle MM5 und MCCM, sowie die Formulierung der Modellgleichungen im MM5-Koordinatensystem vorgestellt. Kapitel 3 behandelt die numerische Beschreibung der Feuchteadvektion in MM5 und MCCM, Kapitel 4 behandelt die Modellierung der Advektion der chemischen Spurenstoffe in MCCM. Kapitel 5 beschäftigt sich mit der Modellierung der chemischen Umwandlung in MCCM hinsichtlich verschiedener Gasphasenchemiemechanismen. Im Kapitel 6 erfolgen eine kurze Zusammenfassung, Diskussion und Ausblick.

2 Modellbeschreibung

2.1 Das Meteorologiemodell MM5

Das PSU/NCAR Meteorologiemodell MM5 (Grell u. a., 1994) ist ein nichthydrostatisches „*Limited Area Model*“ (LAM) mit bodenfolgenden Koordinaten. Es wurde an der Penn State Universität und am National Center of Atmospheric Research (NCAR) als „Community Model“ entwickelt um die atmosphärische Zirkulation im mesoskaligen Bereich mit Auflösungen von etwa 1 bis 100 km zu simulieren. Die wesentlichen Eigenschaften von MM5 sind die *Multinesting-Fähigkeit* einschließlich beweglicher Nester, *nicht-hydrostatische Dynamik*, welche die Simulation von Prozessen unter 10 km Auflösung erlaubt, *vollständige plattformunabhängige Parallelisierung oder Vektorisierung* (MPI, OpenMP und HPF) für verschiedene Computer-Architekturen, *vierdimensionale Datenassimilation* und eine Vielzahl verschiedener *Optionen zur Behandlung der physikalischen Prozesse*. Dazu gehören die Wolken- und Niederschlagsbildung, Austauschprozesse in der Grenzschicht und am Boden, sowie die lang- und kurzwelligen atmosphärischen Strahlungsvorgänge. Angekoppelt ist ein Boden-, Schnee- und Vegetationsmodell zur Berechnung des Wärme- und Feuchtehaushalts in den oberen Bodenschichten.

Das vollständige Modellsystem besteht neben dem eigentlichen Simulationsprogramm MM5 aus einer Kette von Pre- und Postprocessor-Programmen. Abb. 2.1 zeigt den Datenfluß zwischen den einzelnen Teilen des Systems. Das erste Modul der Preprocessor-Kette (TERRAIN) legt das Modellgebiet fest und bereitet geographische Eingangsdaten (Orographie, Vegetation, Bodentyp etc.) auf. Anschließend werden meteorologische Eingangsdaten (auf Druckflächen gegebene atmosphärische Strömungs-, Feuchte-, Temperatur- und Geopotentialfelder, sowie das Bodendruckfeld) aus globalen Zirkulationsmodellen durch ein weiteres Modul (REGRID) aufbereitet. Der meteorologische Eingangsdatensatz kann durch zusätzliche Boden- und Radiosondenbeobachtungen ergänzt werden (RAWINS oder LITTLE_R). Ein weiteres Modul (INTERP) führt eine vertikale Interpolation der atmosphärischen Eingangsdaten von den Druckflächen auf die von MM5 verwendeten geländefolgenden Koordinaten (siehe Abschnitt 2.4) durch und stellt Anfangsbedingungen, sowie die für den gesamten Simulationszeitraum benötigten Randbedingungen zur Verfügung. Dies ist notwendig, da MM5 als Limited-Area-Modell nur einen begrenzten Teil der Atmosphäre betrachtet. Eine genaue Beschreibung aller MM5-Optionen, sowie aller Pre- und Postprocessor-Programme findet man auf der MM5-Homepage (2004) und bei Dudhia (2000).

The MM5 Modeling System Flow Chart

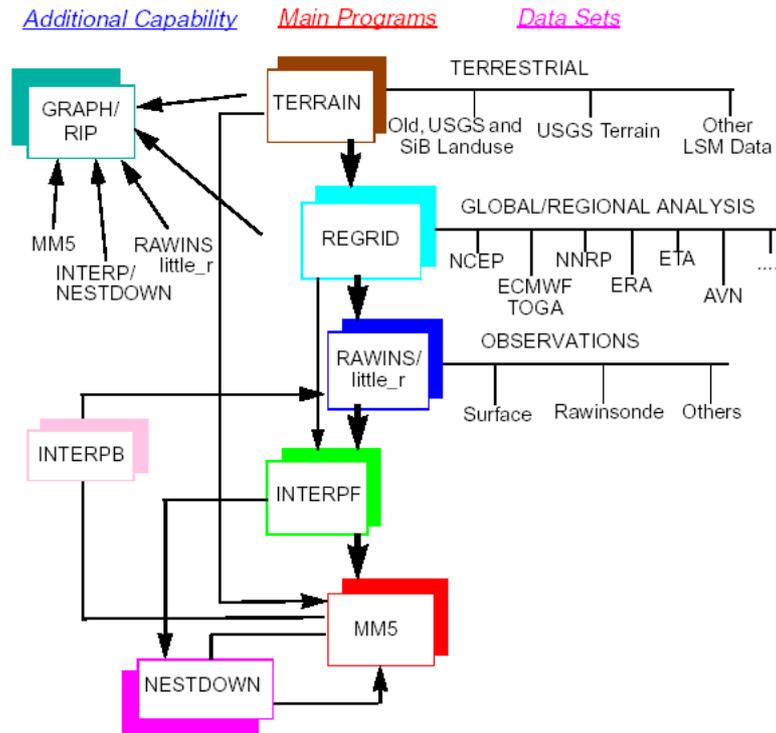


Abbildung 2.1: Datenfluss des MM5-Modellsystems, Quelle: Dudhia (2000)

2.2 Das Meteorologie-Chemie-Modell MCCM

Das Modellsystem MCCM wurde im Laufe der letzten Jahre auf der Grundlage des Meteorologiemodells MM5 entwickelt. Dazu wurde MM5 mit einem Chemietransportmodell (CTM) *online gekoppelt*. Mathematisch bedeutet online gekoppelt, dass für jede chemische Spezies eine entsprechende Erhaltungsgleichung formuliert wird, welche zusammen mit den MM5-Gleichungen simultan integriert wird. Dabei wird für die Spurenstoffe die Advektion, turbulente Diffusion, Deposition, Emission und die chemische Umwandlung berechnet. Ein online gekoppeltes Modell ist durch die simultane Integration prinzipiell auch in der Lage, eine Rückkopplung der chemischen Veränderungen auf das Meteorologiemodell zu gewährleisten.

Im Gegensatz dazu arbeiten *offline gekoppelte* Chemietransportmodelle mit externen meteorologischen Antriebsdaten für den gesamten Simulationszeitraum. Diese Daten können zum Beispiel auch aus einer zuvor durchgeführten MM5-Simulation stammen. Aufgrund der großen Datenmenge wird man diese jedoch nur in einer relativ groben zeitlichen Auflösung bereitstellen können.

2.3 Nestung

MM5/MCCM simuliert als Limited-Area-Model nur einen ausgewählten Bereich auf der Erde. Dabei ermöglicht die Nestung („Nesting“) die Simulation von weiteren Teilbereichen in einer höheren Auflösung. Das eingebettete Teilgebiet wird als „Nest“ bezeichnet. Prinzipiell sind beliebig viele Stufen des Nestens möglich, wobei die benötigten Rand- und Anfangs-

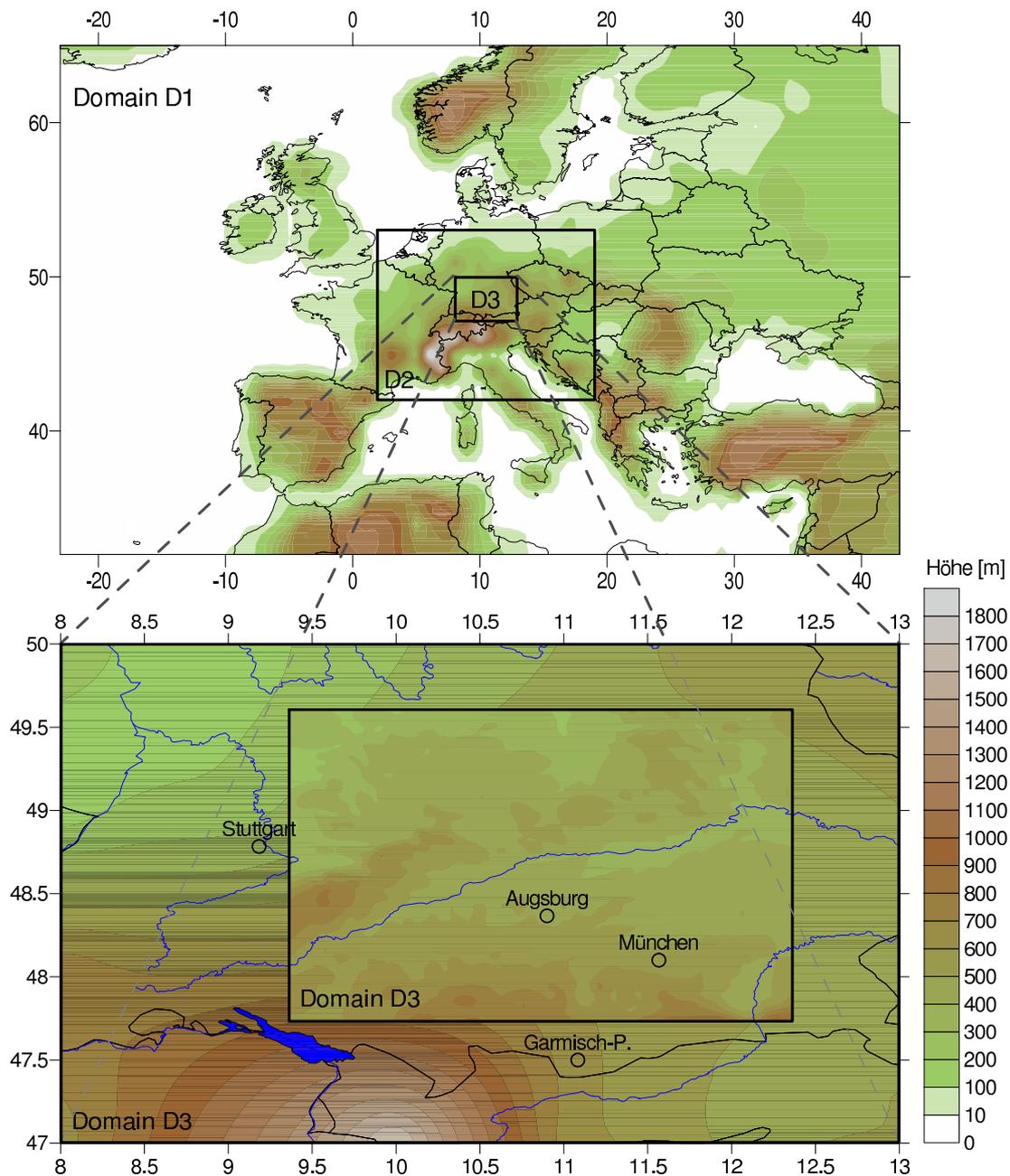


Abbildung 2.2: Modellorographie und Nestung der Modellgebiete: D1 (54 km Auflösung), D2 (18 km Auflösung), D3 (6 km Auflösung) und D4 (2 km Auflösung)

bedingungen aus der jeweils übergeordneten Simulation entnommen werden. Abb. 2.2 zeigt die Modellkaskade einer Dreifach-Nestung. Das Gebiet D1 erhält die Anfangs- und Randbedingungen als Antrieb aus den (Re-)Analysen bzw. Simulationen eines globalen Modells, während das Gebiet D2 diese aus den Zustandsgrößen von Gebiet D1 erhält. In analoger Weise wird mit den Gebieten D3 und D4 verfahren. Bei MCCM werden für die Anfangs- und Randbedingungen neben den meteorologischen Größen auch die chemischen Spurenstoffe aus den Simulationsergebnissen für das jeweils übergeordnete Gebiet herangezogen.

Man spricht im Zusammenhang mit der Nestung auch von *Downscaling*, da hier Daten auf einer groben Skala (z.B. von globalen Klimamodellen) durch die Nestung dynamisch auf eine regionale feinere Skala herunterskaliert werden.

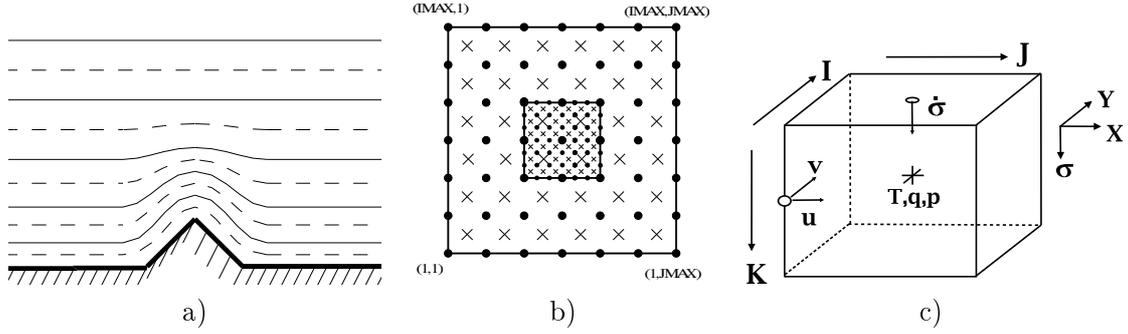


Abbildung 2.3: a) Skizze für bodenfolgende Koordinaten mit σ -Schichten; b) Horizontale Gitterstruktur mit Nest: An den Punkten sind die Horizontalgeschwindigkeiten u und v , an den Kreuzen alle restlichen Größen definiert; c) Gitterzelle mit (Arakawa-B) Gitter für die skalaren Größen (z.B. T, q, p) und die Geschwindigkeitskomponenten u, v und $\dot{\sigma}$

2.4 Koordinaten und Gitterstruktur

In MM5/MCCM können mehrere verschiedene Projektionen der Erdoberfläche für die Darstellung im Modell gewählt werden. Es stehen die Mercator-, Lambert- und polar-stereographische Projektion zur Verfügung. Dabei eignet sich die Mercatorprojektion (Zylinderprojektion) am Besten zur Darstellung von äquatorialen Gebieten, die Lambertprojektion (kanonische Projektion) für mittlere Breiten wie z. B. Europa und die polar-stereographische Projektion für polare Gebiete.

Da die gekrümmte Erdoberfläche auf einer Ebene dargestellt wird, ergibt sich ein richtungseinheitlicher aber vom Ort abhängiger Skalierungsfaktor m (map scale factor), welcher zur Umrechnung von Längenverhältnissen benötigt wird:

$$m = \frac{ds_{\text{Projektion}}}{ds_{\text{Erde}}} = \frac{\text{Entfernung in der Projektion}}{\text{Entfernung auf der Erde}} \quad (2.1)$$

MM5 verwendet eine hydrostatische, eindimensionale Referenzatmosphäre, repräsentiert durch Dichte $\rho_0(z)$, Druck $p_0(z)$ und Temperatur $T_0(z)$. Die Hydrostasiebedingung lautet dann

$$\frac{\partial p_0}{\partial z} = -g\rho_0 \quad (2.2)$$

wobei mit z die Höhe und mit g die Schwerebeschleunigung bezeichnet wird.

Das MM5-Koordinatensystem verwendet horizontal krummlinige Koordinaten und statt der Höhe wird eine oberflächenfolgende Koordinate verwendet. Diese ist eine auf die Referenzatmosphäre bezogene, zeitlich konstante σ -Druck-Koordinate, welche durch

$$\sigma = \frac{p_0 - p_t}{p_s - p_t} = \frac{p_0 - p_t}{p^*} \quad (2.3)$$

definiert ist. Mit p_0 ist der Referenzdruck, mit p_t der Referenzdruck am oberen Modellrand, mit p_s der Referenzdruck an der Erdoberfläche und mit p^* die Druckdifferenz zwischen dem unteren und oberen Modellrand bezeichnet. Aus Gl. (2.3) wird sofort ersichtlich, dass diese verallgemeinerte Vertikalkoordinate σ am oberen Modellrand den Wert $\sigma = 0$ und an der Erdoberfläche den Wert $\sigma = 1$ annimmt. Somit liegt der Nullpunkt des Koordinatensystems auf dem oberen Modellrand. Die geländefolgende σ -Koordinate ist in Abb. 2.3a dargestellt.

Betrachtet man einen Punkt auf der Erde, so erhält man für die differentiellen Linienelemente

$$\begin{aligned} \text{entlang Breitenkreisen} \quad ds_\lambda &= R \cos \phi d\lambda \\ \text{entlang Meridianen} \quad ds_\phi &= R d\phi \end{aligned} \quad (2.4)$$

mit R als mittlerem Referenzradius der Erde und λ und ϕ als geographische Länge und Breite. Ein horizontales differentielles Flächenelement schreibt sich damit als

$$dF = ds_\lambda ds_\phi \quad (2.5)$$

und ein differentielles Volumenelement als

$$dV = ds_\lambda ds_\phi dz \quad (2.6)$$

wobei dz ein differentielles Linienelement entlang der Vertikalen bezeichnet. Werden die aus der Projektion resultierenden, in MM5 verwendeten Horizontalkoordinaten mit x und y bezeichnet, so ergibt sich für ein horizontales differentielles Flächenelement (2.5) in der Projektion

$$dF = \frac{1}{(m(x, y))^2} dx dy \quad (2.7)$$

Die Transformation von z nach σ

$$dz = \left| \frac{\partial z}{\partial \sigma} \right| d\sigma \quad (2.8)$$

ist unabhängig von der geographischen Lage. Mit Gl. (2.3) und (2.2) ergibt sich

$$\frac{\partial z}{\partial \sigma} = \frac{\partial z}{\partial p_0} \frac{\partial p_0}{\partial \sigma} = -\frac{1}{\rho_0 g} p^* \quad (2.9)$$

Damit wird das differentielle Volumenelement (2.6) zu

$$dV = \frac{1}{m^2} dx dy \left| \frac{\partial z}{\partial \sigma} \right| d\sigma = -\frac{1}{m^2} \frac{1}{\rho_0 g} p^* dx dy d\sigma \quad (2.10)$$

Somit erhält man für die Funktionaldeterminante

$$F = -\frac{1}{m^2} \frac{1}{\rho_0 g} p^* \quad (2.11)$$

und das differentielle Volumenelement läßt sich als

$$dV = F dx dy d\sigma \quad (2.12)$$

schreiben.

Für die numerische Lösung verwendet MM5/MCCM ein dem oben beschriebenen Koordinatensystem angepasstes numerisches Gittersystem mit konstantem horizontalen Gitterabstand. Es handelt sich dabei um ein sogenanntes Arakawa-B Gitter (staggered grid). Das Gitter der Geschwindigkeitskomponenten ist gegen das Gitter der skalaren Größen um eine halbe Gitterweite versetzt. Dies wirkt sich günstig auf die Stabilität bei der numerischen Integration der Geschwindigkeits- und Druckgleichung aus (Peyret und Taylor, 1983). Dabei

sind alle skalaren meteorologischen Größen (und bei MCCM zusätzlich alle chemischen Spurenstoffe) in der Zellenmitte definiert. Die horizontalen Geschwindigkeitskomponenten u und v sind an den Zellkanten in der Schichtmitte und die vertikale Geschwindigkeitskomponente σ in der Mitte der vertikalen Zellbegrenzungsflächen definiert (siehe Abb. 2.3).

2.5 Modellgleichungen

Die atmosphärischen Modellgleichungen in MM5/MCCM sind aus den allgemeinen Erhaltungsgleichungen für Impuls, Energie und Masse sowie den Zustandsgleichungen für ein Fluid abgeleitet. Es sind dies die prognostischen Gleichungen für die drei Geschwindigkeitskomponenten, die Temperatur, die Feuchte und den Druck. Die Druckgleichung wird approximativ aus den Erhaltungsgleichungen von Masse und Energie für ein kompressibles Gas und der Zustandsgleichung für ein ideales Gas abgeleitet. Es gibt keine explizite Erhaltungsgleichung für die Luftmasse. Eine genaue Beschreibung der Modellgleichungen findet sich bei Grell u. a. (1994) oder Dudhia (1993).

MM5/MCCM betrachtet die Feuchtegrößen und die chemischen Spurenstoffe als Mischungsverhältnisse zur trockenen Luft. Eine Modellgleichung für das Wasserdampf-mischungsverhältnis wird hier exemplarisch hergeleitet. Man betrachtet dazu zunächst ein kontinuierliches Medium im dreidimensionalen Raum mit dem Ortsvektor $\vec{x} = (x_1, x_2, x_3)$, der Massendichte $\rho(\vec{x}, t)$ und der dreidimensionalen Geschwindigkeit $\vec{u}(\vec{x}, t) = (u_1, u_2, u_3)$. Alle Größen seien hinreichend glatt, sodass der Gaußsche Integralsatz angewendet werden kann. Nach Chorin und Marsden (2000) lautet die Kontinuitätsgleichung in der Euler-Formulierung in einem raumfesten Gebiet Ω_0 in integraler Form

$$\int_{\Omega_0} \left[\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \vec{u}) \right] dV = 0 \quad (2.13)$$

und in differentieller Form

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \vec{u}) = 0 \quad (2.14)$$

Gl. (2.14) wird auch als Flussform der Massenerhaltungsgleichung bezeichnet. Sie lässt sich unmittelbar auf eine nur aus trockener Luft bestehende Atmosphäre übertragen, wobei nun ρ die Dichte der trockenen Luft bezeichnet. In einer realen Atmosphäre mit gasförmigen, flüssigen und festen Beimengungen gilt (2.14) in guter Näherung weiter, wobei dann ρ als Partialdichte der trockenen Luft innerhalb der feuchten Gesamtluft zu interpretieren ist. Für die Komponente Wasserdampf mit der Dichte ρ_q gilt bei Vernachlässigung von molekularen Diffusionseffekten approximativ

$$\frac{\partial \rho_q}{\partial t} + \text{div}(\rho_q \vec{u}) = \rho Q \quad (2.15)$$

mit Q als eine auf die trockene Luft bezogene Produktionsrate aufgrund von Phasenumwandlungen. Mit der Definition des Feuchtemischungsverhältnisses

$$q = \frac{\rho_q}{\rho} \quad (2.16)$$

ergibt sich daraus

$$\frac{\partial(q\rho)}{\partial t} + \operatorname{div}(q\rho\vec{u}) = \rho Q \quad (2.17)$$

Durch Entwickeln der Differentialoperatoren und unter Berücksichtigung von Gl. (2.14) erhält man die Advektionsform

$$\frac{\partial q}{\partial t} + \vec{u} \cdot \operatorname{grad} q = Q \quad (2.18)$$

Zusammenfassend ergeben sich

$$\begin{array}{ll} \text{Advektionsform} & \frac{\partial q}{\partial t} = -\vec{u} \cdot \operatorname{grad} q + Q \\ \text{Flussform} & \frac{\partial(q\rho)}{\partial t} = -\operatorname{div}(q\rho\vec{u}) + \rho Q \\ \text{Kontinuitätsgleichung} & \frac{\partial \rho}{\partial t} = -\operatorname{div}(\rho\vec{u}) + \rho Q \end{array} \quad (2.19)$$

Dabei ist die Advektionsform (2.18) plus Kontinuitätsgleichung (2.14) gleichwertig mit der Flussform (2.17) plus Gl. (2.14).

MM5 entstand aus dem hydrostatischen Modell MM4 (Dudhia, 1993), welches auf einer hydrostatischen Dichteverteilung basiert. Die Erhaltungsgleichung für q wurde in der Flussform (2.17) mit einer hydrostatischen Dichte ρ formuliert. In MM5 wird die Erhaltungsgleichung mit einer zeitlich konstanten Referenzdichte ρ_0 formuliert, sodass sie formal weitgehend der MM4-Gleichung entspricht. Diese sogenannte Pseudo-Flussform

$$\frac{\partial(\rho_0 q)}{\partial t} + \operatorname{div}(q\rho_0\vec{u}) - q \operatorname{div}(\rho_0\vec{u}) = \rho_0 Q \quad (2.20)$$

erhält man durch Multiplikation der Advektionsform 2.18 mit ρ_0 und nachfolgender mathematischer Umformung des Advektionsterms. Im Vergleich zur echten Flussform enthält diese Gleichung zusätzlich einen Divergenzterm. Durch diese Formulierung der Erhaltungsgleichung konnte in MM5 ein wesentlicher Teil der numerischen Verfahren aus MM4 weiterverwendet werden.

Transformiert man Gl. (2.20) in generalisierte Koordinaten, so ergibt sich unter Verwendung der Funktionaldeterminanten F

$$\frac{\partial(\rho_0 F q)}{\partial t} = - \sum_i \frac{\partial(\rho_0 F \dot{r}_i q)}{\partial r_i} + q \sum_i \frac{\partial(\rho_0 F \dot{r}_i)}{\partial r_i} + \rho_0 F Q \quad (2.21)$$

In MM5 werden die generalisierten Koordinaten r_i und die generalisierten Geschwindigkeiten \dot{r}_i als

$$\begin{aligned} r_1 &= x, & \dot{r}_1 &= m u \\ r_2 &= y, & \dot{r}_2 &= m v \\ r_3 &= \sigma, & \dot{r}_3 &= \dot{\sigma} \end{aligned} \quad (2.22)$$

bezeichnet, wobei die hier verwendeten Größen u und v mit dem Inversen des Projektionsfaktors m (2.1) skaliert sind und somit direkt den Geschwindigkeiten auf der gekrümmten Erde entsprechen.

Durch Einsetzen von Gl. (2.11) und (2.22) in die Erhaltungsgleichung (2.21) und unter Berücksichtigung der zeitlichen Konstanz der Funktionaldeterminante (2.11), erhält man schließlich mit

$$\begin{aligned} \frac{1}{m^2} \frac{\partial (p^* q)}{\partial t} = & - \left[\frac{\partial \left(\frac{q u p^*}{m} \right)}{\partial x} + \frac{\partial \left(\frac{q v p^*}{m} \right)}{\partial y} + \frac{\partial \left(\frac{q \dot{\sigma} p^*}{m^2} \right)}{\partial \sigma} \right] \\ & + q \left[\frac{\partial \left(\frac{u p^*}{m} \right)}{\partial x} + \frac{\partial \left(\frac{v p^*}{m} \right)}{\partial y} + \frac{\partial \left(\frac{\dot{\sigma} p^*}{m} \right)}{\partial \sigma} \right] + \frac{p^*}{m^2} Q \end{aligned} \quad (2.23)$$

die MM5-Pseudo-Flussform der Erhaltungsgleichung für das (Wasserdampf-) Feuchtemischungsverhältnis q .

3 Feuchtetransport in MM5/MCCM

Für das regionale Modell MM5 hat eine möglichst genaue Wiedergabe der räumlichen und zeitlichen Verteilung von Feuchtegrößen eine zentrale Bedeutung. Die vertikale Feuchteverteilung beeinflusst Kondensations- und Niederschlagsprozesse, sowie die daran gekoppelten lang- und kurzwelligen Strahlungsvorgänge, welche wiederum großen Einfluss auf den terrestrischen Wärmehaushalt haben. Wasserdampf und Wolkenwasser aber auch Wolkeneis sind wichtige Eingangsgrößen für die Chemie- und Aerosolmechanismen in MCCM und ihr Einfluss auf das kurzwellige Strahlungsfeld hat große Auswirkungen auf die bodennahe räumliche und zeitliche Verteilung von Spurenstoffen.

Bei der Entwicklung von MM5 wurden alle Erhaltungsgleichungen in einer Pseudoflussform formuliert, unter anderem um in MM5 einen wesentlichen Teil der Numerik aus den Vorgängermodell MM4 weiterverwenden zu können (Anthes u. a., 1987; Dudhia, 1993; Grell u. a., 1994). Dazu zählt vor allem die Zeitintegration und das Leapfrog-Advektionsschema. Das Zeitintegrationsverfahren verwendet eine *zentrierte Differenz zweiter Ordnung* mit einem Zeitfilter nach Asselin (1971), durch den allerdings ein *numerischer Phasenfehler* induziert wird. Das Leapfrog-Advektionsschema neigt dazu, *unphysikalische Oszillationen* und *gegenläufige Wellen* zu erzeugen (Pielke, 2002; Schaer und Torrilhon, 2003; Thomas, 1995). Die MM5-Implementierung des Leapfrog-Verfahrens verletzt zusätzlich die *Massenerhaltung* dadurch, dass positive Definitheit durch Nullsetzen negativer Werte explizit erzwungen werden muss. Diese Defizite der verwendeten numerischen Verfahren können in MM5 zu gravierenden Fehlern in der räumlichen und zeitlichen Feuchteverteilung führen. Die Fehler übertragen sich auch auf abgeleitete Größen wie Niederschlag, Bewölkung und Strahlungsverteilung und beeinflussen in MCCM damit auch die Bildung und Verteilung von chemischen Spurenstoffen.

In diesem Zusammenhang wird hier die Hypothese aufgestellt, dass ein neues Zeitintegrations- und Advektionsverfahren, welches die oben genannten Defizite nicht oder nur in wesentlich geringerem Maße aufweist, den advektiven Transport in MM5 wesentlich besser beschreiben kann. Es wird erwartet, dass insbesondere Verfahren die keine numerischen Oszillationen aufweisen zu ausgeprägteren und realistischeren Feuchteprofilen führen. Diese sollten das Einsetzen und die Intensität von Phasenumwandlungsprozessen und somit die Stärke von Bewölkung und Niederschlag genauer wiedergeben.

Um diese Hypothese prüfen zu können, werden zunächst verschiedene numerische Advektionsverfahren in einem eindimensionalen Modell auf ihre Advektionseigenschaften hin untersucht. Darauf aufbauend wird ein geeignetes alternatives Verfahren auf einem nicht äquidistanten Gitter für die Implementierung in MM5 ausgewählt. Für die Integration des neuen Verfahrens in MM5 muss allerdings das MM5-Zeitintegrationsverfahren für die Erhaltungsgleichungen aufgebrochen werden. Die Erhaltungsgleichungen für Impuls und Energie sowie die Druckgleichung werden wie bisher mit dem zentrierten Differenzenverfahren integriert,

während die Erhaltungsgleichungen der Feuchtegrößen durch das neue explizite Integrationsverfahren behandelt werden. Dabei wird darauf geachtet, dass die Integration konsistent zu den restlichen Modellgleichungen (Druck, Impuls und Energie) auf 3 Zeitniveaus definiert wird. Damit ist sichergestellt, dass wie beim original MM5, alle Modellgleichungen (Erhaltungsgleichungen für Impuls, Energie und Feuchtegrößen, sowie die Druckgleichung) simultan gekoppelt integriert werden.

Durch vergleichende Simulationen mit dem modifizierten und dem originalen MM5 wird anschließend untersucht, wie sich das neue Integrations- und Advektionsverfahren auswirkt. Für die Modellevaluierung werden Niederschlagsdaten des Deutschen Wetterdienstes (DWD) und 3D-Wasserdampfverteilungen aus Lidar-Messungen herangezogen.

3.1 Modellierung der Feuchteprozesse in MM5/MCCM

MM5 beschreibt je nach Wahl der zur Verfügung stehenden Physikoptionen die Entwicklung von bis zu 7 Feuchtekomponenten (Wasserdampf, Wolkenwasser und Regen, Wolkeneis und Schnee und zwei Graupel/Hagelgrößen) (Dudhia, 2000; Grell u. a., 1994). Jede dieser Feuchtegrößen wird durch Erhaltungsgleichungen kontrolliert, welche über Phasenübergänge miteinander gekoppelt sind.

Im numerischen Modell spielt die räumliche Auflösung eine wichtige Rolle, da die behandelten physikalischen Prozesse auf unterschiedlichen räumlichen Skalen ablaufen. Die räumliche Auflösung bestimmt, ob das numerische Modell Prozesse explizit durch die diskreten Zustandsgrößen berechnen kann oder ob dieser durch festgelegte Annahmen parameterisiert berücksichtigt werden muss. Steigt z.B. die für eine Gitterzelle errechnete Luftfeuchtigkeit auf über 100%, so muss der überschüssige Wasserdampf in die Flüssigphase wechseln und zu Wolkenwasser kondensieren. Gleichzeitig muss die dabei frei werdende Phasenübergangswärme im Temperaturhaushalt berücksichtigt werden. Dieser Rückkopplungsprozess kann explizit behandelt werden.

Im Gegensatz dazu stehen in MM5 die in parametrisierter Form behandelten Prozesse optional zur Verfügung. Um z.B. kleinräumige Kumuluskonvektion nachbilden zu können, lässt die Kumulusparameterisierung in MM5 bei Überschreiten bestimmter Labilitätskriterien auch dann Kondensation zu, wenn die Gitterzelle als Ganzes ungesättigt ist. Die Parametrisierung nimmt über verschiedene empirische Relationen an, dass Teile der Gitterzelle bereits eine Luftfeuchtigkeit von 100% erreicht haben und der lokal überschüssige Wasserdampf in die Flüssigphase wechselt und zu Wolkenwasser kondensiert. Die dabei frei werdende Phasenübergangswärme wird ebenfalls durch entsprechende Rückkopplungen im Temperaturhaushalt berücksichtigt. Die expliziten und parametrisierten Feuchteprozesse werden in MM5/MCCM als Quellterme in den Erhaltungsgleichungen für die Feuchtegrößen modelliert.

Die Simulation der meteorologischen Prozesse erfordert die numerische Integration eines gekoppelten Systems nichtlinearer partieller Differentialgleichungen. Diese basieren, wie bereits erwähnt, auf den Erhaltungsgleichungen für Impuls, Energie, Gesamtmasse und Partialmassen. Die Erhaltungsgleichungen für die einzelnen Feuchtekomponenten berücksichtigen die zeitliche Entwicklung aufgrund verschiedener atmosphärischer Prozesse wie advektiver Transport T , turbulente Diffusion D , explizite P_{ex} und parametrisierte Feuchteprozesse P_{im} .

Somit lässt sich das System der Erhaltungsgleichungen für die bis zu sieben Feuchtegrößen q_i als

$$\frac{\partial q_i}{\partial t} = T_i + D_i + P_{ex,i} + P_{im,i} \quad i = 1, \dots, 7 \quad (3.1)$$

schreiben.

3.2 Numerische Advektionsverfahren

Um Erhaltungsgleichungen wie (3.1) zu integrieren, wurden verschiedene numerische Verfahren entwickelt. Diese unterscheiden sich unter anderem hinsichtlich des numerischen Rechnengitters, sowie der mathematischen Formulierung der Erhaltungsgleichungen in Advektions- oder Flussform.

Ein numerisches Advektionsverfahren für den Einsatz in einem regionalen Klima-Chemie-modell sollte folgende Eigenschaften besitzen:

Massenerhaltung: Ein numerisches Verfahren sollte weder Masse erzeugen noch vernichten.

Die Verletzung der Massenerhaltung erfolgt auch durch Interpolationsfehler in der Diskretisierung. In MM5 entsteht ein solcher Interpolationsfehler, vor allem wenn vertikal interpoliert wird.

Stabilität: Die Stabilität eines numerischen Advektionsverfahrens besagt, dass die numerische Lösung beschränkt bleiben muss. Da Transportgleichungen die Eigenschaft besitzen, starke Gradienten auszubilden, muss das numerische Verfahren in der Lage sein, diese zu erhalten und zur schwachen Lösung der Transportgleichung zu konvergieren.

Genauigkeit: Die Genauigkeit sagt aus, wie exakt ein numerisches Verfahren die analytische Lösung approximiert. Hier ist vor allem der Phasenfehler, d.h. die Differenz in der Transportgeschwindigkeit zwischen der analytischen Lösung und der numerischen Approximation, und die Eigenschaft wie exakt Gradienten erhalten bleiben von Bedeutung.

Monotonie: Im Falle eines divergenzfreien Geschwindigkeitsfeldes sollten keine neuen Maxima und Minima durch das numerische Verfahren erzeugt werden.

Positive Definitheit: Positive Transportgrößen, wie z.B. Mischungsverhältnisse oder Dichten, dürfen durch das Advektionsverfahren nicht negativ werden. Wird, wie in MM5, die positive Definitheit dadurch erzwungen, dass negative Werte explizit auf Null oder einen Hintergrundwert $\varepsilon > 0$ gesetzt werden, so wird die Massenerhaltung verletzt.

Die meisten Advektionsverfahren erfüllen die genannten Punkte mehr oder weniger gut. Es ist allerdings kein Verfahren bekannt, das

- (i) allen Anforderungen genügt,
- (ii) für verschiedene numerische Gitter anwendbar ist und
- (iii) sich noch mit einem annehmbaren numerischen Aufwand berechnen lässt.

Somit muss die Wahl eines geeigneten Verfahrens durch die Anforderungen der Anwendung bestimmt werden.

In Meteorologie- und Luftchemiemodellen haben sich Differenzenverfahren und Volumenverfahren etabliert und breite Anwendung gefunden. Die Verfahren zeichnen sich auf strukturierten numerischen Gittern durch ihre relativ einfache Implementierung aus. Drei dieser Advektionsverfahren werden im Folgenden vorgestellt und detailliert untersucht: Das Leapfrog-Verfahren zweiter Ordnung, das Upstream-Verfahren erster Ordnung und ein neues Verfahren welches durch eine Konvexkombination des Leapfrog- und Upstream-Verfahrens gebildet werden kann (Griebel u. a., 1995). Das Leapfrog- und Upstream-Verfahren werden bereits in MM5 angewendet, das neue Verfahren wurde aus der Literatur entnommen und als ein alternatives Advektionsverfahren für den advektiven Feuchttransport in MM5 implementiert.

Die nachfolgende Beschreibung der Verfahren bezieht sich, wenn nicht anderweitig angegeben, auf ein äquidistantes Rechengitter. Betrachtet wird dazu die eindimensionale Transportgleichung für eine spezifische Größe q in einem homogenen Geschwindigkeitsfeld u

$$\frac{\partial q}{\partial t} = -\frac{\partial (qu)}{\partial x} \quad (3.2)$$

Leapfrog-Verfahren

Das Leapfrog-Verfahren ist ein in der Vergangenheit sehr häufig benutztes Verfahren. Es handelt sich dabei um ein Differenzenverfahren zweiter Ordnung, zentriert in Zeit und Raum:

$$q_i^{t+\Delta t} = q_i^{t-\Delta t} - \frac{\Delta t}{\Delta x_i} \left(F_{i+1/2}^t - F_{i-1/2}^t \right) \quad (3.3)$$

mit

$$F_{i+1/2}^t = u_{i+1/2}^t (q_i^t + q_{i+1}^t) \quad (3.4)$$

Seine Popularität verdankt das Leapfrog-Verfahren seiner einfachen numerischen Implementierung, der Genauigkeit 2. Ordnung und seiner numerischen Effizienz. Eine detaillierte Stabilitätsuntersuchung findet sich zum Beispiel in Pielke (2002), Schaer und Torrilhon (2003) oder Thomas (1995). Als Verfahren, das auf drei Zeitebenen ($t - \Delta t$, t und $t + \Delta t$) arbeitet, hat das Leapfrog-Verfahren zwei Moden, einen physikalischen und einen rein numerischen. Für Courant Zahlen¹ $|c| \leq 1$ sind die beiden Verstärkungsfaktoren² $|\lambda_{1/2}| \equiv 1$, so dass das Leapfrog-Verfahren bedingt stabil und nicht dämpfend ist. Der numerische Mode mit dem Faktor $\lambda_2 = -1$ alterniert allerdings bei jedem Zeitschritt das Vorzeichen der Änderungsrate und die numerische Lösung beginnt zu oszillieren. Der Phasenfehler wird durch das Verhältnis der numerischen Transportgeschwindigkeit u_{num} zur realen Geschwindigkeit u beschrieben. Dieses Verhältnis steigt mit abnehmender Wellenlänge an. Pielke (2002) und Schaer und Torrilhon (2003) zeigen durch eine "von Neumann"-Stabilitätsuntersuchung, dass die Gruppengeschwindigkeit³ $\frac{c_{num}}{u} = \frac{1}{u} \frac{\partial \omega_{num}}{\partial k}$ für kleine Wellenlängen das der analytischen Lösung

¹ $c = u \frac{\Delta t}{\Delta x}$ bezeichnet die Courant-Zahl mit der Geschwindigkeit u , der Zeitschrittweite Δt und der Gitterweite Δx (Courant u. a., 1928; Courant und Hilbert, 1953; Quarterioni und Valli, 1994).

² λ ist ein Verstärkungsfaktor und resultiert aus der „von Neumann“-Stabilitätsuntersuchung (Pielke, 2002). $\lambda > 1$ bedeutet, dass die numerische Lösung bei jedem Integrationsschritt verstärkt wird.

³Die Gruppengeschwindigkeit ist $\frac{c_{num}}{u} = \frac{1}{u} \frac{\partial \omega_{num}}{\partial k}$, mit der Wellenzahl k und der numerischen Dispersi-

entgegengesetzte Vorzeichen haben kann. Diese kleinen Wellen werden dann entgegen der physikalischen Richtung rückwärts transportiert.

Um den unphysikalischen numerischen Mode des Leapfrog-Verfahrens zu unterdrücken, wird oft ein Zeitfilter auf die transportierte Größe q^t angewandt. In Meteorologiemodellen ist der Zeitfilter nach Asselin (1971) sehr verbreitet. Er filtert die Größe q^t durch eine Konvexkombination:

$$\tilde{q}^t = (1 - 2\nu) q^t + \nu (q^{t+\Delta t} + q^{t-\Delta t}) \quad (3.5)$$

mit der Filterkonstanten ν . In MM5 wird $\nu = 0.1$ gewählt. Eine detaillierte Stabilitätsuntersuchung dazu findet sich ebenfalls in Pielke (2002) oder Schaer und Torrilhon (2003).

Explizites Upstream-Verfahren

Das explizite Euler-Upstream-Verfahren ist eines der einfachsten Advektionsverfahren und war ebenfalls in der Vergangenheit sehr beliebt. Es ist positiv definit, monoton, bedingt stabil, massenerhaltend und mit einem geringen Phasenfehler behaftet. Es besteht aus einer finiten Vorwärts-Differenz erster Ordnung in der Zeit und einer finiten Upstream-Differenz erster Ordnung im Raum:

$$q_i^{t+\Delta t} = q_i^t - \frac{\Delta t}{\Delta x} (F_{i+1/2}^t - F_{i-1/2}^t) \quad (3.6)$$

mit

$$F_{i+1/2}^t = \frac{1}{2} \left[\left(u_{i+1/2}^t + |u_{i+1/2}^t| \right) q_i^t + \left(u_{i+1/2}^t - |u_{i+1/2}^t| \right) q_{i+1}^t \right] \quad (3.7)$$

Das Verfahren ist sehr einfach zu implementieren und kann numerisch aufgrund der geringen Anzahl von Rechenoperationen als sehr effizient angesehen werden. Die Genauigkeit erster Ordnung macht es allerdings sehr diffusiv, d.h. Gradienten werden geglättet. Stabilitätsuntersuchungen (Pielke, 2002; Thomas, 1995; Schaer und Torrilhon, 2003) zeigen nur eine bedingte Stabilität $|\lambda| \leq 1$ für Courant Zahlen $|c| \leq 1$. Für abnehmende Wellenlängen nimmt die Dämpfungseigenschaft zu. Das Phasenverhältnis nimmt für $c = 0.0$, $c = 0.5$ und $c = 1.0$ den Wert $u_{num}/u = 1.0$ an, d.h. der Phasenfehler verschwindet. Für Courant Zahlen $0 < c < 0.5$ ist der Phasenfehler $u_{num}/u > 1.0$, für $0.5 < c < 1.0$ gilt $u_{num}/u < 1.0$.

3.3 Alternative numerische Verfahren und Evaluierungsmethoden

Zunächst wird im ersten Abschnitt eine konsistente Neuformulierung eines alternativen Zeitintegrations- und Advektionsverfahrens für die Erhaltungsgleichungen der Feuchtegrößen und dessen Implementierung in MM5/MCCM beschrieben. Die drei Advektionsverfahren werden im Anschluß in einem eindimensionalen Advektionstest auf ihre Eigenschaften hin untersucht. Dabei wird ein fiktives numerisches Profil mit den Verfahren eindimensional transportiert und

onsrelation $\omega_{num} = \omega_{num}(k)$. Die Dispersionsrelation gibt für eine Welle das Verhältnis zwischen der Kreisfrequenz ω und der Wellenzahl k an.

die numerischen Lösungen mit der analytischen Lösung verglichen. Aus diesem Vergleich können bereits erste Aussagen über die Modellierungsgüte der Verfahren abgeleitet werden. Um alle drei Verfahren auch als Teil des Gesamtmodells MM5/MCCM testen zu können wurde auch das neue Verfahren in die MM5-Version 3.6 eingebaut und im Rahmen dieser Arbeit überprüft. Dabei werden zunächst MM5-Simulationen mit dem original MM5-Leapfrog und dem neuen Advektionsverfahren für eine einmonatige Episode durchgeführt. Der simulierte Niederschlag wird anschließend mit Beobachtungen des deutschen Wetterdienstes verglichen. Der Niederschlag eignet sich zur Modellevaluierung aus mehreren Gründen. Für sehr viele MM5-Simulationen sind Temperatur und Niederschlag als die zentralen Simulationsergebnisse von primärem Interesse. Als zweidimensionale Verteilung - im Vergleich zu den dreidimensionalen Feuchteverteilungen - lässt sich der Niederschlag wesentlich einfacher mit Beobachtungen an den Messstationen des DWD vergleichen. Der Niederschlag stellt in einem Meteorologiemodell aufgrund der zur Bildung erforderlichen komplexen nichtlinearen Phasenumwandlungsprozesse eine sehr sensitive Modellgröße bezüglich der Feuchteverteilung dar. Damit kann gezeigt werden, welche Auswirkungen die im eindimensionalen Advektionstest gezeigten Defizite des MM5-Leapfrogverfahrens auf die Verteilung der Feuchtegrößen und den daran gekoppelten Prozessen haben können. Im zweiten Teil der Evaluierung der Advektionsverfahren in MM5 erfolgt ein Vergleich von simulierten und beobachteten Wasserdampfverteilungen. Die dazu herangezogenen Vertikalprofile der Wasserdampfverteilung stammen aus RAMAN-Lidar-Beobachtungen der Launch-Campaign (2005). Aus dem direkten Vergleich von simulierten und beobachteten Vertikalverteilungen lassen sich Aussagen darüber ableiten, ob mit dem neuen Verfahren die Wasserdampfverteilung realistischer prognostiziert werden kann als mit dem original MM5.

3.3.1 Alternatives Zeitintegrations- und Advektionsverfahren für die Feuchtegrößen in MM5/MCCM

Die dreidimensionalen Erhaltungsgleichungen für die bis zu sieben Feuchtemischungsverhältnisse q_i (2.23) werden in MM5/MCCM bisher durch ein Zeitintegrationsverfahren mit zentrierten Differenzen zusammen mit einem Asselin-Zeitfilter simultan integriert. Es wird dabei zunächst aus den meteorologischen Größen $q_i^{(n-1)}$ und $q_i^{(n)}$ zum Zeitpunkt $n - 1$ und n der Zustand zum nächsten Zeitschritt $n + 1$ durch die numerische Integration berechnet:

$$\frac{q_i^{(n+1)} - q_i^{(n-1)}}{2\Delta t} = Q_i \left(q_i^{(n)}, q_i^{(n-1)} \right) \quad i = 1, \dots, 7 \quad (3.8)$$

Dabei entspricht $Q_i \left(q_i^{(n)}, q_i^{(n-1)} \right)$ der Änderungsrate aller physikalischen Prozesse in der Erhaltungsgleichung (3.1) für die Feuchtegröße q_i . Die Berechnung der Änderungsrate erfolgt schrittweise, indem die aus den Einzelprozessen sukzessive resultierenden Teiländerungsraten auf Q_i aufaddiert werden. Es wird kein Operatorsplitting-Verfahren verwendet.

Für die Teiländerungsraten gilt folgendes:

- **Advektiver Transport**

Der Advektionsterm ist durch eine zentrierte Differenz zweiter Ordnung mit den Größen $q^{(n)}$ zum Zeitpunkt n diskretisiert.

- **Parameterisierte Feuchteprozesse**

Die Parameterisierung der Feuchteprozesse liefert eine Änderungsrate aus den Feuchtegrößen $q^{(n-1)}$ zum Zeitpunkt $n - 1$ und der bereits berechneten Änderungsrate Q_i^n (Änderungsrate aus dem advektiven Transport) für die Integration bis zum Zeitpunkt $n + 1$.

- **Strahlung**

Die Änderungsrate durch die Strahlungsberechnung basiert auf den Größen $q^{(n-1)}$ zum Zeitpunkt $n - 1$.

- **Grenzschichtparameterisierung und turbulente Diffusion**

Das Modul zur Berechnung der Grenzschichtparameterisierung und der turbulenten Diffusion liefert eine Änderungsrate aus den Feuchtegrößen $q^{(n-1)}$ zum Zeitpunkt $n - 1$ und der bereits aufsummierten Änderungsrate Q_i^n (akkumulierte Änderungsrate aus dem advektiven Transport, implizite Feuchteprozesse und Strahlungsberechnung) für die Integration bis zum Zeitpunkt $n + 1$.

- **Explizite Feuchtigkeitsprozesse**

Die Berechnung der expliziten Feuchteprozesse liefert ebenfalls eine Änderungsrate auf der Basis der Größen $q^{(n-1)}$ zum Zeitpunkt $n-1$ und der bereits aufsummierten Änderungsrate Q_i^n .

Im Anschluss an die Integration werden durch den Asselin-Zeitfilter mit Hilfe einer Konvexkombination aus den Feuchtegrößen zu den drei Zeitschritten $n - 1$, n und $n + 1$ die zeitlich gefilterten Feuchtegrößen $\tilde{q}^{(n)}$ zum Zeitpunkt n berechnet:

$$\tilde{q}^{(n)} = (1 - 2\nu) q^{(n)} + \nu (q^{(n+1)} + q^{(n-1)}) \quad (3.9)$$

Der Filterkoeffizient ν ist in MM5 standardmäßig auf $\nu = 0,1$ gesetzt. Am Ende der Zeitintegration für den Zeitschritt $n + 1$ stehen somit die Werte $q^{(n-1)}$, $\tilde{q}^{(n)}$ und $q^{(n+1)}$ zur Verfügung und die Zeitintegration kann mit diesen Werten für den anschließenden nächsten Zeitschritt fortgesetzt werden.

Ein alternatives Advektionsverfahren für die Feuchtegrößen in MM5 beinhaltet vor allem auch die Umstrukturierung der auf 3 Zeitniveaus arbeitenden bisherigen zentrierten MM5-Zeitintegration auf eine einfache Vorwärts-Differenz erster Ordnung für die Zeitintegration.

$$q^{(n+1)} = q^{(n)} + \Delta t Q_i (q_i^{(n)}, q_i^{(n-1)}) \quad (3.10)$$

Dabei wird kein Zeitfilter verwendet. Das resultierende Verfahren arbeitet aus Konsistenzgründen jedoch immer noch auf 3 Zeitniveaus. Dies ist erforderlich, um die bisherigen MM5-Physikmodule auch weiterhin konsistent betreiben zu können. Die restlichen Erhaltungsgleichungen benutzen nach wie vor das zentrierte Zeitintegrationsverfahren. Die Berechnung der kummulierten Änderungsrate $Q_{ten}(q^{(n)}, q^{(n-1)})$ erfolgt somit bis auf den Anteil aus der Advektion, wie im original MM5-Modell.

Die Advektion wird durch eine Kombination aus Upstream- und zentrierter Differenz dis-

cretisiert, die als Konvexkombination formuliert ist:

$$Q_{\text{Advektion}}^{(n)} = \gamma \cdot \text{UPSTREAM} + (1 - \gamma) \text{ zentrierter Differenz} \quad (3.11)$$

Dieses sehr effiziente Verfahren wurde von Griebel u. a. (1995) vorgeschlagen um die Advektion in der Navier-Stokes Gleichung zu diskretisieren. Dabei kann der Kombinationskoeffizient γ so gewählt werden, dass die Advektion entweder vom Upstream- oder vom zentrierten Differenzenverfahren dominiert wird. Das resultierende Verfahren ist aufgrund seiner geringen Komplexizität numerisch wesentlich effizienter, als andere in der Literatur beschriebene Advektionsverfahren (Bott 1989a; Smolarkiewicz 1983, 1984; Smolarkiewicz und Clark 1986; Smolarkiewicz und Grabowski 1990). Gerade bei regionale Klimasimulationen - wie sie mit MM5 zunehmend durchgeführt werden - bei denen transient bis zu 100 Jahre simuliert werden, ist die Effizienz der verwendeten numerische Verfahren von großer Bedeutung.

3.3.2 Numerischer Advektionstest

Zur Bewertung der vorgestellten Verfahren wird ein eindimensionaler numerischer Advektionstest in einem isolierten numerischen Modell für die Transportgleichung einer spezifischen Größe q mit einer konstanten Dichteverteilung ρ und einem homogenen Geschwindigkeitsfeld u auf gleichförmigen und nichtgleichförmigen Gittern durchgeführt. Dazu wird folgendes eindimensionales Transportproblem analog zu den MM5-Modellgleichungen betrachtet:

$$\rho \frac{\partial q}{\partial t} = - \frac{\partial \rho u q}{\partial x} + q \frac{\partial \rho u}{\partial x} \quad (3.12)$$

$$\text{Anfangsbedingung : } q(t = 0) = q_0, u = u_0 \text{ und } \rho = \rho_0 \quad (3.13)$$

$$\text{Randbedingungen: } q|_{\partial(\text{links})} = q|_{\partial\Omega(\text{rechts})} \quad (3.14)$$

Gl. (3.12) entspricht der MM5-Erhaltungsgleichung (2.20) in eindimensionaler Form ohne Berücksichtigung von Turbulenz und Phasenumwandlungen.

Als Anfangsbedingung (3.13) wird im eindimensionalen Advektionstest ein Rechteckprofil q_0 durch den eindimensionalen Raum $x \in [0, 1]$ transportiert. Es werden dazu vier Experimente mit unterschiedlichem Gitterabstand durchgeführt: Diskretisierung auf einem groben Gitter (32 Gitterzellen) und einem feinen Gitter (128 Gitterzellen), jeweils einmal mit konstantem und variablen Gitterabstand. Die Transportgeschwindigkeit ist in allen Fällen homogen und das Geschwindigkeitsfeld divergenzfrei. Es werden für alle Experimente periodische Randbedingungen (3.13) verwendet. Das Profil wird nach Verlassen des Definitionsbereichs durch die periodische Randbedingung auf der gegenüberliegenden Seite wieder eintreten. Transportgeschwindigkeit und Simulationszeit sind so gewählt, das das Profil genau einmal durch das Rechengebiet transportiert wird und die analytische Lösung zu Simulationsende wieder der Anfangsverteilung entspricht.

In der Literatur existieren etliche numerische Untersuchungen zu Advektionsverfahren, z.B. Bott (1989a, b, 1992); Chock und Dunker (1983); Chock (1985, 1991); Crowley (1968); Dadub und Seinfeld (1994); Rood (1987); Smolarkiewicz (1982, 1983, 1984); Smolarkiewicz und Clark (1986); Smolarkiewicz und Grabowski (1990); Thilmes (1994); Tremback u. a. (1987). In all

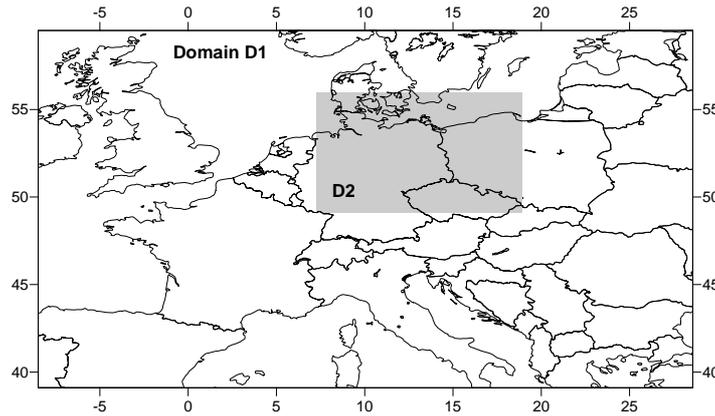


Abbildung 3.1: Nestung für das Simulationsgebiet mit Domain D1 und D2

diesen Arbeiten werden keine standardisierten Advektionstests verwendet, sodass sich die Ergebnisse nicht einfach vergleichen lassen. Chock und Dunker (1983) haben als ein geeignetes Maß für die Bewertung der Güte eines numerisch transportierten Profils zwei Maßzahlen definiert, die seither in der neueren Literatur Anwendung finden. Diese Maßzahlen sind für ein transportiertes eindimensionales Profil $q_i(t)$ mit der analytischen Lösung $q^a(t)$ wie folgt definiert:

Massenverteilungsrate MDR (mass distribution ratio)

$$MDR = \frac{\sum_i^n (q_i(t_{end}))^2}{\sum_i^n (q_i^a(t_{end}))^2} \cdot 100 \quad (3.15)$$

Durchschnittlicher absoluter Fehler AAE (average absolute error)

$$AAE = \frac{1}{n} \sum_i^n |q_i(t_{end}) - q_i^a(t_{end})| \cdot 100 \quad (3.16)$$

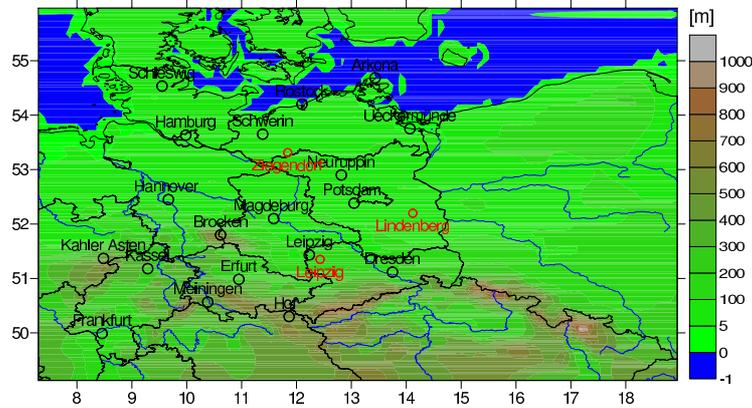
Mit $q_i(t_{end})$ ist jeweils die numerische Lösung und mit $q_i^a(t_{end})$ die entsprechende analytische Lösung des Advektionsproblems zum Endzeitpunkt t_{end} bezeichnet. Die Massenverteilungsrate eignet sich z. B. zur Bewertung der Diffusivität eines Verfahrens. Sie wird klein, wenn diffusive Effekte die Verteilung dämpfen und reagiert empfindlich auf das Vorhandensein großer Werte. Der durchschnittliche absolute Fehler ist ein Maß für die Verzerrung der Verteilung. Er wächst z. B. durch das Auftreten von Oszillationen stark an.

3.3.3 Evaluierung regionaler MM5-Simulationen

Für die Evaluierung wird im ersten Anwendungsfall die Niederschlagsverteilung von MM5-Simulationen (mit dem original und dem modifizierten MM5) einer Episode im Oktober 2005 mit Beobachtungen an Messstationen des DWD verglichen. Die Simulationen verwenden zwei ineinander genestete Domains, wie sie in Abbildung 3.2 gezeigt und in Tab. 3.1 beschrieben sind. Die Antriebsdaten für die Anfangs- und Randbedingungen für Domain D1 sind *Global*

Tabelle 3.1: Domain-Konfiguration für die MM5-Simulationen mit der

Domain	Horizontale Auflösung [km]	Vertikale Modellschichten	Anzahl Gitterzellen Nord-Süd	Ost-West
D1	18 × 18 km	32	120	120
D2	6 × 6 km	32	121	121

**Abbildung 3.2:** Orografie Domain D2 und Lage der DWD-Niederschlagsmessstationen (graue Kreise, siehe Tab. 3.2) und der Lidar-Messstationen (rote Kreise, siehe Tab. 3.3)**Tabelle 3.2:** Lage der DWD Niederschlagsmessstationen zur Modellevaluierung

DWD-Messstation	Lage		DWD-Messstation	Lage	
Dresden	51° 07' N	13° 45' O	Kassel	51° 11' N	9° 17' O
Erfurt	50° 59' N	10° 57' O	Leipzig	51° 26' N	12° 14' O
Frankfurt	48° 59' N	8° 28' O	Magdeburg	52° 06' N	11° 35' O
Hamburg	53° 38' N	09° 59' O	Meiningen	50° 34' N	10° 23' O
Hannover	52° 27' N	09° 40' O	Potsdam	52° 23' N	13° 03' O
Hof	50° 18' N	11° 52' O			

Final (FNL) Analyses Daten mit 1 mal 1 Grad räumlicher Auflösung in 6-Stundenintervallen von NCEP-DS-Dataset-83/2 (2005). Die verwendete MM5-Konfiguration für die Modellevaluierung entspricht einem MM5-Setup, das am Institut für Meteorologie und Klimaforschung seit mehreren Jahren erfolgreich für eine online-Wettervorhersage verwendet wird und gute Übereinstimmungen mit meteorologischen Beobachtungen liefert.

Die verwendeten Optionen für die MM5-Modellphysik (Dudhia, 2000; Grell u. a., 1994) sind: Explizites mehrphasen Feuchtigkeitschema nach Reisner (IMPHYS=5); Grell Kumulus-Parameterisierung (ICUPA=3); MRF-Grenzschichtparameterisierung (IBLTYP=5); MM5-Strahlungsmodell mit Wolkenbedeckung (FRAD=2) und das MM5-Bodenmodell (ISOIL=1).

Die Niederschlagsbeobachtungen zur Validierung der Modellergebnisse stammen aus dem Witterungsreport-10/2005 (2005) des deutschen Wetterdienstes. Die Lage der berücksichtigten Beobachtungsstationen für Domain D2 sind in Abb. 3.2 abgebildet und deren genaue Lage ist in Tab. 3.2 beschrieben.

Für die zweite Evaluierung werden die simulierten Wasserdampfverteilungen mit RAMAN-Lidar-Beobachtungen verglichen. Dazu wird mit den beiden MM5 Versionen (mit dem original und dem modifizierten MM5) eine hochaufgelöste 24-Stundensimulationen durchgeführt. Die

Tabelle 3.3: Spezifikationen der Lidar-Messsysteme und -Positionen, Datenquelle: Dr. Dirk Engelbart, DWD Observatorium Lindenberg

Standort	System	Vertikale Auflösung & Messbereich	Beobachtungs- zeitraum	zeitliche Auflösung	Geographische Lage
Lindenberg	RAMAN-Lidar	67,5; 127,5; 307,5 m	26.10.05 19:26 -	10 Min	52,20° N
		800 - 10000 m	27.10.05 04:00		
Leipzig	RAMAN-Lidar	180, 300, 600 m	26.10.05 17:45 -	30 Min	51,21° N
		210 - 10000 m	27.10.05 05:15		
Ziegenderdorf	RAMAN-Lidar	180, 300, 600 m	26.10.05 18:18 -	30 Min	53,18° N
		210 - 10000 m	27.10.05 05:16		

Wasserdampfprofile der Launch-Campaign 2005 an den Standorten Leipzig, Lindenberg und Ziegenderdorf wurden vom DWD in Lindenberg zur Verfügung gestellt. Die Simulationen für Domain D1 wurde am 26. Oktober 0:00 Uhr initialisiert und endet am 27.10.2005 um 12:00 Uhr und berücksichtigt Radiosondendaten aus dem NCEP-DS-Dataset-353/4 (2005). Das gestetete Domain D2 wird am 26.10.2005 um 12:00 Uhr initialisiert und simuliert 24 Stunden. Durch den Vorlauf von 12 Stunden für Domain D1 hat das Modell genügend Zeit aus dem durch die Anfangsbedingungen aufgezwungenen Anfangszustand sich aufgrund der Randbedingungen in einen stabilen Gleichgewichtszustand zu begeben. Für Domain D2 beträgt der Vorlauf noch über 5 Stunden bis der Vergleich mit den Messungen beginnt. Dies wurde so gewählt, dass im Domain D2 die Radiosondeninformationen des 12 Uhr Aufstiegs durch die Anfangs- und Randbedingungen noch stärker mit berücksichtigt werden.

Für die Evaluierung ergab sich ein Problem aus der stark unterschiedlichen räumlichen und zeitlichen Auflösung von Messdaten und Simulationsergebnissen. Die vertikale Auflösung der MM5-Simulationen beträgt 32 Modellschichten. An einem Punkt über dem Meer sind die Schichtmitten auf folgenden Höhen definiert: 15, 45, 80, 119, 161, 208, 270, 357, 460, 581, 719, 876, 1044, 1258, 1520, 1836, 2209, 2597, 3001, 3422, 3920, 4504, 5127, 5794, 6513, 7294, 8150, 9098, 10164, 11385, 12824, 14589 und 15657 Meter. Für die Modellevaluierung mußten die Daten über ein Kriging-Verfahren auf ein gemeinsames räumlich und zeitlich definiertes Gitter transformiert werden. Auf diesem Daten-Gitter konnten die Differenzen zwischen den beiden Simulationen und zwischen den Simulationen und den Lidar-Messungen berechnet und dargestellt werden.

3.4 Eindimensionale Advektionstests

Zur Evaluierung der Güte des neuen numerischen Integrations- und Advektionsverfahrens wird ein numerischer Test für das Transportproblem (3.12) durchgeführt. Analog zu Chock und Dunker 1983; Chock 1985, 1991; Rood 1987; Dadub und Seinfeld 1994; Bott 1989a, 1992; und Thilmes 1994 wird dabei ein numerisches Profil (in Form einer Rechteckwelle) mit den Advektionsverfahren durch das eindimensionale Modellgebiet transportiert und anschließend werden die numerischen Lösungen mit der analytischen Lösung verglichen.

Die beiden ersten numerischen Experimente werden auf dem Gitter mit konstantem Gitterabstand durchgeführt. Für das äquidistante Gitter betragen die Courant-Zahlen $c = 0.5$. Abb. 3.3a) und 3.3b) zeigen die analytische Lösung (die mit dem Anfangsprofil zusammenfällt) und

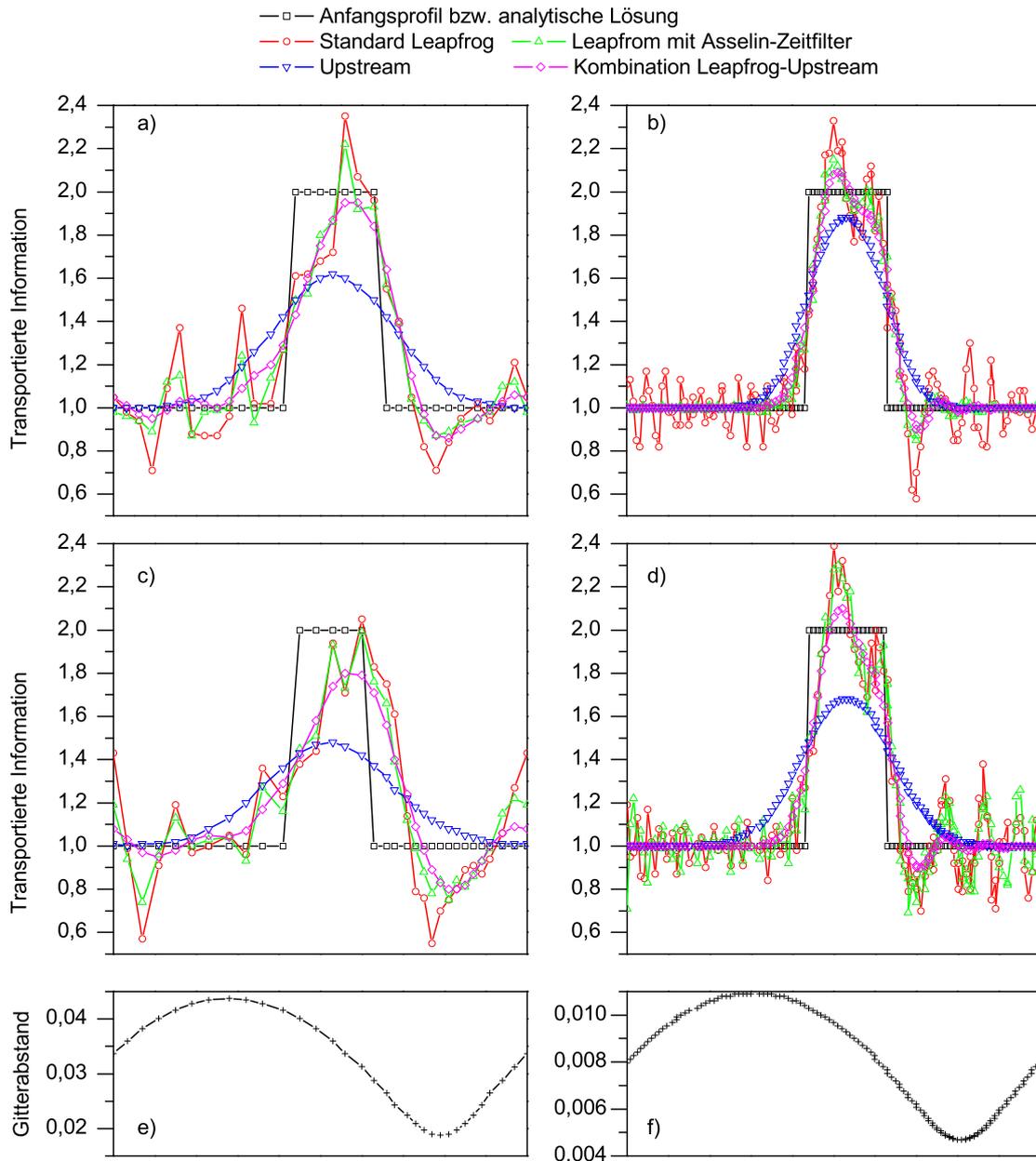


Abbildung 3.3: Numerischer eindimensionaler Advektionstest für ein äquidistantes Gitter mit a) 32 und b) 128 Gitterzellen, sowie für ein nicht-äquidistantes Gitter mit c) 32 und d) 128 Gitterzellen; Der Abstand der Gitterpunkte für das nicht-äquidistante Gitter ist in e) für 32 und in f) 128 Gitterzellen gegen die X-Achse dargestellt.

die numerischen Lösungen jeweils für die grobe (32 Gitterzellen) und feine Gittervariante (128 Gitterzellen). Abb. 3.3c) und 3.3d) zeigen das zweite numerische Experiment mit einem variablen Abstand der Gitterpunkte, ebenfalls mit 32 bzw. 128 Gitterzellen. Dabei variiert der Abstand der Gitterzellen in der Form einer Sinuswelle um einen festen Wert. Die resultierenden Gitterabstände für das zweite numerische Experiment sind in Abb. 3.3e) und 3.3f) dargestellt.

Es zeigt sich, dass die räumliche Auflösung die Güte des transportierten Profils entscheidend beeinflusst. Das Leapfrog-Verfahren zeigt wie erwartet die Ausbildung von unphysikalischen numerisch-induzierten Wellen, die die numerische Lösung überlagern. Durch diese Wel-

len wird der Maximal- bzw. Minimalwert des Anfangsprofils stark über- bzw. unterschritten. Das MM5-Leapfrog-Verfahren (mit dem Zeitfilter nach Asselin) ist bei der groben Auflösung von 32 Gitterzellen nur bedingt in der Lage die Oszillationen zu unterdrücken. Erhöht man die Auflösung auf 128 Gitterpunkte so zeigt das Leapfrog-Verfahren deutlich mehr Wellen in der numerischen Lösung allerdings mit kleinerer Amplitude. Das MM5-Leapfrog-Verfahren kann dabei die Oszillationen besser unterdrücken und das Über- und Unterschreiten der analytischen Lösung wird erheblich verringert.

Das Upstream-Verfahren zeigt wie erwartet ein sehr diffusives Verhalten, ist monoton und positiv definit. Das vorgeschlagene neue Verfahren als Konvexkombination aus Upstream- und Leapfrog-Verfahren zeigt für alle Gittervariationen deutlich bessere Übereinstimmungen mit der analytischen Lösung. Diese wird nur noch geringfügig über- bzw. unterschritten und es sind nur noch wenige dem Profil nachlaufende *stehende Wellen* in der numerischen Lösung vorhanden. Insbesondere bei der Anwendung im groben Modellgitter zeigt das Verfahren eine bessere Übereinstimmung mit der analytischen Lösung als die 3 restlichen Verfahren.

Vor allem für die vertikale Advektion in MM5 ist das Verhalten der Advektionsverfahren auf Gittern mit variablem Gitterabstand von Bedeutung. Die Diskretisierung auf der vertikalen σ -Koordinate benutzt keinen konstanten Gitterabstand, sondern dieser nimmt - reziprok der Luftdichte - von einem feinen Modellgitter in bodennähe nach oben stark zu. Die beiden Leapfrog Verfahren zeigen bei dieser Gittervariante wieder sehr starke Oszillationen. Aufgrund der variablen Courant-Zahlen ist der Zeitfilter im MM5-Leapfrog-Verfahren selbst in der feinen Auflösung nicht mehr in der Lage diese Oszillationen wirkungsvoll zu unterdrücken. Das Upstream-Verfahren erzeugt aufgrund der variablen Courant-Zahlen eine deutlich stärkere Diffusion als für das äquidistante Gitter. Das neue Advektionsschema zeigt sich auch hier sehr robust und kann die durch das Leapfrog-Verfahren erzeugten Wellen wesentlich besser unterdrücken.

Die Maßzahlen MDR (3.15) und AAE (3.16) sind für die beiden Experimente in Tabelle 3.4 zusammengefasst. Es zeigen sich vor allem beim AAE-Fehlermaß die geringsten Werte für das kombinierte Leapfrog-Upstream-Verfahren. Die Massenverteilungsrates MDR zeigt hingegen für die Leapfrog-Verfahren bessere Werte, da sich bei der Summenbildung für diese Größe die stark ausgebildeten Oszillationen gegenseitig auslöschen. Das Fehlermaß erwies sich dadurch für die Evaluierung als nicht geeignet.

Das kombinierte Leapfrog-Upstream-Verfahren zeigt in den numerischen Lösungen Maxima und Minima die wesentlich näher an den analytischen Lösungen liegen, als dies bei den Leapfrog-Verfahren der Fall ist (siehe Tab. 3.4). Das MM5-Leapfrog-Verfahren ist durch den Zeitfilter zwar in der Lage die numerischen Oszillationen des standard Leapfrog-Verfahrens zu reduzieren, die numerische Lösung übersteigt die Maxima und unterschreitet die Minima der analytischen Lösung immer noch erheblich. Das stark diffusive Upstream-Verfahren zeigt erwartungsgemäß Monotonie und positive Definitheit.

Die numerischen Advektionsexperimente haben deutliche Unterschiede in den Ergebnissen der Verfahren gezeigt und es wurden alle bereits aufgeführten Defizite des Leapfrog-Advektionsverfahrens sowie des Asselin-Zeitfilters bestätigt. Diese Unterschiede werden deutliche Auswirkungen auf die Feuchteverteilungen haben. Es liegt die Vermutung nahe, dass die numerischen Oszillationen des MM5-Leapfrog-Verfahrens Auswirkungen auf die nichtlinearen

Tabelle 3.4: Bewertung des eindimensionalen Advektionstest: MDR, AAE, Maximum und Minimum für das Leapfrog, Leapfrog mit Asselin-Zeitfilter, Upstream und das kombinierte Leapfrog-Upstream-Verfahren

Verfahren	Gitterabstand: Anzahl Gitterzellen:	äquidistant		nicht-äquidistant	
		32	128	32	128
Standard-Leapfrog	MDR	99,90	100,15	102,66	100,59
	AAE	18,64	12,93	26,68	13,56
	Maximum	2,35	2,33	2,05	2,39
	Minimum	0,71	0,58	0,55	0,70
Leapfrog mit Zeitfilter nach Asselin ($\nu = 0, 1$)	MDR	97,86	98,61	99,87	100,06
	AAE	14,83	6,36	20,24	13,39
	Maximum	2,22	2,15	1,99	2,30
	Minimum	0,87	0,85	0,74	0,69
Upstream	MDR	92,74	95,63	95,12	95,84
	AAE	19,10	9,96	18,43	13,18
	Maximum	1,62	1,88	1,48	1,68
	Minimum	1,00	1,00	1,00	1,00
Leapfrog-Upstream- Kombination ($\gamma = 0, 1$)	MDR	96,81	98,07	97,82	98,29
	AAE	13,67	6,36	18,30	6,38
	Maximum	1,95	2,09	1,80	2,10
	Minimum	0,86	0,90	0,80	0,90

Phasenübergangsprozesse haben werden. Dies zu quantifizieren ist nur durch einen Vergleich realer dreidimensionaler Simulationen unter Verwendung von originalem und modifiziertem MM5 mit Beobachtungen für Niederschlag bzw. der Feuchteverteilung möglich.

3.5 Regionale Meteorologie-Simulationen mit MM5

Die Evaluierung des numerisch veränderten MM5-Modellsystems wird zuerst anhand des simulierten Niederschlag für eine einmonatige Episode durchgeführt. Der Niederschlag, als eine Größe die sehr stark auf externe Störungen reagiert, soll zeigen ob die Hypothese bestätigt werden kann, dass im original MM5 die Feuchteverteilung aufgrund numerischer Oszillationen erheblich beeinträchtigt wird und somit zu ungenauen Phasenumwandlungsprozessen und Niederschlagsprognosen führt.

Im zweiten Teil wird versucht anhand eines Vergleichs simulierter dreidimensionaler Wasserdampfverteilungen mit Lidar-Beobachtungen die Modellierungsgüte der beiden zugrundeliegenden MM5-Modelle zu bewerten. In der Literatur konnte dazu noch keine vergleichbare Untersuchung gefunden werden.

3.5.1 Niederschlagsevaluierung mit DWD-Beobachtungen

Die simulierte Episode 'Oktober 2005' beinhaltet 2 grössere Niederschlagsereignisse. Aus dem Witterungsreport-10/2005 (2005) ist dabei zu entnehmen:

1. bis 2. Oktober 2005: Westlage

Die Fronten eines Sturmtiefs überquerten ganz Deutschland. Mit der eingeflossenen maritimen Polarluft gab es ausgeprägte Niederschläge. Im Laufe des 01. Oktober fiel

landesweit Dauerregen mit Tagessummen verbreitet über 10 mm. Viele der Stationen in der Südhälfte erhielten mehr als 20 mm. Im Norden waren die Niederschläge weniger ergiebig. Am 2. Oktober regnete es nur noch vereinzelt im Süden und Südosten, die Bewölkung lockerte auf.

20. bis 26. Oktober 2005: Südwestlage

Mit der Verlagerung eines Hochdruckrückens nach Osten, wurde der Weg für eine intensive Höhenströmung aus Südwesten frei. Dabei wurden sehr milde subtropische Luftmassen herangeführt. Die von Nordwesten vordringende Kaltluft, begleitet von ergiebigen Niederschlägen, wurde an den Mittelgebirgen gestoppt. Bis zum 25. regnete es fast im gesamten Bundesgebiet. Große Tagessummen wurden vom 21. bis 23. Oktober im Westen und Nordwesten, in den Hochlagen der Mittelgebirge sowie an der Küste erreicht. Am Alpenrand war es bei Föhn fast niederschlagsfrei. Am 24./25. fielen in der eindringenden Kaltluft im Norden und Nordwesten große Regenmengen.

Der Vergleich der Monatssummen der simulierten Niederschläge (Tab. 3.5) bestätigt eine konsistente numerische Behandlung der Erhaltungsgleichungen für die Feuchtgrößen. Die Unterschiede weichen nicht gravierend von der Simulation mit dem original MM5 ab und bewegen sich im Rahmen der Variationen, die durch die Verwendung von unterschiedlichen Modellphysikoptionen ebenfalls auftreten können.

So sind die simulierten Niederschläge an der Station Schleswig identisch, an 7 Messstationen (Dresden, Brocken, Hanover, Kahler Asten, Leipzig, Magdeburg und Rostock) beträgt die Differenz zwischen den beiden Simulationen lediglich 10 Prozent oder weniger der simulierten Niederschläge (Mittelwert beider Simulationen an der jeweiligen Station). Hier stimmen die Simulationen sehr gut überein. An weiteren 6 Stationen (Arkona, Erfurt, Hof, Kassel, Schwe rin und Ueckermünde) liefert das modifizierte MM5 deutlich bessere Übereinstimmungen mit den Niederschlagsbeobachtungen und an lediglich 5 Stationen (Frankfurt, Hamburg, Meiningen, Neuruppin und Potsdam) stimmen die simulierten Niederschläge des original MM5 besser mit den DWD-Beobachtungen überein.

Darüber hinaus können aus dem Vergleich mit den DWD-Niederschlagsbeobachtungen bereits erste Schlüsse bezüglich der Modellierungsgüte des modifizierten MM5 gezogen werden. Kotlarski u. a. (2005) haben die Qualität von mehreren regionalen Modellen zu regionalen Klimasimulationen für Deutschland untersucht und dabei wurden die simulierten Niederschläge mit großflächigen DWD-Niederschlagsbeobachtungen über einen Zeitraum von 15 Jahren (1979-93) verglichen. MM5 zeigte dabei die Tendenz zu geringfügig höheren Niederschlägen (siehe Abb. 7 in Kotlarski u. a. 2005). Für die Herbst- und Wintermonate mit geringeren vertikalen Temperaturunterschieden zeigte (das original) MM5 stets die höchsten Niederschläge aller Modelle und überschätzte im Monatsmittel die DWD-Beobachtungen um bis zu 10 % (siehe Abb. 6 in Kotlarski u. a. 2005).

Im Inter-Modellvergleich zwischen dem original und dem modifizierten MM5 zeigt das modifizierte MM5 einen deutlichen Trend zu geringeren und damit realistischeren Niederschlägen. An lediglich 5 der 19 Messstationen in Tab. 3.5 zeigt das modifizierte MM5 höhere Monatsniederschläge als das original MM5. Eine Betrachtung der Differenzabbildung 3.4 b) (Differenz der simulierten Niederschläge des original MM5 minus Niederschläge des modifi-

Tabelle 3.5: Niederschlagssummen [mm] für Oktober 2005: DWD-Beobachtungen und Ergebnisse der MM5-Simulationen (original MM5 V3.6 und modifiziertes MM5 V3.6) für Domain D2

Station	Beobachtung	orig. MM5	mod. MM5	Differenz ¹⁾	Differenz ²⁾	Differenz ³⁾
Arkona/Rügen	38,6	48,0	36,9	-9,4	1,7	11,1
Brocken	96,2	78,3	83,6	17,9	12,6	-5,3
Dresden	25,8	12,9	13,1	12,9	12,7	-0,2
Erfurt	24,7	32,5	26,5	-7,8	-1,8	6,0
Frankfurt	30,0	24,5	16,9	5,5	13,1	7,6
Hamburg	54,4	51,1	44,7	3,3	9,7	6,4
Hanover	35,1	36,0	38,5	-0,9	-3,4	-2,5
Hof	24,6	50,6	18,2	-26,0	6,4	32,4
Kahler Asten	79,3	32,0	35,5	47,3	43,8	-3,4
Kassel	23,7	32,9	18,7	-9,2	5,0	14,2
Leipzig	20,8	24,5	16,9	-3,7	3,9	7,6
Magdeburg	37,6	37,0	35,0	0,6	2,6	2,0
Meiningen	41,8	30,8	23,9	11,0	17,9	6,9
Neuruppin	37,5	40,3	25,8	-2,8	11,7	14,6
Potsdam	35,1	30,2	25,0	4,9	10,1	5,2
Rostock	43,1	40,7	39,7	2,4	3,4	1,0
Schleswig	70,5	58,2	58,2	12,3	12,3	0,0
Schwerin	44,9	35,2	39,1	9,7	5,8	-4,0
Ueckermünde	28,9	36,8	32,5	-7,9	-3,6	4,3

Differenzenbildung: ¹⁾Beobachtung (DWD-Messstation) minus simulierter Niederschlag aus original MM5,

²⁾Beobachtung minus Niederschlag aus modifiziertem MM5, ³⁾Niederschlag aus original MM5 minus Niederschlag aus modifiziertem MM5

zierten MM5) bestätigt diesen Trend zu geringeren Niederschlägen auch in der Fläche. Die Regionen, in denen das modifizierte MM5 mehr Gesamtniederschlag produziert sind z.B. die Hochlagen des Harz, die Erhebungen in der Röhn (Wasserkuppe), der südwestliche Thüringer Wald, Teile des Erzgebirges und des Riesengebirges in Südpolen. Vor allem im südwestlichen Thüringer Wald zeigen sich aufgrund der südwestlichen Anströmung die Unterschiede in der Niederschlagsverteilung. Hier produziert das modifizierte MM5 mehr Niederschläge im Staubereich der Erhebungen und weniger im Lee-Bereich. Diese Beobachtung zeigt sich insbesondere in der Differenzabbildung 3.5 b) für das erste Niederschlagsereignis. Der Übergang zwischen Luv und Lee-Bereich ist als Wechsel des Vorzeichens in der Differenzabbildung zu erkennen. Dies bedeutet, dass im modifizierten MM5 die Kondensation und damit das Einsetzen von Niederschlag in der Anströmung der Mittelgebirge früher einsetzt als im original MM5. Betrachtet man die Differenzen in Tab. 3.6 im Luv- und Lee-Bereich z.B. für den Thüringer Wald für das erste Niederschlagsereignis an den Stationen Meiningen (Luv) einerseits und Erfurt, Leipzig und Hof (Lee) andererseits, so zeigt das modifizierte MM5 eine bessere Übereinstimmung mit den Beobachtungen. Der beschriebene Übergang zwischen Luv- und Lee-Bereich ist auch für das Rothaargebirge mit der Station Kahler Asten und vor allem für den Harz mit der Station Brocken zu beobachten. Für das erste Niederschlagsereignis beträgt die Differenz zwischen den beiden Simulationen an 4 Stationen (Arkona, Kassel, Hamburg und Schleswig) lediglich 10 Prozent oder weniger der simulierten Niederschläge (Mittelwert beider Simulationen), an 8 Stationen (Dresden, Kahler Asten, Erfurt, Hof, Leipzig, Meiningen,

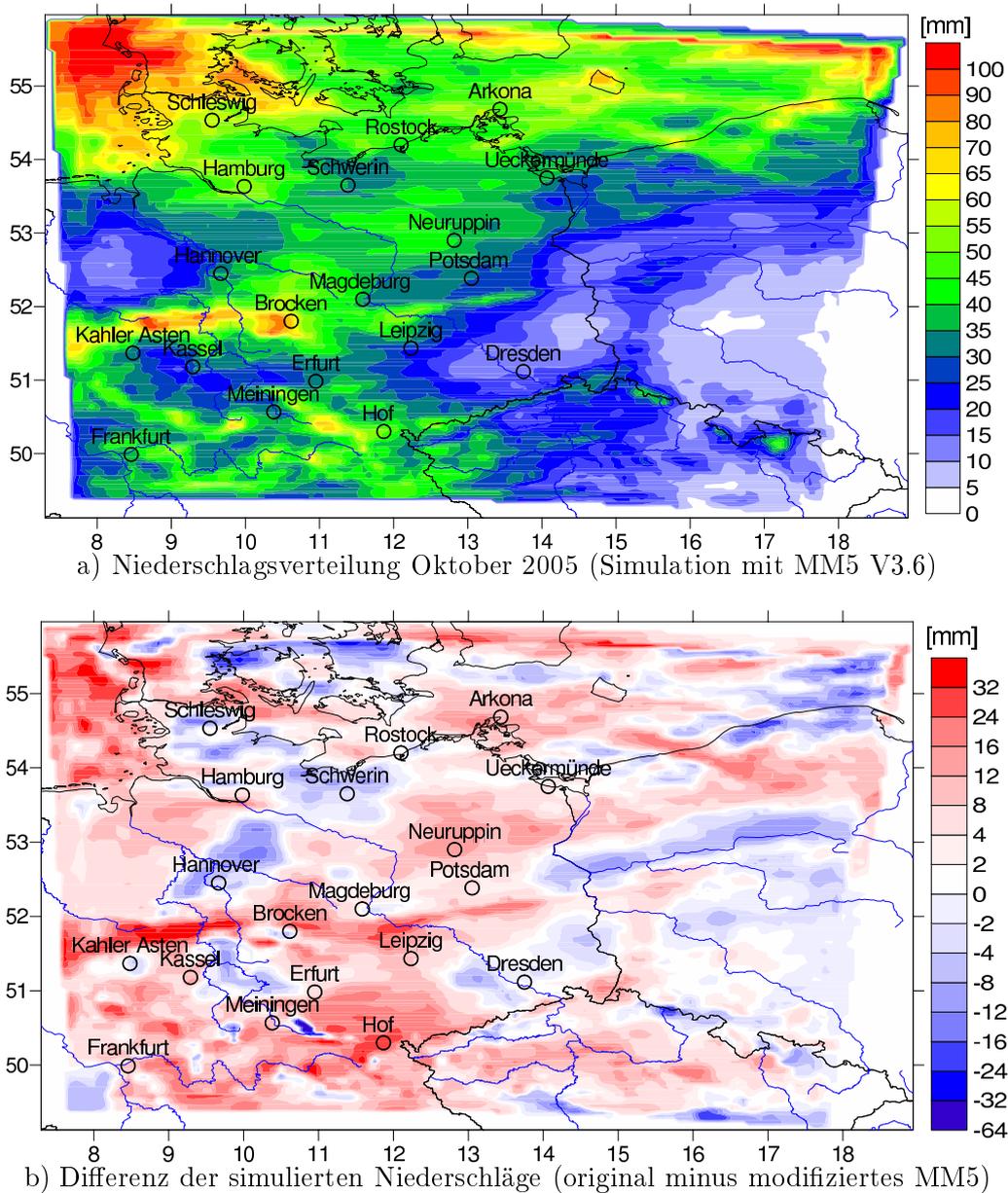


Abbildung 3.4: Niederschlagsverteilung für Oktober 2005: a) Simulation mit MM5 V3.6 und b) Differenzen der simulierten Niederschlagsverteilungen (original MM5 minus modifiziertes MM5)

Neuruppin und Potsdam) liefert das modifizierte MM5 deutlich bessere Übereinstimmungen mit den Niederschlagsbeobachtungen und an 7 Stationen (Brocken, Frankfurt, Hanover, Magdeburg, Rostock, Schwerin und Ueckermünde) stimmen die simulierten Niederschläge des original MM5 besser mit den DWD-Beobachtungen überein.

Das zweite Niederschlagsereignis zeigt wechselnde Anströmungen aus süd- und westlicher Richtung. Die stärksten Niederschläge zeigen sich im nördlichen Sauerland bis zum Harz, sowie in den südlicheren Mittelgebirgen wie der Röhn und dem Thüringer Wald (siehe Abb. c) in 3.5). Im Bereich des südlichen Thüringer Waldes zeigen sich (Abb. 3.5 d)) große Unterschiede in der Niederschlagsverteilung im Luv- und Lee-Bereich dieser Erhebung, die in stärkerer Ausprägung bereits beim ersten Niederschlagsereignis zu beobachten waren. In den Gipfelberei-

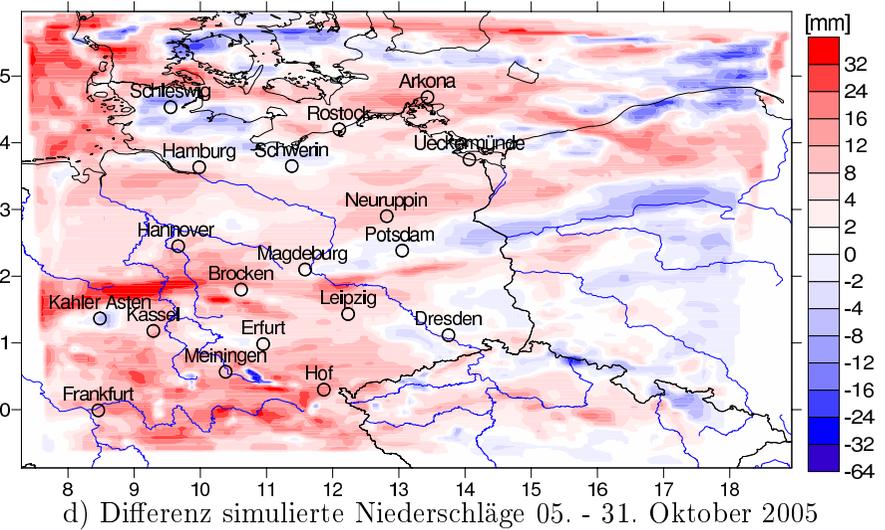
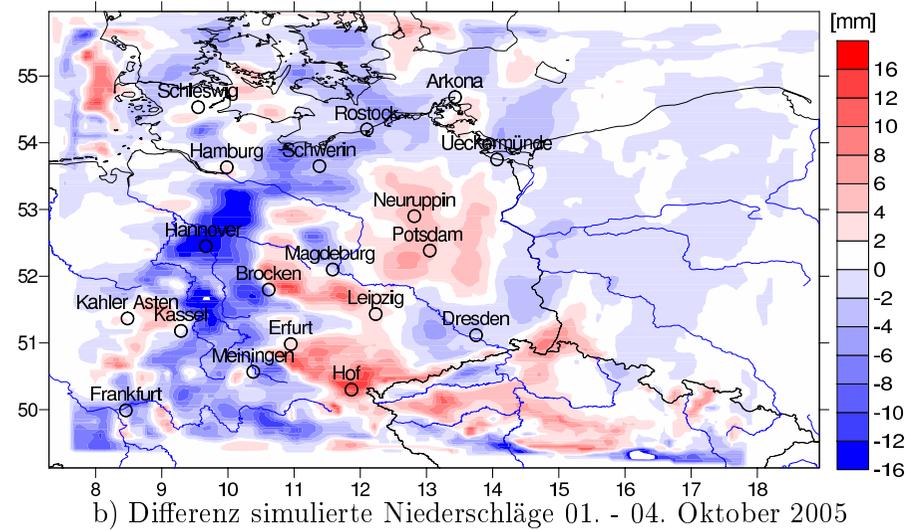
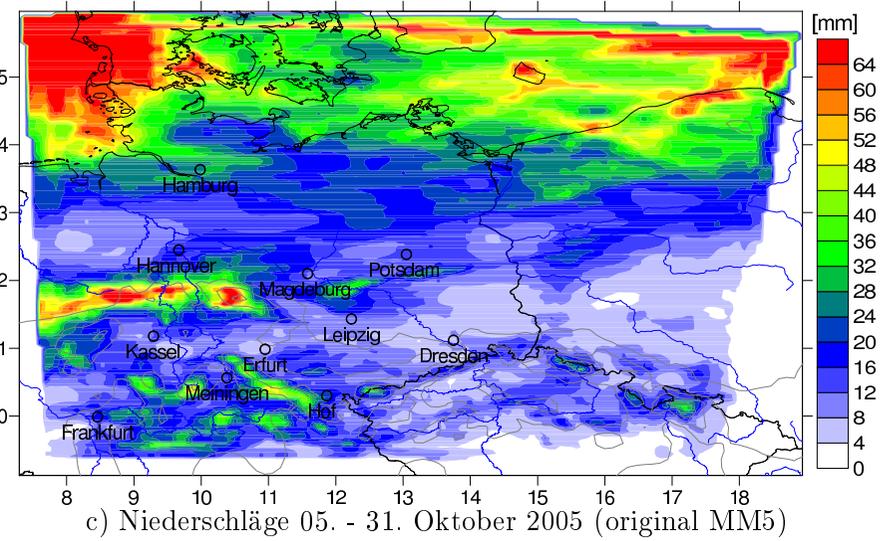
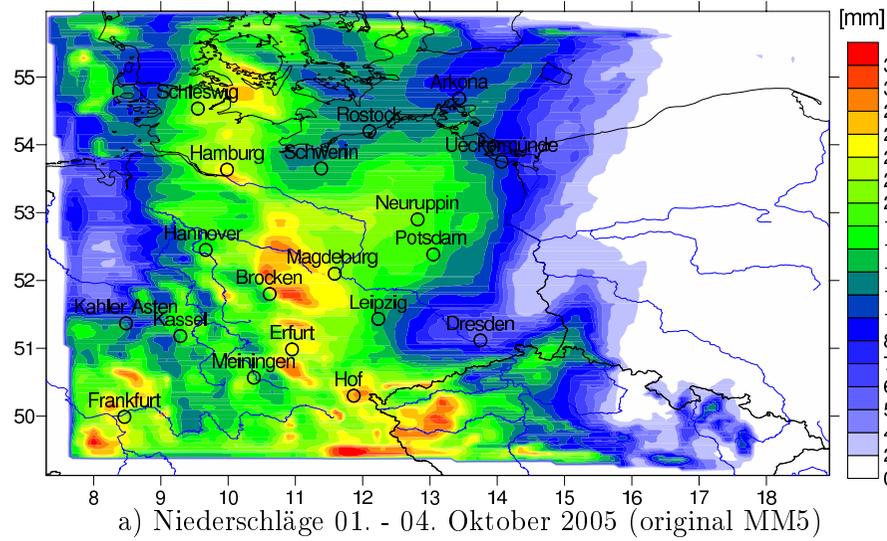


Abbildung 3.5: a) Niederschlagsverteilung 01. - 04. Oktober 2005 und b) Differenz der simulierten Niederschlagsverteilungen (original MM5 minus modifiziertes MM5) Domain D2

Tabelle 3.6: Niederschlagssummen (wie Tab. 3.5) zwischen dem 1. und 4. Oktober 2005

Station	Beobachtung	orig. MM5	mod. MM5	Differenz ¹⁾	Differenz ²⁾	Differenz ³⁾
Arkona/Rügen	9,4	10,4	10,9	-1,0	-1,5	-0,5
Brocken	16,0	16,5	24,9	-0,5	-8,9	-8,4
Dresden	13,1	6,4	8,1	6,7	5,0	-1,7
Erfurt	14,0	25,7	22,3	-11,7	-8,3	3,4
Frankfurt	23,3	14,4	11,9	8,9	11,4	2,5
Hamburg	10,4	25,3	23,1	-14,9	-12,7	2,2
Hanover	14,4	17,5	30,6	-3,1	-16,2	-13,1
Hof	19,8	29,5	15,0	-9,7	4,8	14,5
Kahler Asten	10,8	12,6	11,0	-1,8	-0,2	1,6
Kassel	8,3	16,8	17,3	-8,5	-9,0	-0,5
Leipzig	10,8	14,4	11,9	-3,6	-1,1	2,5
Magdeburg	8,5	20,6	24,7	-12,1	-16,2	-4,1
Meiningen	23,6	17,6	21,9	6,0	1,7	-4,3
Neuruppin	8,5	19,9	14,0	-11,4	-5,5	5,9
Potsdam	8,9	17,4	12,3	-8,5	-3,4	5,0
Rostock	12,0	12,9	15,7	-0,9	-3,7	-2,8
Schleswig	3,1	20,0	19,3	-16,9	-16,2	0,8
Schwerin	12,5	14,5	17,9	-2,0	-5,4	-3,4
Ueckermünde	5,1	10,4	12,0	-5,3	-6,9	-1,6

Differenzenbildung: ¹⁾Beobachtung (DWD-Messtation) minus simulierter Niederschlag aus original MM5,

²⁾Beobachtung minus Niederschlag aus modifiziertem MM5, ³⁾Niederschlag aus original MM5 minus Niederschlag aus modifiziertem MM5

chen der Mittelgebirge (Wasserkuppe/Röhn, Kahler Asten/Rothaargebirge, Brockens/Harz Riesengebirge und die hohe Tatra) werden mit dem modifizierten MM5 höhere Niederschläge simuliert, während im übrigen Gebiet das original MM5 wesentlich höhere Niederschläge liefert.

Da die skaligen und subskaligen Phasenumwandlungen in beiden MM5 Modellen durch identische physikalische Module berechnet werden, sind für die gezeigten Unterschiede nur die unterschiedlichen Zeitintegrations- und Advektionsverfahren verantwortlich. Das heißt, die in den Advektionstests gezeigten numerisch erzeugten Oszillationen des MM5-Leapfrogverfahrens können tatsächlich deutliche Unterschiede in den Niederschlagsmustern, vor allem im Luv- und Lee-Bereich orographischer Erhebungen erzeugen. Die nichtlinearen skaligen und subskaligen Phasenumwandlungsprozesse reagieren auf Unterschiede in der Wasserdampfverteilung vor allem in der Nähe des Sättigungsniveaus sehr empfindlich, sodass die gezeigten Unterschiede bereits durch geringfügige Abweichungen in der Wasserdampfverteilung entstehen können. Aufgrund der Phasenumwandlungen und den damit verbundenen Rückkopplungen zum Energiehaushalt können solche Effekte vor allem in den wärmeren Sommermonaten auch Auswirkungen auf die atmosphärische Dynamik haben, welche wiederum z.B durch Advektion und Turbulenz auf die Verteilung der Feuchtegrößen rückkoppelt.

Die Analyse der simulierten Niederschläge zeigt für das modifizierte MM5 eine Tendenz zu geringeren Niederschlägen in der Fläche und zu höheren Niederschlägen im Bereich starker orographischer Erhebungen. Aufgrund der bereits erwähnten Untersuchung von Kotlarski u. a. (2005) in der das original MM5 geringfügig zu hohe Niederschläge vorhersagt, liegt

die Schlussfolgerung nahe, dass das modifizierte MM5 dadurch realistischere Niederschläge prognostiziert. Der Vergleich der simulierten Niederschlagsmonatssummen mit den DWD-Beobachtungen bestätigt dies eindrucksvoll.

3.5.2 Evaluierung der vertikalen Wasserdampfverteilung durch Lidar-Beobachtungen

Im zweiten Teil der Evaluierung des modifizierten MM5 wird die simulierte Wasserdampfverteilung mit vertikalen Wasserdampf-Profil-Messungen durch Lidarsysteme der Launch-Campaign (2005) an den Standorten Leipzig, Lindenberg und Ziegendorf verglichen. Die Lidarsysteme sind in Tab. 3.3 beschrieben und die genaue Position im Domain D2 ist in Abb. 3.2 dargestellt. Ein Datensatz der Messungen der Launch-Campaign (2005) für die Modellevaluierung wurden freundlicherweise von Dr. Dirk Engelbart (DWD Observatorium Lindenberg) zur Verfügung gestellt.

Für die Simulationen verwenden die gleiche Modellkonfiguration und Antriebsdaten wie in Abschnitt 3.5.1. Es wurden dabei mit beiden MM5 Versionen Domain D1 vom 26.10.05 0:00 Uhr bis 27.10.05 12:00 Uhr simuliert und durch Nestung Rand- und Anfangsbedingungen für Domain D2 erzeugt.

Die MM5-Simulationsergebnisse sind jeweils im Mittelpunkt der 32 vertikalen Schichten definiert. Die Verteilung der Schichtdicken erfolgt dabei reziprok der vertikalen Dichteverteilung. Aufgrund der bodenfolgenden σ -Koordinaten variieren für jede Schicht Schichtdicke sowie deren absolute Höhe über Normalnull je nach geografischer Lage. Die Lidar-Systeme arbeiten bei der vertikalen Abtastung mit konstanten, zumindest über bestimmte Bereiche konstanten Schichtdicken. Die zu vergleichenden Daten aus den Simulationen und den Beobachtungen sind somit an unterschiedlichen Punkten definiert, so daß die Daten für einen Vergleich auf ein gemeinsames Datengitter transformiert werden müssen. Durch diese Transformation geht Information verloren, aber nur so ist ein direkter Vergleich der Profile möglich.

Zur Evaluierung der MM5-Simulationen werden an den 3 Lidar-Standorten jeweils die Wasserdampf-Vertikalprofile der Lidar-Beobachtung, sowie der Referenzsimulation (mit dem originalen MM5) und der Differenz zwischen den Simulationen auf den jeweiligen Datengittern gezeigt. Im Gegensatz dazu werden anschließend auf dem gemeinsamen neuen Datengitter die transformierten Profile sowie die entsprechenden Differenzen dargestellt.

Berliner Wetterkarten 26.10.05:

In Deutschland kam es in den letzten 24 Stunden in der Nordhälfte zu weiteren teils sehr ergiebigen Niederschlägen. [...] Dabei wanderte die Kaltfront des Sturmwirbels HEIDO sehr rasch von den Britischen Inseln über die Nordhälfte hinweg nach Polen. Ihr folgte aber nur in höheren Luftschichten kältere Meeresluft nach, in Bodennähe war praktisch keine Temperaturänderung zu verzeichnen. So blieb es für die Jahreszeit zu mild. In den kommenden Tagen wird es aller Voraussicht nach sogar noch milder. Auf der Vorderseite eines sich dann über dem östlichen Nordatlantik etablierenden langwelligen Höhentrog dreht die Strömung über Mitteleuropa auf Südwest bis Süd, so dass subtropische Luftmassen zu uns gelangen können. Im 850-hPa-Niveau werden am kommenden Wochenende Temperaturwerte zwischen 10 und 15°C über Deutschland

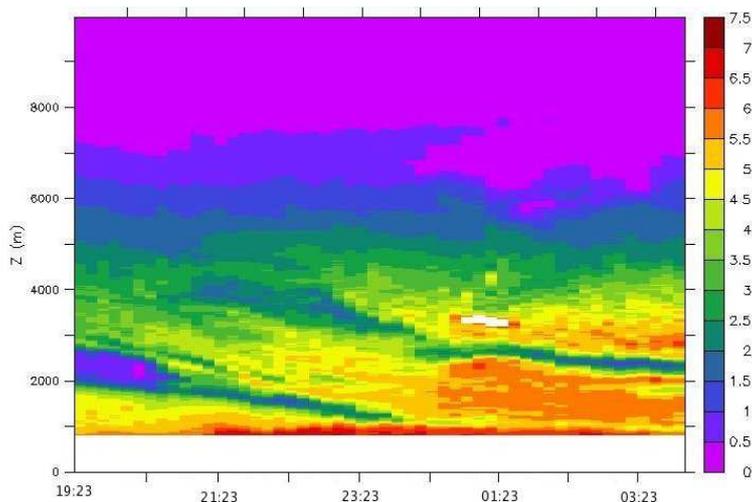


Abbildung 3.6: Lidar-Beobachtung Lindenberg: Vertikalprofil (von ca. 800 - 10 000 m über Grund) des Wasserdampfmischungsverhältnisses [g/kg] vom 26.10. 19:23 - 27.10.05 4:03 Uhr

erwartet. Vor allem an den Nordrändern der Mittelgebirge und am Alpenrand sind dann Temperaturwerte bis zu 25°C möglich.

Vorhersage für Donnerstag, den 27.10.2005: Am Donnerstag halten sich vor allem in den Niederungen Süddeutschlands teils recht zähe Nebel- oder Hochnebfelder. Sonst ist es nach Nebelauflösung wolkig oder heiter und trocken, lediglich in Richtung Ostseeküste bleibt es zunächst noch trüb mit etwas Regen oder Sprühregen. Die Temperaturen erreichen Höchstwerte zwischen rund 14°C in Vorpommern und 22°C im Westen, am Rhein und am Nordrand des Hohen Venn (Raum Aachen) örtlich möglicherweise auch etwas darüber. Es weht schwacher bis mäßiger, in Böen im Norden und auf den Bergen auch frischer südlicher bis südöstlicher Wind.

3.5.2.1 Beobachtungsstation Lindenberg

Das RAMAN-Lidar-System am Standort Lindenberg lieferte die Beobachtungsdaten in der höchsten räumlichen und zeitlichen Auflösung (siehe Tab. 3.3). Das Vertikalprofil des Wasserdampfmischungsverhältnisses der Lidar-Messung ist in Abb. 3.6 dargestellt. Im Bereich zwischen 01:00 und 02:00 Uhr in ca. 3300 m Höhe sind Datenlücken zu erkennen. Dieser Datenbereich wurde bei der Transformation der Messdaten auf das Vergleichsgitter durch eine horizontale Interpolation korrigiert. Das Vertikalprofil zeigt sehr feuchte Luftmassen in Höhen bis zu 6000 m, die beim Transport in nordöstliche Richtung absinken.

In Abb. 3.7 a) ist das Vertikalprofil der Referenzsimulation und in 3.7 b) die Differenz der Simulationen (original MM5 minus modifiziertes MM5) auf dem MM5 Gitter gezeigt. Die MM5-Referenzsimulation ist nur bedingt in der Lage die vertikale Wasserdampfverteilung wie durch die Lidar-Messung gezeigt wiederzugeben. Das Absinken feuchter Luftmassen wird durch die Simulation zwar grundsätzlich wiedergegeben, die ausgeprägte vertikale Wasserdampfverteilung bis in ca. 5000 m Höhe wird durch die Simulation deutlich unterschätzt. Die ausgeprägten positiven Differenzen der Simulationen zeigt zu Beginn der Beobachtung in den Bereichen bis ca. 4000m Höhe deutlich höhere Werte beim original MM5 (positive Differenz) und höhere Werte für das modifizierte MM5 (negative Differenz) in darüberliegenden

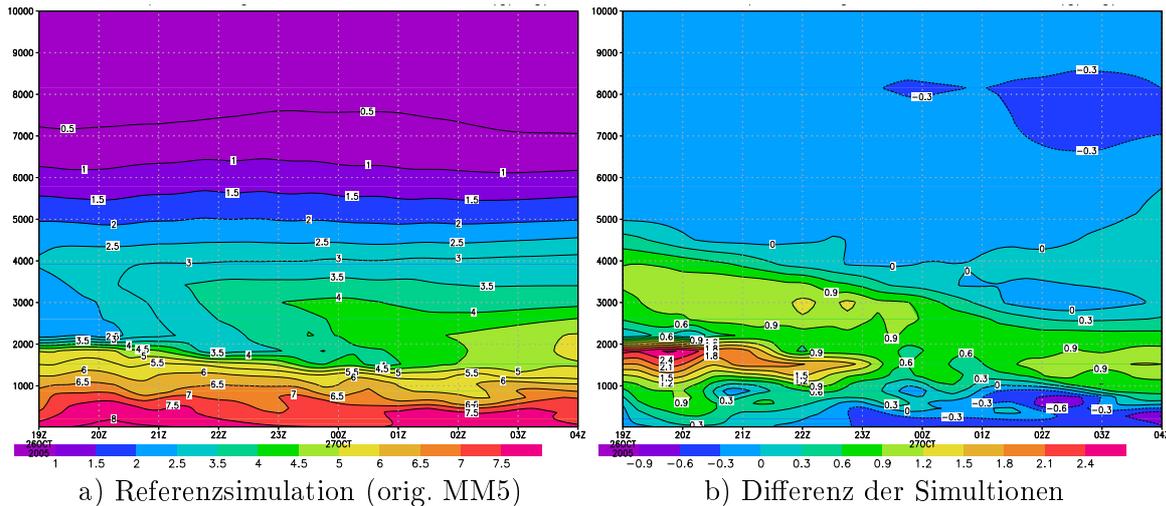


Abbildung 3.7: Standort Lindenberg: a) MM5-Simulation (original MM5) für die Vertikalverteilung des Wasserdampf-mischungsverhältnisses [g/kg] und b) Differenz des Wasserdampf-mischungsverhältnis (original minus modifiziertes MM5) vom 26.10. 19:15 - 27.10.05 4:00 Uhr

Schichten. Das modifizierte MM5 liefert in der unteren Hälfte des beobachteten Vertikalprofils deutlich trockenere Verhältnisse.

Für die Evaluierung wurden alle 3 Vertikalprofile auf das neue Datengitter transformiert. Das äquidistante Gitter ist dabei mit einer Auflösung von 52 Gitterpunkten auf der Zeitachse (Gitterabstand 10 Minuten) und 100 Gitterpunkte auf der Höhenachse (Gitterabstand 100m) definiert. Die resultierenden Vertikalprofile sind in Abb. 3.8 dargestellt. Es zeigen sich im Vergleich zur Darstellung auf dem Modellgitter in Abb. 3.7 a) deutliche Informationsverluste.

Der Vergleich der Simulationen mit den Lidar-Messungen auf dem gemeinsamen Datengitter zeigt an der Station Lindenberg in Abb. 3.9 ein unterschätzen der vertikalen Wasserdampfverteilung für beide Simulationen über weite Bereiche der vertikalen Verteilungen im Vergleichszeitraum. Das modifizierte MM5 zeigt hier ausgeprägt höhere Differenzen, d.h. die Simulation prognostiziert geringere Werte als durch die Lidar-Messung beobachtet. Das original MM5 produziert aufgrund der stärker ausgeprägteren vertikalen Wasserdampfverteilung entsprechend geringere Differenzen zur Lidar-Messung und zeigt damit an der Station Lindenberg eine bessere Übereinstimmung mit der Lidar-Beobachtungen.

Der Intermodellvergleich zwischen den beiden Simulationen zeigt - wie bereits auf dem Modellgitter in Abb. 3.7 b) beobachtet - zwischen der Grenzschicht und einer Höhe von ca. 4000 m deutlich geringere Werte für das modifizierte MM5, während Letzteres vor allem in der Grenzschicht höhere Mischungsverhältnisse produziert (siehe Abb. 3.9). Dies gilt auch in der oberen Hälfte des Vertikalprofils ab ca. 5000m Höhe über Grund. Hier liefert das modifizierte MM5 ebenfalls höhere Mischungsverhältnisse als das original MM5. Die maximalen Unterschiede liegen dabei in ca. 1000 m Höhe bei ca. 2 g Wasserdampf und in ca. 3500m bei ca. 1,2 g Wasserdampf je Kilogramm trockene Luft.

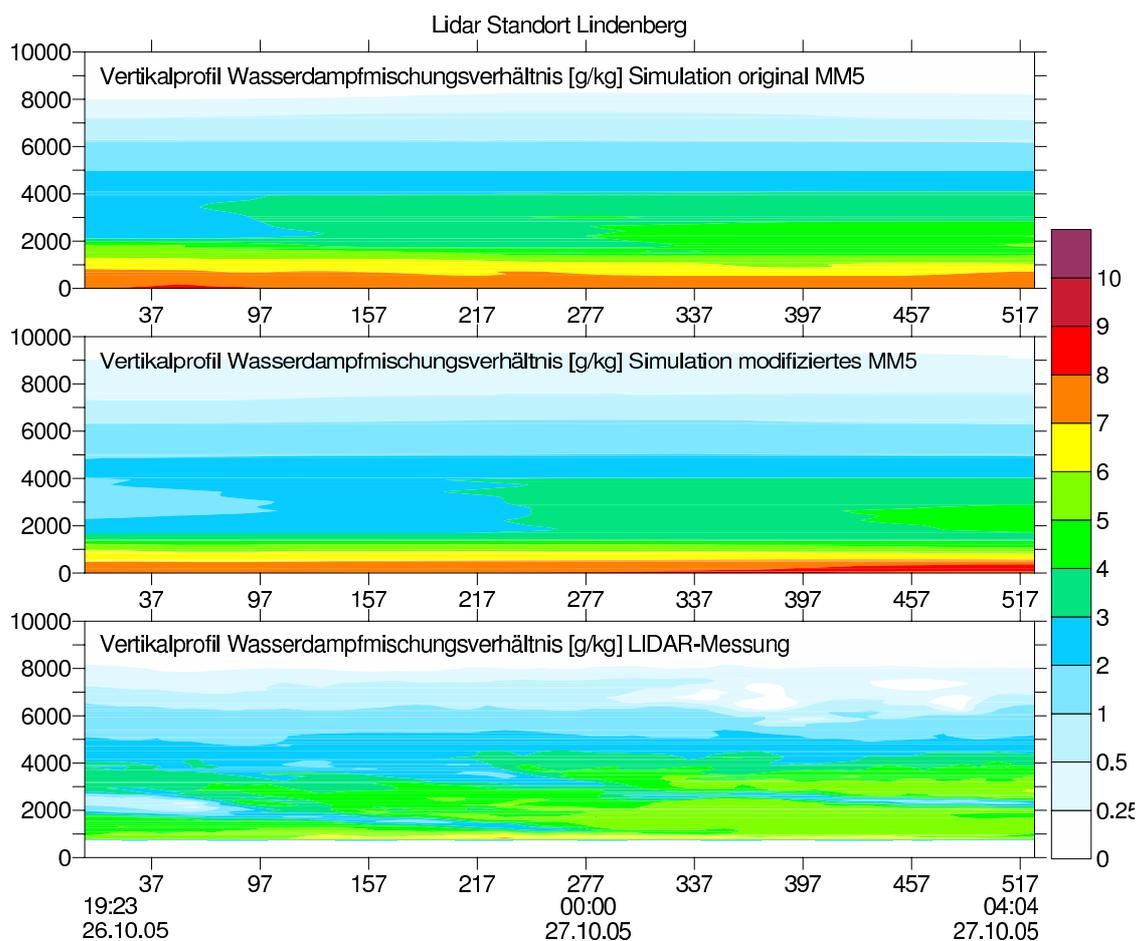


Abbildung 3.8: Vertikale Verteilung der Wasserdampfmischungsverhältnisse [g/kg] gegen die Beobachtungszeit [Minuten] der MM5 Simulationen und vom RAMAN-Lidar an der Lidar-Station Lindenberg; Vertikale Verteilung des Wasserdampfmischungsverhältnis vom Boden (0 m) bis auf 10 000 m über Grund; Beobachtungszeitraum: 26.10. 19:23 - 27.10.05 04:40 Uhr

3.5.2.2 Beobachtungsstation Leipzig

Die Lidar-Messung am Standort Leipzig zeigt über dem Beobachtungszeitraum ausgeprägte vertikale Wasserdampfverteilungen, siehe Abb. 3.10. Die Beobachtung zeigt eine deutlich trockenere Situation als an der Station Lindenberg (vergl. Abb. 3.6). Der zeitliche Verlauf der vertikalen Schichtung lässt aber ebenfalls den Einfluss absinkender Luftmassen die an der Messstation vorbeigeführt wurden erkennen. Die in der Abb. 3.10 auftretenden Datenfehler wurden durch horizontale Interpolation korrigiert.

Die MM5-Referenzsimulation prognostiziert an der Station Leipzig eine Zunahme des Wasserdampfmischungsverhältnisses in den unteren Modellschichten ohne dabei die im Verlauf der Messung beobachtete, durch absinkende Luftmassen erzeugte typische Schichtung erkennen zu lassen. Die Referenzsimulation liefert im Gegensatz zur Lidar-Beobachtung gegen Ende des Beobachtungszeitraums ab ca. 2000 m Höhe deutlich feuchtere Verhältnisse. Der direkte Vergleich zwischen den Simulationen (siehe Abb. 3.7) zeigt in einer Höhe von ca. 1000m deutlich geringere Werte für das modifizierte MM5. Hier liefert Letzteres eine Vertikalverteilung mit höheren Mischungsverhältnissen in der Grenzschicht bis ca. 300 m und einem mit zunehmender Höhe stärker abfallenden Profil. Die starke Wasserdampfakkumulation gegen Ende

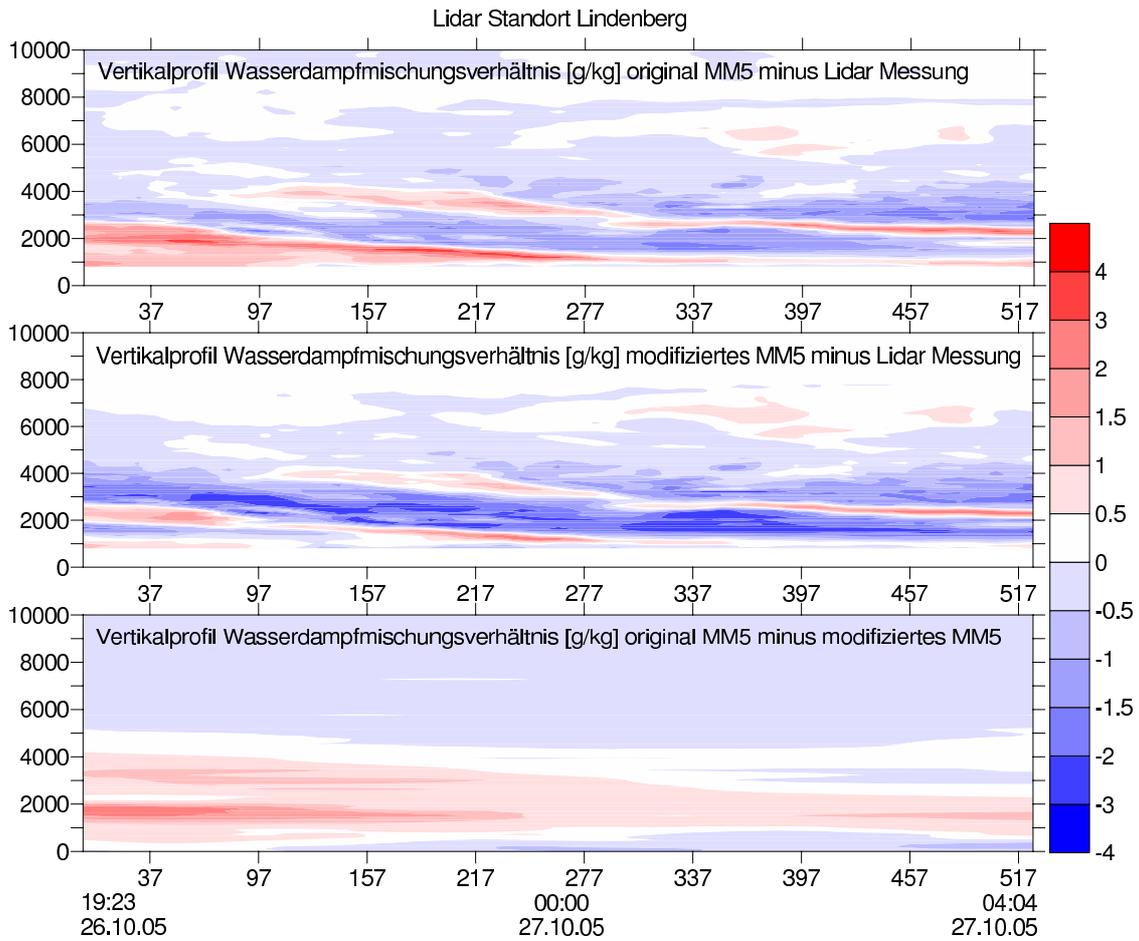


Abbildung 3.9: Wie Abb. 3.8 aber für die Differenzen der Wasserdampfmischungsverhältnisse [g/kg] an der Lidar-Station Lindenberg

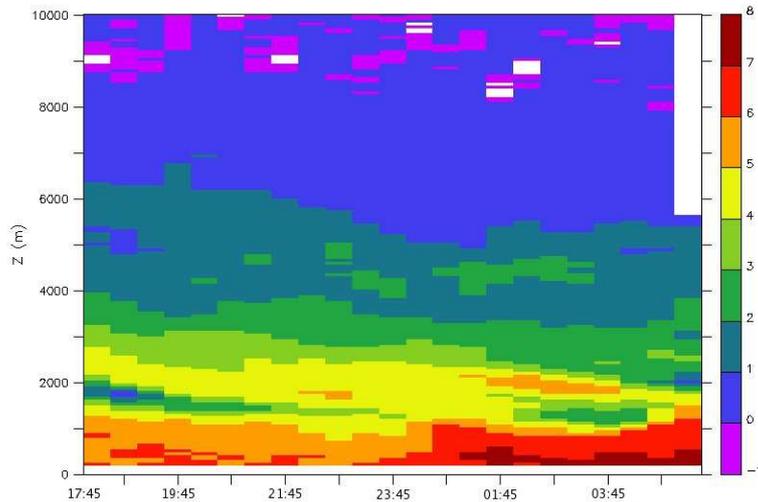


Abbildung 3.10: Lidar-Beobachtung Standort Leipzig: Vertikalprofil (von ca. 200 - 10 000m über Grund) des Wasserdampfmischungsverhältnis [g/kg] vom 26.10. 17:45 - 27.10.05 5:15 Uhr

des Beobachtungszeitraumes in ca. 2000 m Höhe wird durch das modifizierte MM5 deutlich geringer prognostiziert.

Das Datengitter für den Lidar- und Inter-Modell-Vergleich ist dabei mit einer Auflösung

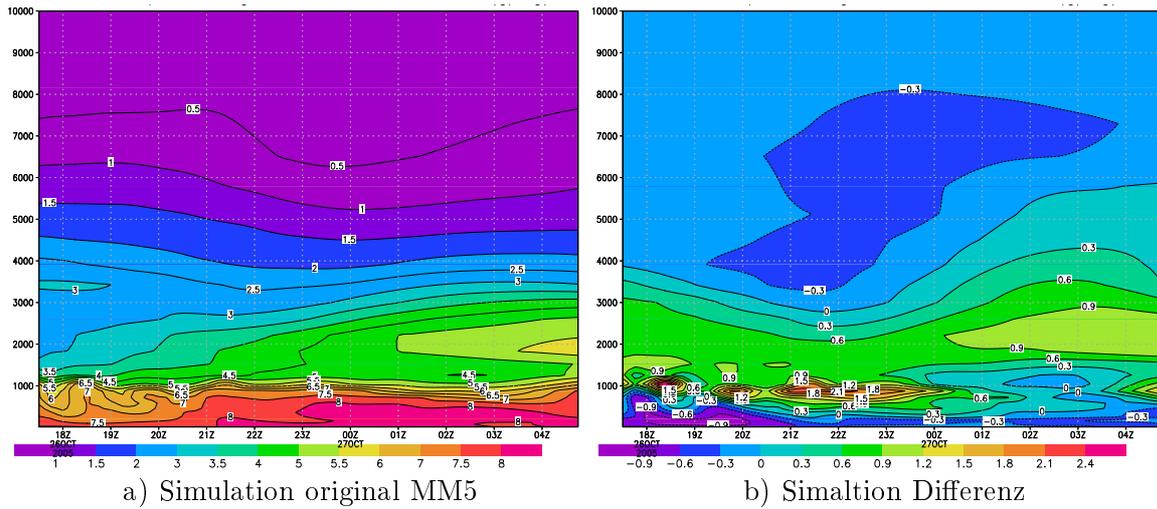


Abbildung 3.11: Wie Abb. 3.7 an der Lidar-Station Leipzig (vom 26.10.05 17:45 bis 27.10.06 04:45 Uhr)

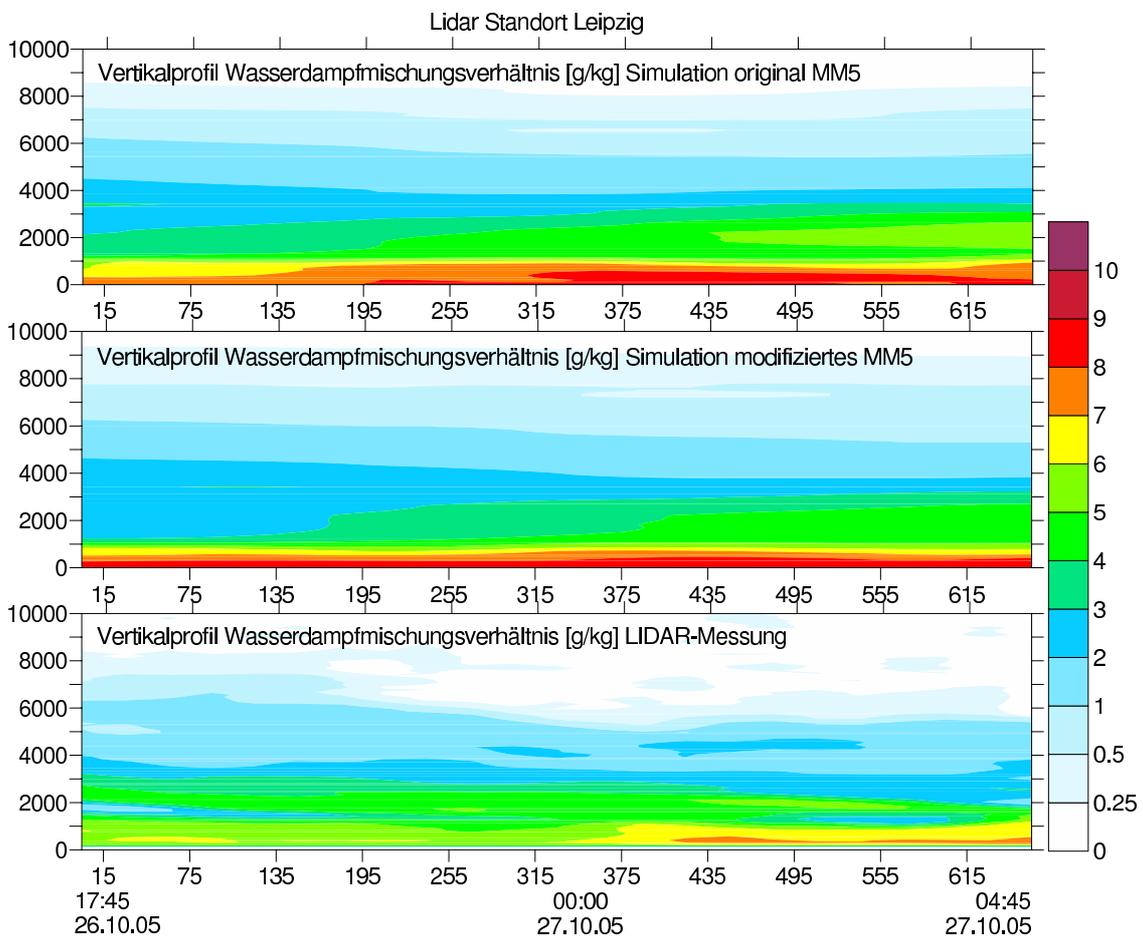


Abbildung 3.12: Wie Abb. 3.8 an der Lidar-Station Leipzig (vom 26.10.05 17:45 bis 27.10.06 04:45 Uhr)

von 23 Gitterpunkten auf der Zeitachse (Gitterabstand 30 Minuten) und 100 Gitterpunkte auf der Höhenachse (Gitterabstand 100m) definiert.

Der Vergleich der beiden MM5 Simulationen resultiert - wie am Standort Lindenberg -

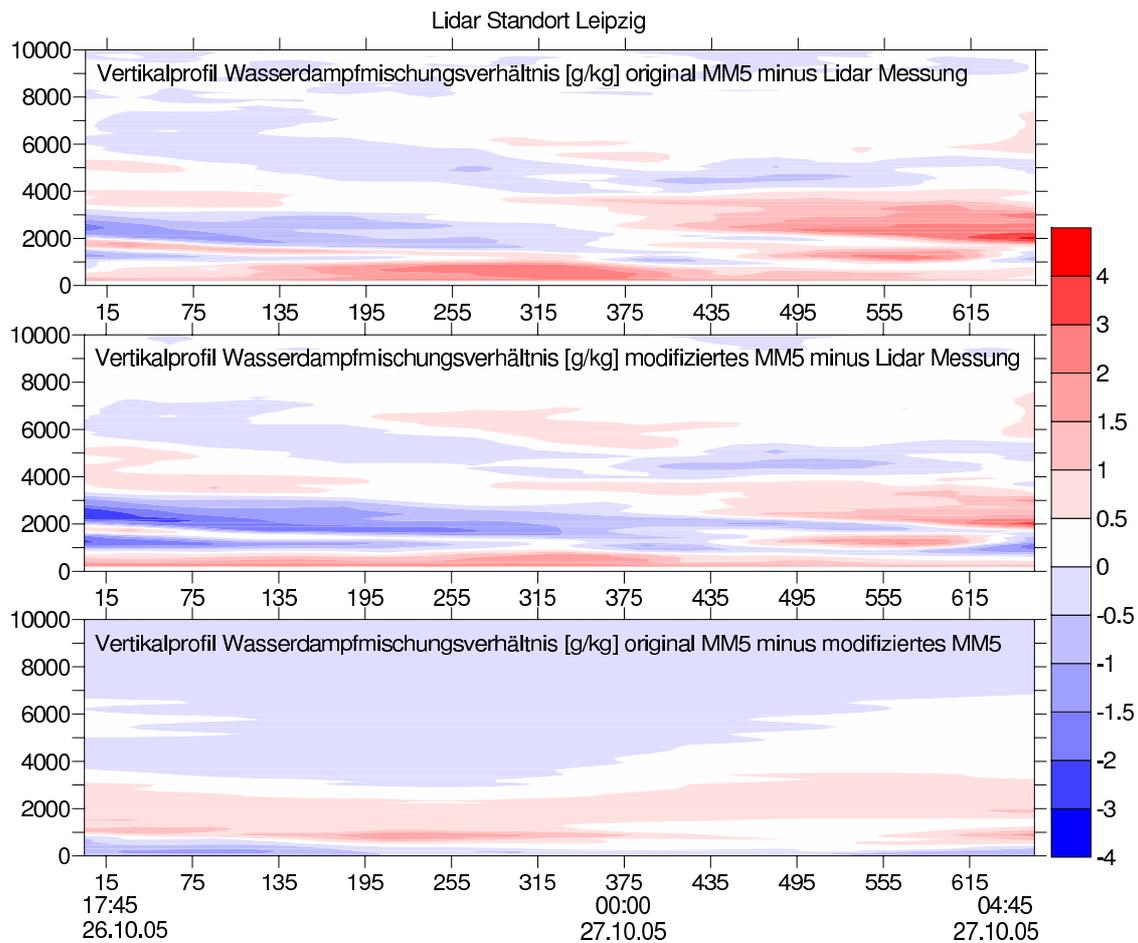


Abbildung 3.13: Wie Abb. 3.9 an der Lidar-Station Leipzig (vom 26.10.05 17:45 bis 27.10.06 04:45 Uhr)

in einem systematischen Unterschied. Der Vergleich mit den Lidar-Messungen zeigt, dass in beiden Simulationen zu Beginn des Beobachtungszeitraums in Höhen zwischen 1000 und ca. 3000m die Wasserdampfmischungsverhältnisse deutlich unterschätzt werden. Das modifizierte MM5 zeigt hier erheblich größere Unterschiede. Im Verlauf der Beobachtung zeigt die Lidar-Messung eine Wasserdampf-Akkumulation in den bodennahen Schichten bis 1000m über Grund. Die Simulationen beinhalten diese Akkumulation ebenfalls. Beide Simulationen zeigen allerdings in den darüberliegenden Schichten ein zunehmendes Überschätzen der Mischungsverhältnisse. Hier zeigt vor allem das original MM5 deutlich größere Abweichungen von den Lidar-Messungen.

3.5.2.3 Beobachtungsstation Ziegenderf

Die Lidar-Messung am Standort Ziegenderf zeigt für den Zeitraum vom 26.10. 18:15 - 27.10.05 4:45 Uhr wie zuvor eine ausgeprägte vertikale Feuchteverteilung in Höhen bis über 6000m Höhe über Grund und Bereiche mit hohen Wasserdampfmischungsverhältnissen in den untersten bodennahen Schichten, siehe Abb. 3.10. Die vertikale Schichtung ist dabei über den Beobachtungszeitraum hinweg ebenfalls durch absinkende Luftmassen geprägt. Die Lidarmessung weist Datenfehler auf, die für den Vergleich durch horizontale Interpolation korrigiert wurden.

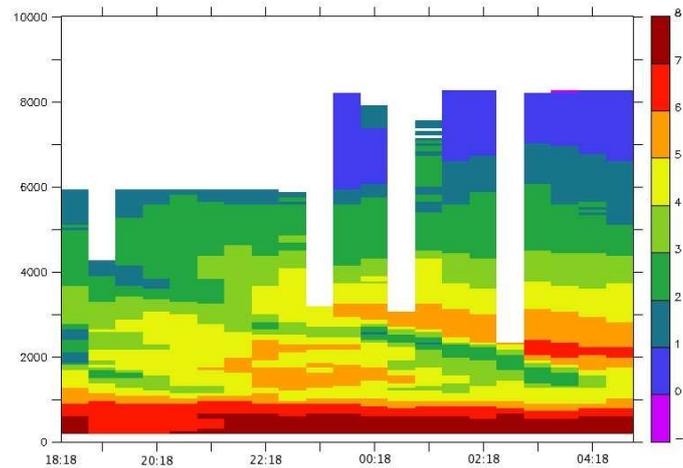


Abbildung 3.14: Lidar-Beobachtung Ziegendorf: Vertikalprofil (von ca. 200 - 8 250m über Grund) des Wasserdampfverhältnisses [g/kg] vom 26.10. 18:15 - 27.10.05 4:45 Uhr

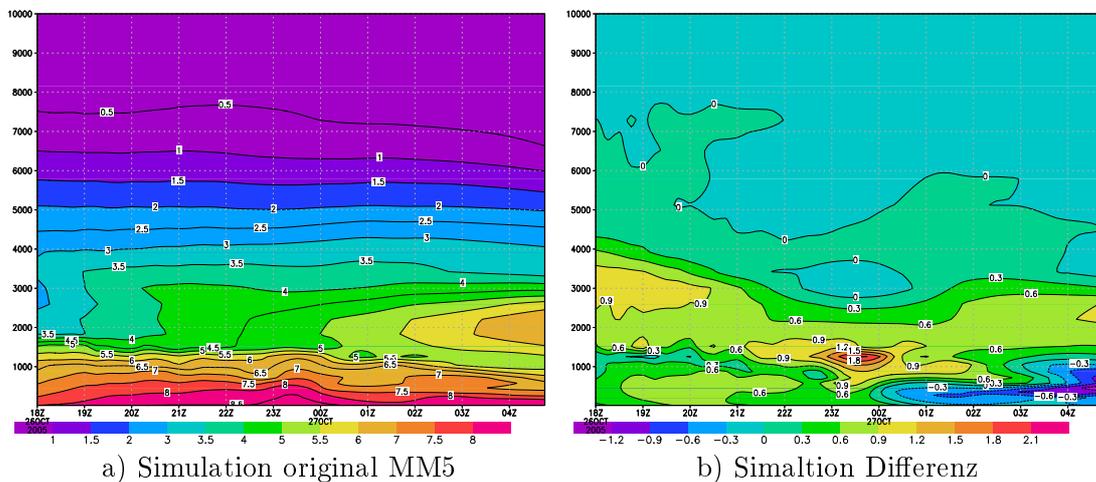


Abbildung 3.15: Wie Abb. 3.7 an der Lidar-Station Ziegendorf (26.10.05 18:00 - 27.10.05 5:00 Uhr)

Abb. 3.14 a) zeigt die vertikale Wasserdampfverteilung [g/kg] der Referenzsimulation. Diese beinhaltet eine deutlich geringer ausgeprägte vertikale Feuchteverteilung mit einem sehr starken Gradienten bis ca. 1500 m Höhe. Die darüberliegenden Schichten zeigen im Vergleich zur Lidar-Beobachtung wesentlich trockenere Verhältnisse. Die Referenzsimulationen beinhaltet in den Vertikalprofilen den Einfluss absinkender Luftmassen, allerdings deutlich weniger detailliert als in der Lidar-Messung zu beobachten. Die maximalen Werte zeigen über 8 Gramm Wasserdampf je Kilogramm trockener Luft in den untersten Modellschichten in Bodennähe wie in der Lidar-Messungen.

Das Datengitter für den Vergleich ist dabei mit einer Auflösung von 21 Gitterpunkten auf der Zeitachse (Gitterabstand 30 Minuten) und 100 Gitterpunkte auf der Höhenachse (Gitterabstand 100m) definiert. Die positiven Differenzen während der ersten Stunden des Vergleichs überhalb von 6000m Höhe resultieren durch die fehlenden Lidardaten. Der Vergleich der Simulationen in Abb. 3.17 liefert den bereits diskutierten systematischen Unterschied in der Vertikalverteilung. Der Vergleich der Simulationsergebnisse mit den Lidar-Messungen zeigt

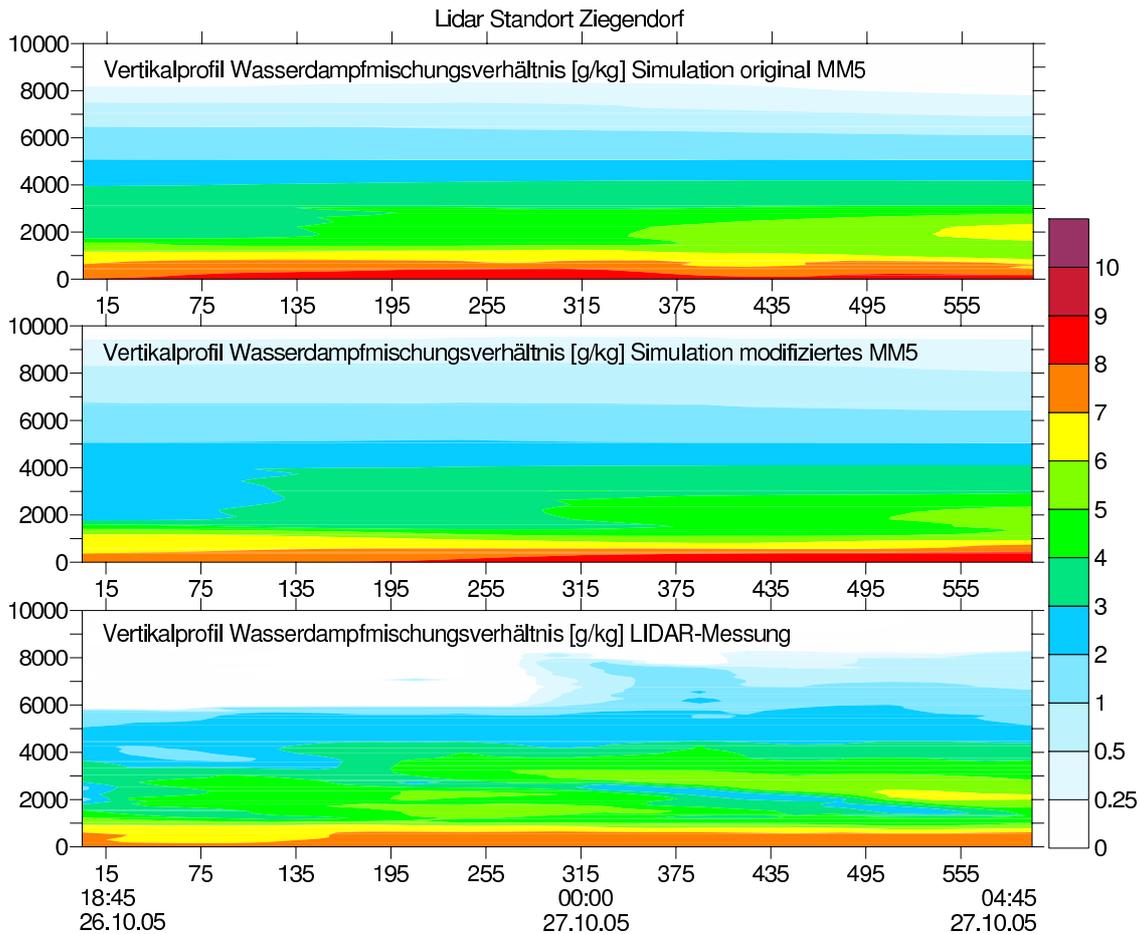


Abbildung 3.16: Wie Abb. 3.8 an der Lidar-Station Ziegendorf (vom 26.10.05 18:45 - 27.10.05 4:45 Uhr)

für beide Simulationen ab ca. 2000m Höhe ein deutliches unterschätzen der Mischungsverhältnisse. Das original MM5 zeigt hier aufgrund geringere Differenzen deutlich bessere Übereinstimmung mit den Lidar-Beobachtungen. In den unteren Modellschichten bis ca. 2000 m Höhe werden die Mischungsverhältnisse mit dem original MM5 allerdings stärker überschätzt als dies mit dem modifizierte MM5 der Fall ist.

3.6 Zusammenfassung und Bewertung

Der numerisch Advektionstest hat für das neue Integrations- und Advektionsverfahren deutlich bessere Ergebnisse im Vergleich zu dem in MM5 verwendeten Leapfrog-Verfahren mit dem Asselin Zeitfilter gezeigt. Durch den gewählten Ansatz konnte beim neuen Verfahren die Bildung von numerisch erzeugten Wellen in der numerischen Lösung wesentlich stärker unterbunden werden, als dies beim Asselin-Zeitfilter für das Leapfrog-Verfahren der Fall ist.

Die Evaluierung des neuen Verfahrens in MM5 hinsichtlich der Niederschlagsverteilung ergab eine deutliche Verbesserung der simulierten Niederschläge, vor allem im Luv- und Lee-Bereich der Mittelgebirge. Hier setzte die Kondensation in der Anströmung durch das modifizierte Verfahren deutlich früher ein als mit dem original MM5, was zu realistischeren Niederschlägen führt. Entsprechend erhalten die Gebiete im Lee-Bereich weniger Niederschlä-

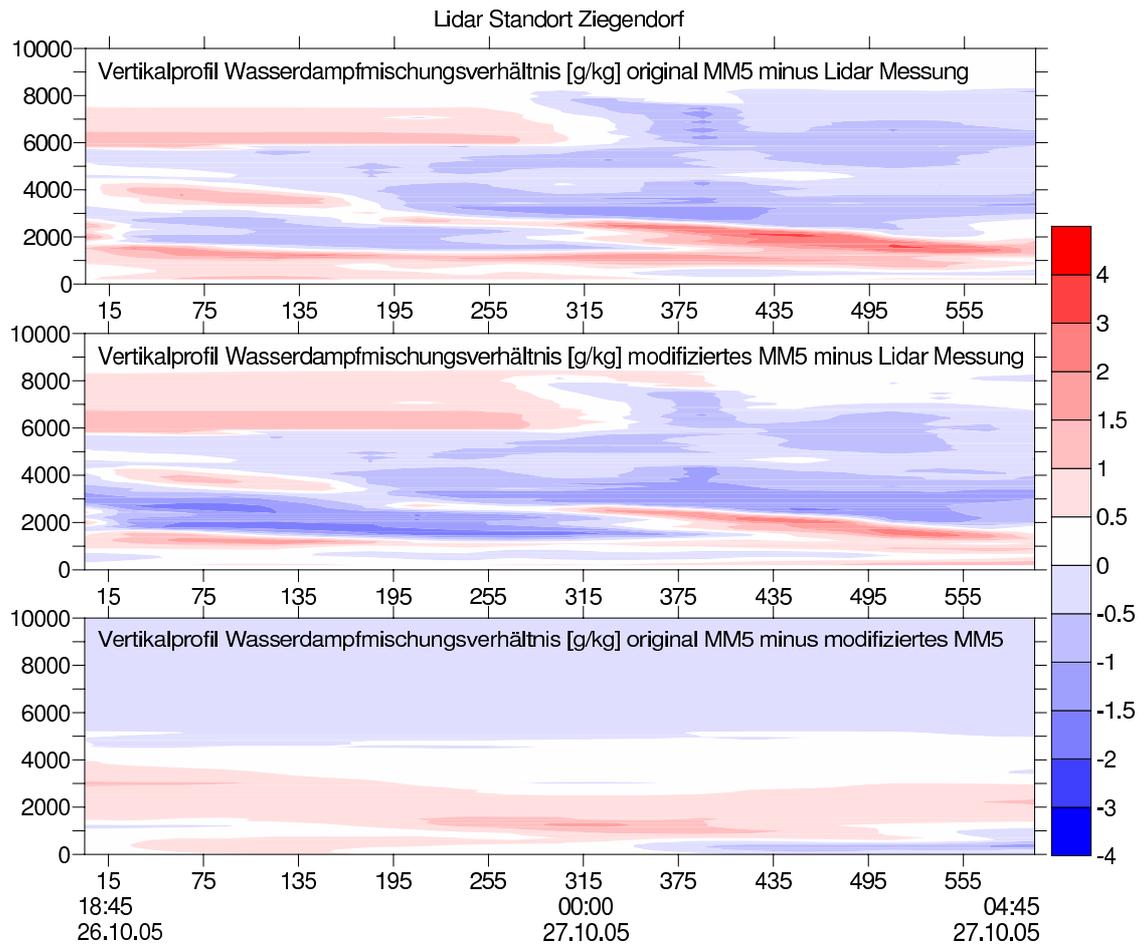


Abbildung 3.17: Wie Abb. 3.9 an der Lidar-Station Ziegendorf (vom 26.10.05 18:45 - 27.10.05 4:45 Uhr)

ge, was sich als konsistent mit den vorhandenen DWD-Niederschlagsbeobachtungen erwies.

Die Wasserdampfprofile der LIDAR-Beobachtungen an den Stationen Lindenberg, Leipzig und Ziegendorf zeigten deutliche Unterschiede zu den simulierten Wasserdampfverteilungen. Grundsätzlich lassen sich dabei keine Aussagen darüber machen, ob das neue Verfahren die Simulation der vertikalen Wasserdampfverteilung verbessert, da die MM5-Simulationen nicht in der Lage waren, die ausgeprägte atmosphärische Schichtung an den Beobachtungsstationen detailliert genug wiederzugeben. Der Eingangsdatensatz mit den Radiosondendaten (NCEP-DS-Dataset-353/4, 2005) liefert für die Simulationen eine unzureichende Modellinitialisierung, um die meteorologische Situation an den Messstationen wiederzugeben.

Im Intermodellvergleich diagnostiziert das modifizierte MM5 eine um ca. 50-75 Meter tiefer liegende Grenzschichthöhe. Der am Boden verdunstende Wasserdampf verteilt sich somit auf ein geringeres Volumen und führt in der Grenzschicht zu feuchteren Verhältnissen, da der vertikale Austausch über die Grenzschicht hinaus sehr gering ist. Dieses Phänomen zeigte sich systematisch für alle in MM5 zur Verfügung stehenden Grenzschichtparameterisierungen.

4 Advektion chemischer Spurenstoffe

In der Troposphäre bewirken strömungsmechanische und thermodynamische Prozesse die größten für den Menschen täglich zu beobachtenden Veränderungen. Die numerische Simulation der Atmosphäre beinhaltet die Modellierung dieser strömungsmechanischen Prozesse und numerische Behandlung durch Advektionsverfahren.

Die numerischen Verfahren stellen bei der atmosphärischen Modellierung eine mögliche Quelle für Ungenauigkeiten dar. Aufgrund von nichtlinearen Prozessen und Rückkopplungen können selbst geringe Störungen durch numerisch erzeugte Ungenauigkeiten verstärkt werden und sich so weit aufschwingen, bis das Gesamtsystem instabil wird. Für ein numerisches Advektionsverfahren in einem dreidimensionalen regionalen Luftchemiemodell gelten deshalb hohe Anforderungen.

Die Grundanforderung an ein numerisches Verfahren ist Konsistenz und Konvergenz. Konsistenz ist dadurch definiert, dass die numerische Lösung des Verfahrens die analytische Lösung der zugrunde liegenden partiellen Differentialgleichung approximieren muss und zwar umso besser, je kleiner die Gitterabstände in Raum und Zeit gewählt werden. Das *Lax-Richtmeyer Theorem* besagt, dass ein konsistentes Diskretisierungsverfahren genau dann konvergiert, wenn es stabil ist. Ein konsistentes Verfahren ist einfach zu konstruieren. Damit rückt die numerische Stabilität der Diskretisierungsverfahren in den Vordergrund. Grundsätzlich besitzen implizite Diskretisierungsverfahren wesentlich bessere Stabilitätseigenschaften als explizite. Letztere haben aber entscheidende Vorteile vor allem in Bezug auf die numerische Effizienz, die geringere Komplexität bei der softwareseitigen Umsetzung und auch die Parallelisierbarkeit in Bezug auf wissenschaftliches Rechnen. Courant u. a. (1928) haben als erste die Stabilität solcher expliziter Diskretisierungsverfahren untersucht sie haben und für Advektionsprobleme die nach ihnen benannte CFL-Bedingung als bedingtes Stabilitätskriterium für explizite Integrationsverfahren eingeführt (Courant u. a. 1928; Courant und Hilbert 1953; Thomas 1995; Quarterioni und Valli 1994).

Das numerische Integrationsverfahren für die Erhaltungsgleichungen der chemischen Spurenstoffe in MCCM verwendet eine finite Differenz erster Ordnung in der Zeit zusammen mit einem Time-Splitting-Verfahren für Advektion, turbulente Diffusion, chemische Umwandlung, Deposition und Emission. In MCCM ist eine modifizierte Version des MPDATA-Advektionsverfahrens (Multidimensional Positive Definite Advection Transport Algorithm Smolarkiewicz, 1983, 1984; Smolarkiewicz und Clark, 1986; Smolarkiewicz und Grabowski, 1990) für die Advektion der chemischen Spurenstoffe von Grell u. a. (2000) implementiert worden. Zahlreiche Autoren (Chock und Dunker 1983; Chock 1985, 1991; Rood 1987, Dadub und Seinfeld 1994, Bott 1989a, b, 1992, 2003, und Thilmes 1994) haben bereits verschiedene numerische Advektionsverfahren auf deren Eigenschaften hin untersucht und bewertet. Chock (1991) beschreibt dabei wesentliche Schwachstellen des MPDATA-Verfahrens, die in Abhän-

gigkeit der transportierten Gradienten und der Hintergrundkonzentrationen lokale Maxima verstärken und lokale Minima weiter absenken können. Ebenso beschreibt er die Möglichkeit, dass sich kleinskalige Wellen ausbilden können und das Advektionsverfahren ein transportiertes Profil verformt. Das MPDATA ist aufgrund seiner starken numerischen Diffusion nicht in der Lage, starke Gradienten zu erhalten und es ist für die Advektion von Spurenstoffen in mesoskaligen Luftchemiemodellen nur bedingt geeignet (Chock, 1991).

Ziel der vorliegenden Arbeit in diesem Abschnitt ist die Untersuchung der Auswirkungen verschiedener numerischer Advektionsverfahren auf die Verteilung chemischer Spurenstoffe im Luftchemiemodell MCCM. Es liegt die Vermutung nahe, dass in MCCM ein Gradienten erhaltenderes Advektionsverfahren im Vergleich zum MPDATA-Referenzverfahren bessere Übereinstimmungen zwischen den Simulationsergebnissen und Beobachtungen liefert. Diese Hypothese wird durch einen detaillierten Vergleich von simulierten und gemessenen Ozonkonzentrationen an 8 Beobachtungsstationen für Simulationen mit verschiedenen numerischen Advektionsverfahren analysiert.

Aus verschiedenen Publikationen (Chock und Dunker 1983; Chock 1985, 1991; Rood 1987; Dadub und Seinfeld 1994; Bott 1989a, b, 1992, 2003; und Thilmes 1994) wird dazu ein neues dreidimensionales Advektionsverfahren für das MCCM-Modellgitter entwickelt, anschließend für die Advektion der chemischen Spurenstoffe in MCCM implementiert und auf dessen Eigenschaften und die Auswirkungen auf die räumliche und zeitliche Verteilung der Spurenstoffe hin analysiert. Im ersten Teil wird bei der Evaluierung die Qualität der numerischen Advektionsverfahren im dreidimensionalen Modell MCCM für ein isoliertes Advektionsproblem ohne Interaktion mit anderen physikalischen und chemischen Prozessen untersucht werden. Dabei wird ein Testprofil dreidimensional durch das Modellgebiet transportiert und anschließend mit der analytischen Lösung verglichen. Durch die Visualisierung der Unterschiede zwischen numerischer und analytischer Lösung, sowie durch die Berechnung von statistischen Fehlermaßen wird die Qualität der numerischen Advektionsverfahren in MCCM bewertet. Im zweiten Teil werden durch vergleichende Simulationen einer realen Photosmogepisode die Unterschiede in den räumlichen und zeitlichen Spurenstoffverteilungen zum bisherigen Advektionsverfahren erarbeitet. Diese Untersuchungen beinhalten auch eine Evaluierung der Simulationsergebnisse mit Messdaten an ausgewählten Messstationen des bayerischen Landesamtes für Umweltschutz (LfU).

4.1 Spurenstoffadvektion in MCCM und ihre mathematische Modellierung

Das Luftchemiemodell MCCM beruht im Kern auf dem mesoskaligen Meteorologiemodell MM5. Dieses wurde durch die Kopplung mit einem Chemietransportmodell (CTM) um die Erhaltungsgleichungen für die chemischen Spurenstoffe erweitert. Diese Modellgleichungen sind, wie in Abschnitt 2.4 beschrieben, in MM5-Koordinaten formuliert und im MM5-Gitter diskretisiert. MCCM beinhaltet nach Grell u. a. (2000) den RADM-Gasphasenchemiemechanismus mit 63 chemischen Spezies. Der QSSA-Löser behandelt 24 Spezies als quasi stationär, d.h. deren Konzentrationen werden zu jedem Zeitschritt durch den Chemiemechanismus aus den Konzentrationen der restlichen 39 Spezies diagnostisch bestimmt. Somit ergeben sich lediglich

für 39 chemischen Spurenstoffe c_i Erhaltungsgleichungen

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = T_i + D_i + M_i + N_i + E_i \quad i = 1, \dots, 63 \quad (4.1)$$

mit T_i als Advektionsterm, D_i als turbulenter Diffusionsterm, M_i als Umwandlungsterm durch den Chemiemechanismus, N_i als Depositionsterm und E_i als Emissionsterm. Gl. (4.1) werden in MCCM im Gegensatz zum MM5 durch ein Operator-Splitting-Verfahren approximiert. Im Weiteren wird lediglich der entsprechende Operatorsplit-Schritt für die numerische Behandlung des advektiven Transports für einen Spurenstoff c betrachtet. Mit dem Massenmischungsverhältnis für den Spurenstoff $c = \rho_c/\rho_l$ schreibt sich die Gleichung für den Operatorsplit-Schritt der Advektion unter den Einschränkungen aus Abschnitt 2.5 als

$$\rho_0 \frac{\partial c}{\partial t} + \text{div}(c\rho_0\vec{u}) - c \text{div}(\rho_0\vec{u}) = 0 \quad (4.2)$$

Gl. (4.2) schreibt sich in MCCM-Koordinaten (x, y, σ) als

$$\begin{aligned} \frac{\partial(p^*c)}{\partial t} = & -m^2 \left\{ \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{p^*cu}{m} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{p^*cv}{m} \right) \right\} - \frac{\partial(p^*c\dot{\sigma})}{\partial \sigma} \\ & + m^2 c \left\{ \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{up^*}{m} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{vp^*}{m} \right) \right\} + c \frac{\partial(p^*\dot{\sigma})}{\partial \sigma} \end{aligned} \quad (4.3)$$

und vereinfacht erhält man in MM5/MCCM Notation

$$\frac{\partial(p^*c)}{\partial t} = -m^2 \left\{ \frac{\partial \left(\frac{p^*cu}{m} \right)}{\partial x} + \frac{\partial \left(\frac{p^*cv}{m} \right)}{\partial y} \right\} - \frac{\partial(p^*c\dot{\sigma})}{\partial \sigma} + c \text{DIV} \quad (4.4)$$

mit

$$\text{DIV} = m^2 \left\{ \frac{\partial \left(\frac{p^*u}{m} \right)}{\partial x} + \frac{\partial \left(\frac{p^*v}{m} \right)}{\partial y} \right\} + \frac{\partial(p^*\dot{\sigma})}{\partial \sigma}$$

Viele verschiedene numerische Verfahren wurden entwickelt, um Gleichungen wie (4.2) zu integrieren. Diese unterscheiden sich unter anderem hinsichtlich des numerischen Rechengitters, sowie der mathematischen Formulierung der Erhaltungsgleichungen in Advektions- oder Flussform.

Ein numerisches Advektionsverfahren für den Einsatz in einem regionalen Klimachemiemodell sollte die Eigenschaften besitzen, wie sie bereits in Abschnitt 3.2 beschrieben wurden. Die meisten Advektionsverfahren erfüllen bereits einige der genannten Punkte. Es ist allerdings kein Verfahren bekannt, das allen Anforderungen genügt, für verschiedene numerische Gitter anwendbar ist und sich noch mit einem annehmbaren numerischen Aufwand berechnen lässt. Somit muss die Wahl eines geeigneten Verfahrens durch die Anforderungen der Anwendung bestimmt werden.

In Meteorologie- und Luftchemiemodellen haben sich einige Finite-Differenzenverfahren und -Volumenverfahren etabliert und breite Anwendung gefunden. Dies liegt im Wesentlichen an der relativ einfachen Implementierung und der Flexibilität der Verfahren bei der Diskretisierung anderer physikalischer Prozesse, wie der Wolken- und Niederschlagsphysik. Es

wird im Weiteren das numerische Advektionsverfahren MPDATA vorgestellt und detailliert untersucht.

4.1.1 Das Referenzverfahren MPDATA nach Smolarkiewicz

Das Advektionsverfahren in MCCM (Grell u. a., 2000) beruht auf einem für den Einsatz in MCCM modifizierten Verfahren (MPDATA) nach Smolarkiewicz (1984); Smolarkiewicz und Clark (1986); Smolarkiewicz und Grabowski (1990). Es führt für alle inneren Gitterzellen einen Antidiffusionsschritt durch. Alle Randzellen werden ohne diesen Antidiffusionsschritt behandelt. Das Verfahren ohne den Antidiffusionsschritt ist mit dem gewöhnlichen Upstream-Verfahren identisch. Das stark diffusive Upstreamverfahren verhindert unphysikalische numerische Oszillationen, welche in der Nähe von stark emittierenden Quellen durch starke Gradienten auftreten können.

Das Advektionsverfahren nach Smolarkiewicz wird nun für die eindimensionale Transportgleichung (3.2) erklärt. Die Idee des Verfahrens basiert auf einem expliziten Euler-Upstream-Verfahren, wobei die Diffusion des Upstream-Verfahrens durch einen sogenannten Antidiffusionsschritt iterativ verringert oder eliminiert werden soll. Smolarkiewicz (1983) zeigt, dass das Upstream-Verfahren in zweiter Ordnung nicht die Transportgleichung, sondern die um einen Diffusionsterm erweiterte Gleichung

$$\frac{\partial q}{\partial t} = -\frac{\partial(uq)}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left(K \frac{\partial q}{\partial x} \right)$$

approximiert, wobei sich der Diffusionskoeffizient K zu

$$K = \frac{1}{2} (|u|\Delta x - u^2\Delta t)$$

ergibt. Smolarkiewicz (1983) schlägt nun vor, den bei Anwendung des Upstream-Verfahrens zwangsläufig mitberechneten Diffusionsprozess, welcher der Gleichung

$$\frac{\partial q}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(K \frac{\partial q}{\partial x} \right) \quad (4.5)$$

entspricht, umzukehren. Dazu wird Gl. (4.5) formal in eine Transportgleichung

$$\frac{\partial q}{\partial t} = -\frac{\partial u_d q}{\partial x}$$

mit

$$u_d = \begin{cases} -\frac{K}{q} \frac{\partial q}{\partial x} & \text{für } q > 0 \\ 0 & \text{für } q = 0 \end{cases}$$

als Diffusionsgeschwindigkeit umgeschrieben. In einem zweiten Upstream-Advektionsschritt wird nun anstelle der realen Transportgeschwindigkeit u die Antidiffusionsgeschwindigkeit

$$\tilde{u} = \begin{cases} -u_d & \text{für } q > 0 \\ 0 & \text{für } q = 0 \end{cases}$$

verwendet, um die obige Diffusionsgleichung (4.5) umzukehren. Damit schreibt sich das Ver-

fahren als

$$\begin{aligned} q_i^* &= q_i^t - \frac{\Delta t}{\Delta x} [F(q_i^t, q_{i+1}^t, u_{i+1}^t) - F(q_{i-1}^t, q_i^t, u_i^t)] \\ q_i^{t+\Delta t} &= q_i^* - \frac{\Delta t}{\Delta x} [F(q_i^*, q_{i+1}^*, \tilde{u}_{i+1}^t) - F(q_{i-1}^*, q_i^*, \tilde{u}_i^t)] \end{aligned} \quad (4.6)$$

mit

$$\begin{aligned} F_{i+1/2} &= \frac{1}{2} [(u_{i+1/2} + |u_{i+1/2}|) q_i + (u_{i+1/2} - |u_{i+1/2}|) q_{i+1}] \\ \tilde{u}_{i+1/2} &= \frac{(|u_{i+1/2}| \Delta x - u_{i+1/2}^2 \Delta t) (q_{i+1}^* - q_i^*)}{(q_{i+1}^* + q_i^* + \varepsilon) \Delta x} \end{aligned}$$

In der Literatur (Thilmes, 1994) findet man das Verfahren nach Smolarkiewicz oftmals als SMSn bezeichnet, wobei die Zahl n angibt, wie oft die Gleichung (4.6) iteriert wird. Mit steigendem n wächst natürlich der Rechenbedarf für das Advektionsverfahren stark an. Grundsätzlich zeigen numerische Experimente (Thilmes, 1994) dass das SMSn die Diffusion des Upstream-Verfahrens unterdrücken kann. Die Hauptnachteile des SMSn-Verfahrens sind ein erheblicher Phasenfehler, es erzeugt kurze Wellen (Thilmes, 1994) und starke Gradienten werden nur schwach erhalten. Smolarkiewicz (1983) empfiehlt für die praktische Anwendungen des Verfahrens lediglich einen Antidiffusionsschritt durchzuführen, um aus Effizienzgründen den Rechenaufwand zu begrenzen.

In der Einleitung wurden bereits wesentliche Schwachstellen des Verfahrens erwähnt und die Hypothese formuliert, dass ein genaueres Advektionsverfahren für die Spurenstoffadvektion im dreidimensionalen mesoskaligen Luftchemiemodell MCCM wesentliche Unterschiede in der räumlichen und zeitlichen Verteilung der Spurenstoffe bezüglich des Verfahrens nach Smolarkiewicz (1983, 1984) zeigen wird und dass diese Unterschiede ebenfalls Auswirkungen auf die nichtlinearen Prozesse in MCCM haben werden. Das MCCM-Modell mit dem MPDATA-Advektionsverfahren wird im weiteren Verlauf der Evaluierung als Referenzmodell mit MPDATA bezeichnet.

4.1.2 Alternative Advektionsverfahren nach Bott

Es wurden zwei alternative Verfahren zu MPDATA auf der Grundlage von in der Literatur (Chock und Dunker 1983; Chock 1985, 1991; Rood 1987; Dadub und Seinfeld 1994; Bott 1989a, b, 1992, 2003; und Thilmes 1994) veröffentlichten Untersuchungen zu atmosphärischen Advektionsmechanismen ausgewählt. Es handelt sich dabei um die flusslimitierenden Advektionsverfahren nach Bott (1989a, b, 1992, 2003).

Das Advektionsverfahren nach Bott (1989a, b, 1992) ist ein Flussverfahren, das die Flüsse nichtlinear so limitiert, dass positive Definitheit gewährleistet und der Phasenfehler reduziert wird. Diese Art der Flusslimitierung ist auch auf andere Advektionsverfahren übertragbar. Bott (1989b) stellt die flächenerhaltende Flussform vor, die die numerische Diffusion des zugrundeliegenden Upstream-Verfahrens erheblich reduziert. Sie basiert auf einer lagrangschen Polynomannpassung nach Crowley (1968) und Tremback u. a. (1987). Das resultierende Advektionsschema ist stabil, schwach diffusiv, massenerhaltend und positiv definit. Ohne die Flusslimitierung wäre das Verfahren unter der Verwendung von Polynomen zweiter Ordnung auch von Genauigkeit zweiter Ordnung (Bott, 1989a, b). Nach Bott (1992) kann das Verfahren einfach auf eine monotone Version erweitert werden.

Es wird nun das flusslimitierende Verfahren nach Bott unter Verwendung von Polynomen zweiter Ordnung für eine Advektionsgleichung in Flussform

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\operatorname{div}(c\vec{u})$$

vorge stellt werden. Mit der Courant-Zahl

$$c_i = u_i \frac{\Delta t}{\Delta x}$$

wird

$$c_{i+1/2}^{\pm} = \pm \frac{1}{2} (c_{i+1/2} \pm |c_{i+1/2}|)$$

definiert. Damit schreiben sich die Flüsse des Upstream-Verfahrens als

$$F_{i+1/2} = \frac{\Delta t}{\Delta x} (c_{i+1/2}^+ q_i^n - c_{i+1/2}^- q_i^n)$$

und die CFL-Bedingung (Courant u. a., 1928; Courant und Hilbert, 1953; Quarterioni und Valli, 1994) lautet damit

$$c_{i+1/2}^+ + c_{i+1/2}^- \leq 1.$$

Betrachtet man die Gitterzelle i , so wird die kontinuierliche Verteilung von $q(x)$ durch ein Polynom zweiter Ordnung approximiert

$$q_i(x') = \sum_{k=0}^2 \alpha_{i,k} (x')^k$$

mit $-1/2 \leq x' \leq 1/2$ und $x' = (x - x_i)/\Delta x_i$. Bott unterscheidet die positiv definite Version (Bott, 1989a, b) und die monotone Version (Bott, 1989b, 1992):

- Für die positiv definite Version wird für jede Gitterzelle i folgendes Gleichungssystem gelöst

$$\begin{bmatrix} 1 & x'_{i-1} & (x'_{i-1})^2 \\ 1 & x'_i & (x'_i)^2 \\ 1 & x'_{i+1} & (x'_{i+1})^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{i,0} \\ a_{i,1} \\ a_{i,2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} q_{i-1} \\ q_i \\ q_{i+1} \end{bmatrix} \quad (4.7)$$

$$X' \vec{a}_i = \vec{q}_i \quad (4.8)$$

In Bott (1989a) sind für den Fall von äquidistanten Gitterzellen die Koeffizienten $a_{i,0}$, $a_{i,1}$ und $a_{i,2}$ tabelliert, im Fall von nicht-äquidistanten Gitterzellen müssen für die i -Koeffiziententripel $(a_{i,0}, a_{i,1}$ und $a_{i,2})$ genau i lineare Gleichungssysteme der Form (4.7) gelöst werden. Dies muss für ein festes Gitter lediglich einmal berechnet werden und damit lassen sich die i -Polynome $q_i(x')$ für alle Zeitschritte definieren.

- Für die monotone Version des Bott-Verfahrens führt Bott (1989a, b) im Gegensatz zu Crowley (1968) und Tremback u. a. (1987) für die Berechnung der Koeffizienten $\alpha_{i,k}$ die Bedingung ein, dass das Integral von q_i über die Gitterzelle i dem Wert $q_i \Delta x_i$

entspricht:

$$q_i(x')\Delta x_i = \int_{x_{i-1/2}}^{x_{i+1/2}} (\alpha_{i,0} + \alpha_{i,1}x' + \alpha_{i,2}(x')^2) dx'$$

Dies führt auf das Gleichungssystem

$$\begin{bmatrix} x' & \frac{(x'_{i-1})^2}{2} & \frac{(x'_{i-1})^3}{3} \\ x' & \frac{(x'_i)^2}{2} & \frac{(x'_i)^3}{3} \\ x' & \frac{(x'_{i+1})^2}{2} & \frac{(x'_{i+1})^3}{3} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_{i,0} \\ a_{i,1} \\ a_{i,2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} q_{i-1}\Delta x_{i-1} \\ q_i\Delta x_i \\ q_{i+1}\Delta x_{i+1} \end{bmatrix} \quad (4.9)$$

$$X'' \vec{a}_i = \vec{q}_i \quad (4.10)$$

Mit den Definitionen

$$\begin{aligned} I_{i+1/2}^+ &= \int_{1/2-c_{i+1/2}^+}^{1/2} q_i(x') dx' \\ I_{i+1/2}^- &= \int_{-1/2}^{-1/2+c_{i+1/2}^-} q_i(x') dx' \\ I_i &= \int_{-1/2}^{1/2} q_i(x') dx' \end{aligned} \quad (4.11)$$

lässt sich nun der eigentliche Fluss als

$$F_{i+1/2} = I_{i+1/2}^+ - I_{i+1/2}^-$$

berechnen. Dieser Teil des Bott-Verfahrens kann die numerische Diffusion des Upstream-Verfahrens sehr wirksam einschränken. Für Polynome höherer Ordnung wird durch die folgende zusätzliche Bedingung

$$0 \leq I_{i+1/2}^+ + I_{i-1/2}^- \leq \frac{\Delta x_i}{\Delta t} q_i \quad (4.12)$$

gewährleistet, dass der Gesamtfluss aus der Gitterzelle i positiv und nicht größer als der Inhalt $\frac{\Delta x_i}{\Delta t} q_i$ ist. Gleichung (4.12) ist die Flusslimitierung des Bott-Verfahrens. Dazu werden die Flüsse mit einem Faktor $q_i \frac{\Delta x_i}{\Delta t} / I_i$ multipliziert, um danach nichtlinear beschränkt zu werden. Für positive Geschwindigkeiten erreicht man nun positive Definitheit, indem $F_{i+1/2}$ gleich Null gesetzt wird, falls $I_{i+1/2}^+ < 0$ ist, bzw. gleich $\frac{\Delta x_i}{\Delta t} q_i$ gesetzt wird, falls $I_{i+1/2}^+ > I_i$ ist. Werden entsprechende Forderungen auch für negative Geschwindigkeiten formuliert, schreibt sich das Bott-Verfahren als

$$F_{i+1/2} = \left(\frac{i_{i+1/2}^+}{i_i} q_i - \frac{i_{i+1/2}^-}{i_i} q_{i+1} \right) \quad (4.13)$$

mit den Limitierungen

$$\begin{aligned} i_{i+1/2}^+ &:= \max_i \left(0, I_{i+1/2}^+ \right) \\ i_{i+1/2}^- &:= \max_i \left(0, I_{i+1/2}^- \right) \\ i_i &:= \max_i \left(I_i, \frac{\Delta t}{\Delta x_i} I_{i+1/2}^+ + \frac{\Delta t}{\Delta x_i} I_{i-1/2}^- + \varepsilon \right) \end{aligned} \quad (4.14)$$

Dabei ist ε eine sehr kleine positive Zahl, die sicherstellt, dass der limitierte Fluss (4.13) definiert bleibt. Strand und Hov (1993) haben eine einfache Version des Bott-Verfahrens für nichtäquidistante Gitter beschrieben, welche das Gleichungssystem (4.7) bzw. (4.9) für jeden Gitterzellenabstand einer Koordinatenrichtung genau einmal lösen muss. Strand und Hov (1993) zeigen dies für Polynome zweiten Grades durch die Cramersche Regel, welche die linearen Gleichungssysteme mit drei Unbekannten noch explizit beherrscht. Für Polynome höherer Ordnung müssen die resultierenden linearen Gleichungssysteme für jede Koordinatenrichtung numerisch berechnet werden. Li und Chang (1996) haben die Gleichungssysteme explizit gelöst und für Polynome zweiter und vierter Ordnung einen expliziten Formalismus zur Bestimmung der Koeffizienten der Polynome $q_i(x')$ angegeben.

Die Erhaltungsgleichung für einen chemischen Spurenstoff in MCCM wird durch ein Operator-Splitting-Verfahren integriert. Die für den numerischen Advektionstest im dreidimensionalen Modell ausgewählten Bott-Verfahren führen die numerische Berechnung der dreidimensionalen Advektionsgleichung durch ein Time-Splitting-Verfahren für die drei Koordinatenrichtungen durch. Für den horizontalen Transport stehen mehrere eindimensionale Verfahren nach Bott (1989a, b, 1992) zur Verfügung. Es handelt sich dabei um die positiv definiten wie auch monotonen Versionen zweiter und vierter Ordnung. Für den Time-Splitting-Integrationsschritt in vertikaler Richtung wurde analog zur obigen Beschreibung eine Version für das vertikale MCCM-Gitter entwickelt, welche auf Gittern mit einem variablen Gitterabstand basiert. Das resultierende dreidimensionale Bott-Advektionsverfahren ist ein Time-Splitting-Verfahren für das MCCM-Gitter zweiter oder vierter Ordnung. Beide Advektionsverfahren wurden in das regionale Luftchemiemodell MCCM implementiert und stehen optional zur Verfügung. Im Weiteren wird die positiv definite und die monotone Version des Bott-Verfahrens vierter Ordnung verwendet und die MCCM-Modelle wie auch die Simulationen mit den Advektionsverfahren werden entsprechend mit BOTTP (MCCM mit positiv definitem Bott Advektionsverfahren vierter Ordnung) und BOTTM (MCCM mit monotonem Bott Advektionsverfahren vierter Ordnung) bezeichnet.

4.2 Methoden zur Evaluierung der Advektionsverfahren in MCCM

4.2.1 Numerischer Advektionstest im dreidimensionalen regionalen Modell

Um die Qualität der 2 neuen Advektionsverfahren für den advektiven Spurenstofftransport in MCCM zu bewerten, wird zuerst ein numerischer Advektionstest durchgeführt. Bei dem Test wird numerisch ein Transportproblem (wie in Abb. 4.1 dargestellt) simuliert, indem ein fiktives dreidimensionales Profil einer skalaren Information durch das MCCM-Modellgebiet numerisch transportiert wird. Die Ergebnisse der 3 Advektionsverfahren lassen sich im Anschluss mit der analytischen Lösung des Transportproblems vergleichen. Der Vergleich liefert bereits eine erste qualitative Aussage über die Güte der Advektionsverfahren in MCCM.

Zur Evaluierung des Advektionstests werden neben der visuellen Bewertung der Ergebnisse auch die statistischen Größen MDR und AAE verwendet, die für den eindimensionalen

Advektionstest bereits in Gl. 3.15 und 3.16 definiert wurden. Die beiden Größen werden für den in diesem Abschnitt durchgeführten Advektionstest dreidimensional erweitert:

Massenverteilungsrate MDR (mass distribution ratio)

$$MDR = \frac{\sum_{i,j,k}^{n_i, n_j, n_k} (c_{i,j,k}(t_{end}))^2}{\sum_{i,j,k}^{n_i, n_j, n_k} (c_{i,j,k}^a(t_{end}))^2} \cdot 100 \quad (4.15)$$

Durchschnittlicher absoluter Fehler AAE (average absolute error)

$$AAE = \frac{1}{n_i n_j n_k} \sum_{i,j,k}^{n_i, n_j, n_k} |c_{i,j,k}(t_{end}) - c_{i,j,k}^a(t_{end})| \cdot 100 \quad (4.16)$$

mit $c(t_{end})$ als die simulierte Spurenstoffverteilung durch den advektiven Transport zum Ende der Simulationszeit t_{end} , c^a ist die entsprechende analytische Lösung des Transportproblems.

Die Massenverteilungsrate MDR eignet sich z. B. zur Bewertung der Diffusivität eines Verfahrens. Sie wird klein, wenn diffusive Effekte die Verteilung dämpfen und reagiert durch die Quadrierung der Residuen empfindlich auf das Vorhandensein großer Werte. Der durchschnittliche absolute Fehler AAE ist ein Maß für die Verzerrung der Verteilung. Er wächst z. B. durch das Auftreten von Oszillationen oder durch einen Phasenfehler stark an.

4.2.2 Methoden zur Evaluierung von regionalen Luftchemiesimulationen

Das Modellgebiet und die Simulationsparameter zur Modellevaluierung sind in Abbildung 2.2 und in Tabelle 4.1 beschrieben. Zur Modellierung der antropogenen Emissionen primärer Luftschadstoffe wurde ein Emissionskataster basierend auf dem Jahr 2000 vom Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER) der Universität Stuttgart (Friedrich u. a., 2002, 1999) verwendet. Die Emissionen liegen dabei differenziert nach Emissions-

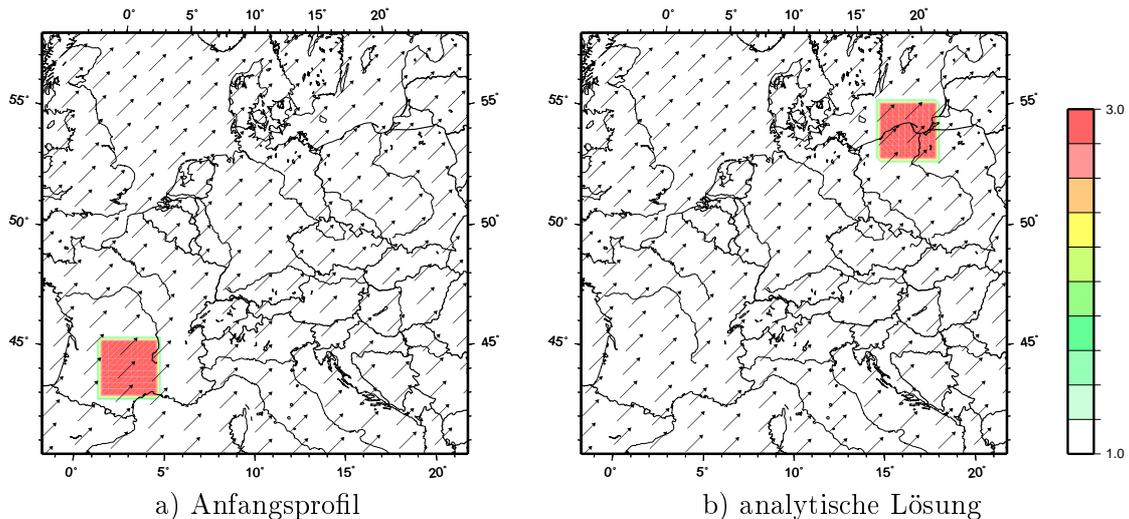
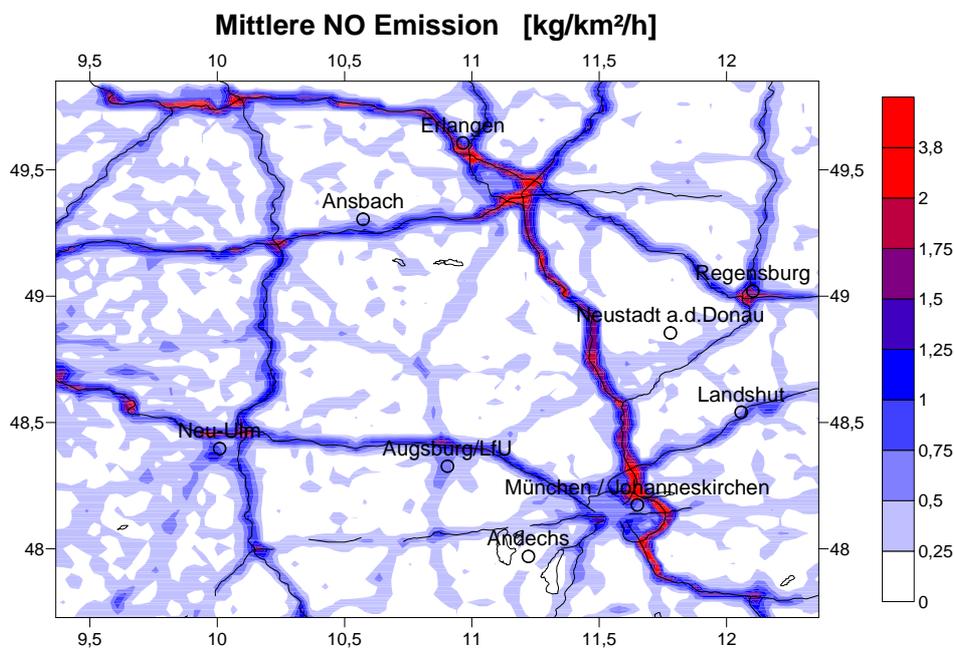


Abbildung 4.1: Horizontalschnitte durch a) das Anfangsprofil und durch b) die analytische Lösung nach 36 Stunden. Das horizontale Geschwindigkeitsvektorfeld wurde zur Darstellung ausgedünnt.

Tabelle 4.1: Simulationsparameter zum Modellvergleich

Modellgebiet	Auflösung [km]	Modellgitter	Vertikalschichten	Domaingröße
Domain D1	54	64 x 66	25	12 317 184 km ²
Domain D2	18	64 x 64	25	1 327 104 km ²
Domain D3	6	64 x 64	25	147 456 km ²
Domain D4	2	115 x 106	25	48 760 km ²

**Abbildung 4.2:** Interpolierte räumliche Verteilung der mittleren täglichen NO -Emission in $kg/km^2/h$ im Domain D4 mit der Lage der LfU-Messstationen.

klassen in stündlicher Auflösung für die 7 Wochentage vor. Die Emissionsdaten wurden durch ein geographisches Informationssystem aufbereitet und von ihrer räumlichen Auflösung von 2 km für Deutschland und von 10 km für Europa auf die MCCM-Modellgitter transformiert. Die Domains D1 und D2 verwenden dazu den Europadatensatz in 10 km Auflösung. Für Domain D3 wurden die beiden Emissionsdatensätze für das Modellgebiet verschnitten. Alle Gitterzellen innerhalb Deutschlands verwenden den hochaufgelösten 2 km Datensatz und die restlichen Gitterzellen greifen auf den 10 km Datensatz für Europa zurück. Die Emissionen für das Domain D4 basiert vollständig auf dem 2 km Datensatz. Abb. 4.2 zeigt beispielhaft die räumliche Verteilung der gemittelten täglichen NO -Emission für das Domain D4 in $kg km^{-2} h^{-1}$. Die Emissionen aus Flächenquellen werden als Flussrandbedingung für die unterste Modellschicht modelliert. Die Emissionen aus Punktquellen im Modellgebiet - z.B. aus hohen Schornsteinen in das Modellgebiet emittiert - werden als Quellterme direkt an den entsprechenden Gitterpunkten berücksichtigt.

Für die Validierung der regionalen Simulationen wurden Ozon-Messungen der Luftschadstoffmessstationen des *Bayerischen Landesamtes für Umwelt* (LfU) herangezogen. Abb. 4.2 zeigt die Lage der Stationen im Untersuchungsgebiet. Die Ozon-Messstationen wurden unter Berücksichtigung einer Richtlinie des US-EPA (US-EPA-454R98002, 1998) ausgewählt und erfüllen die Kriterien zur Validierung von Modellergebnissen anhand von Stationsmessdaten.

Messstationen zur Luftqualitätsüberwachung, die für Vergleiche mit Simulationsrechnungen geeignet sind, dürfen nicht an besonders stark belasteten Expositionen, wie z.B. Straßen mit hohem Verkehrsaufkommen oder Industriegebiete mit starken Emissionsquellen platziert sein. Der Grund dafür ist, dass solche Messstationen räumlich sehr spezifische Punktmessungen liefern, während die Simulationsrechnungen Mittelwerte einer Modellgitterzelle mit einer räumlichen Auflösung von 2 mal 2 Kilometer Grundfläche für D4 und von 6 mal 6 Kilometer Grundfläche für D3 und einer jeweiligen Zellenhöhe in Bodennähe von ca. 40 Metern repräsentieren. Daher ist darauf zu achten, dass nur solche Stationen verwendet werden, deren Messungen als Durchschnittswerte für Gebiete gelten können, die in ihrer Ausdehnung mit der Modellskala vergleichbar sind. An den Ozon-Messstationen sind lediglich für Augsburg und für München-Johanneskirchen zusätzlich NO_x -Messungen über den simulierten Zeitraum verfügbar. Diese Messungen sind allerdings nur bedingt verwendbar, da sie oben diskutierte Kriterien nicht uneingeschränkt erfüllen.

Graphische Modellevaluierung

Die in dieser Arbeit verwendeten grafischen Verfahren zur Bestimmung der Modellgüte sind:

Zeitreihenplots: Vergleich von simulierten und gemessenen Ozon-Tagesgängen an ausgewählten Messstationen über die Gesamtperiode.

Scatterplots: Gegenüberstellung von simulierten und gemessenen Ozon-Tagesmaxima und der täglichen 8-Stundenmittelwerte (jeweils von 10:00 - 18:00 Uhr Ortszeit). (Die Gesamtperiode liefert mit 2976 halbstündlichen Werten zu viele Datenpunkte für den Scatterplots.)

Quantile-Quantile-Plots: Dazu werden die simulierten bzw. gemessenen Konzentrationen aus den Zeitreihen als Verteilung betrachtet und in gleich große Gruppen aufgeteilt. Hier entspricht jede Quantile (oder in diesem Fall Perzentile) 1 % der Gesamtdatenmenge (100 Teile pro Zeitreihe). Das Quantile Q_{95} (Perzentil P_{95}) gibt z.B. die Ozon-Konzentration an, unterhalb deren 95 % aller Punkte der Verteilung liegen (und 5 % der Punkte liegen darüber). Das Quantile ist unabhängig von den tatsächlichen Werten, die über der Quantile-Grenze liegen.

Der Quantile-Quantile-Plot (Q-Q-Plot) stellt die simulierten Quantilen auf der y-Achse gegen die Quantilen der jeweiligen Messstation auf der x-Achse als Scatterplot gegenüber. Wenn die simulierte Verteilung der gemessenen Verteilung entspricht, so sollten diese Punkte auf der Diagonalen $y = x$ liegen. Damit lassen sich für Ozon-Konzentration z.B. Aussagen über die Höhe und die Verteilung des Modellbias der Mechanismen ableiten.

Statistische Modellevaluierung

Eine weitere US-EPA-Richtlinie (US-EPA-450/4-91-1013, 1991) beschreibt grundlegende statistische und graphische Verfahren zur Bestimmung der Güte eines Simulationsmodells (siehe auch *Atmospheric Environment* Volume 40, Issue 26, August 2006; Special Issue on Model Evaluation: Evaluation of Urban and Regional Eulerian Air Quality Models). Zusätzlich

Tabelle 4.2: Statistische Maßzahlen zur Bestimmung der Güte eines regionalen Modells durch Vergleich von Simulation und Beobachtung

Name	Mathematische Definition
Mean bias (MB)	$MB = \frac{1}{N} \sum_1^N (\text{Modell} - \text{Beobachtung})$
Mean normalized bias error (MNBE)	$MNBE = \frac{1}{N} \sum_1^N \frac{\text{Modell} - \text{Beobachtung}}{\text{Beobachtung}} \cdot 100\%$
Mean fractionalized bias (MFB)	$MFB = \frac{1}{N} \sum_1^N \frac{\text{Modell} - \text{Beobachtung}}{(\text{Modell} + \text{Beobachtung})/2} \cdot 100\%$
Mean absolute gross error (MAGE)	$MAGE = \frac{1}{N} \sum_1^N \text{Modell} - \text{Beobachtung} $
Mean normalized gross error (MNGE)	$MNGE = \frac{1}{N} \sum_1^N \frac{ \text{Modell} - \text{Beobachtung} }{\text{Beobachtung}} \cdot 100\%$
Normalized mean error (NME)	$NME = \frac{\sum_1^N \text{Modell} - \text{Beobachtung} }{\sum_1^N \text{Beobachtung}} \cdot 100\%$
Normalized mean bias (NMB)	$NMB = \frac{\sum_1^N (\text{Modell} - \text{Beobachtung})}{\sum_1^N \text{Beobachtung}} \cdot 100\%$
Root mean square error (RMSE)	$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_1^N (\text{Modell} - \text{Beobachtung})^2}$

Modell: Simulationsergebnis für die Modellgitterzelle; Beobachtung: Messwert an der LfU-Messstation

werden in dieser Arbeit neben den dort empfohlenen statistischen Maßzahlen noch weitere verwendet (Jimenez u. a., 2006). Shaocai u. a. (2006) diskutieren die Qualität verschiedener statistischer Maße zur Evaluierung von Luftchemiemodellen. Die verwendeten Größen sind in Tabelle 4.2 beschrieben. Zur Untersuchung des Zusammenhangs zweier Zeitreihen wird der Korrelationskoeffizient herangezogen. Der Korrelationskoeffizient als dimensionsloses Maß für den Grad des linearen Zusammenhangs zwischen zwei zeitgleichen Wertemengen $x_1, x_2, x_3, \dots, x_n$ und $y_1, y_2, y_3, \dots, y_n$ (z.B. simulierte und gemessene Zeitreihe der Ozonkonzentration) ist durch

$$r = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \cdot \sqrt{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad (4.17)$$

mit $\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i$ und $\bar{y} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i$ gegeben.

Für die diagnostische Evaluierung wird von Arnold u. a. (2003) insbesondere das Verhältnis zwischen $[O_3]$ und $[NO_x]$ zur Bestimmung der O_3 -Modellierungsgüte empfohlen. Dieser Wert ist besonders geeignet, da NO_x als Messwert an wesentlich mehr Messstationen verfügbar ist

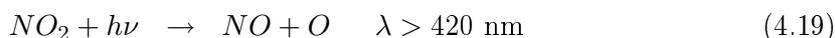
als z.B. H_2O_2 oder HNO_3 , die von anderen Autoren (Sillman 1995 und Sillman u. a., 1997) zur Berechnung komplexerer Maßzahlen verwendet werden.

4.2.3 Untersuchung der Auswirkungen auf eine Photosmogepisode

Es werden aufgrund der verschiedenen Advektionsverfahren erhebliche Auswirkungen auf die Verteilung von primären und sekundären Luftschadstoffen erwartet. Dazu werden neben den Ozonkonzentrationen auch die NO - und NO_2 -Konzentrationen sowie das photostationäre Gleichgewicht betrachtet.

Für die Evaluierung der regionalen dreidimensionalen Simulationen ist ein Vergleich der Ozonkonzentrationen nicht aussagekräftig genug, da diese nichtlinearen physikalischen und chemischen Prozesse unterliegen. Deshalb werden zuerst einige zum Verständnis der troposphärischen Photochemie grundlegende Prozesse erläutert, die für die weitere Evaluierung der Luftchemiesimulationen von Bedeutung sind.

Zunächst wird das photostationäre Gleichgewicht (Jacobson, 1999) betrachtet, welches besagt, dass Stickstoffmonoxid (NO), Stickstoffdioxid (NO_2) und Ozon (O_3) in der Troposphäre bei Tageslicht ein Gleichgewicht annehmen (sofern keine weiteren chemischen Prozesse betrachtet werden):



Angenommen Reaktion 4.18 hat die Ratenkonstante k_1 und Reaktion 4.19 die Photolysefrequenz J so lässt sich aus Reaktion 4.18 bis 4.20 für NO_2 folgende Differentialgleichung schreiben:

$$\frac{d[NO_2]}{dt} = k_1[NO][O_3] - J[NO_2] \quad (4.21)$$

Wenn die Änderungsrate für die NO_2 -Konzentration $d[NO_2]/dt$ im Vergleich zu denen von NO und O_3 sehr viel geringer ist und man somit annimmt, dass NO_2 sich annähernd im Gleichgewicht befindet, dann reduziert sich Reaktion 4.21 zu

$$[O_3] = \frac{J[NO_2]}{k_1[NO]} \quad (4.22)$$

Gleichung 4.22 bezeichnet man auch unter den gemachten Annahmen als das *Photostationäre Gleichgewicht*. Dies besagt unter den gemachten Annahmen lediglich, dass sofern in der freien Troposphäre die Konzentrationen von zwei der Spurenstoffe aus Gl. 4.22 bekannt sind, sich die des Dritten nach Gl. 4.22 berechnet werden können.

Die Bildung des anthropogenen Ozons in der Troposphäre erfolgt über komplexe photochemische Prozesse. Die wesentlichen Grundprozesse sind in den Gleichungen 4.18 bis 4.20 aufgeführt. In Bezug auf diese chemischen Reaktionen ist grundsätzlich darauf hinzuweisen, dass im Verlauf der Reaktionen Ozon sowohl gebildet als auch zerstört wird. Die Bildung des troposphärischen Ozons erfolgt durch die photochemische Zersetzung von Stickstoffdioxid unter

der Einwirkung energiereicher Sonneneinstrahlung (Gl. 4.19) und der nachfolgenden Reaktion des atomaren Sauerstoffs mit einem Sauerstoffmolekül zu Ozon (Gl. 4.20). In Abwesenheit weiterer Reaktanten in der Atmosphäre wird das gebildete Ozon durch die Rückreaktion (Gl. 4.18) mit Stickstoffmonoxid weitgehend wieder abgebaut. Ohne weitere Reaktionspartner würde sich in dieser Reaktionskette also *photostationäres Gleichgewicht* gemäß Gl. 4.22 einstellen. Nachdem aber die Außenluft, insbesondere im Bereich von Ballungsgebieten aus einem Gemisch von reaktionsfähigen Spurengasen besteht, kommt es zu einer Vielzahl weiterer chemischer Reaktionen. Von entscheidender Bedeutung ist die schnelle Oxidation des in dieser Reaktionskette gebildeten NO zu NO_2 , das dann für die erneute Ozonbildung zur Verfügung steht. Diese Oxidation wird im Wesentlichen durch Peroxiradikale bewerkstelligt, die auf diese Weise eine zentrale Rolle spielen. Gebildet werden sie durch die Reaktion flüchtiger organischer Verbindungen (VOC) mit OH -Radikalen nach Anlagerung von Luftsauerstoff. Daraus kann sich wiederum Ozon bilden, das NO aufoxidieren kann u.s.w. Der Prozess kommt zum Erliegen, wenn die Intensität der Sonneneinstrahlung zum Abend hin geringer wird. In den Ballungsgebieten wird dann das Ozon durch das aus anthropogenen Emissionsquellen (z.B. dem Kfz-Verkehr) emittierten NO weitgehend abgebaut. Der rasche Reaktionsverlauf bei der Oxidation von emittiertem NO zu NO_2 hat auch zur Folge, dass dieser Prozess vorwiegend in Emittentennähe, z.B. im Nahbereich verkehrsbelasteter Straßen abläuft und das emittierte NO damit kaum großräumigen Transportprozessen unterliegt. Bei Wetterlagen mit hoher und intensiver Sonneneinstrahlung ergibt sich somit tagsüber eine O_3 -Produktion und abends und nachts wird O_3 bei vorhandenen NO -Konzentrationen wieder abgebaut.

4.3 Dreidimensionaler Advektionstest im regionalen Modell

Wie bereits erwähnt, gibt es in der Literatur unzählige Arbeiten über die Qualität von ein- und zweidimensionalen numerischen Advektionsverfahren. Die meisten Verfahren beziehen sich auf die Advektionsgleichung in Flussform für gleichförmige (strukturierte) numerische Gitter. Aufgrund des transformierten Koordinatensystems von MCCM, der Pseudoflussformulierung der Advektion und der variablen Schichtdicken in vertikaler Koordinatenrichtung lassen sich diese Erkenntnisse aus der Literatur nicht eins zu eins übertragen. Es wurde deshalb ein Advektionstest im isolierten dreidimensionalen Modell definiert, welcher bereits auf den transformierten MCCM-Erhaltungsgleichungen (4.4) in den massenbehafteten Koordinaten aufsetzt. Die Simulation berücksichtigt ausschließlich die Advektion der chemischen Spurenstoffe in MCCM und alle übrigen chemischen und physikalischen Prozesse werden nicht berücksichtigt. Es wird damit lediglich der Operatorsplit-Schritt der Advektion berechnet.

Es wurde mit den drei MCCM-Varianten MPDATA, BOTTP und BOTTM ein dreidimensionaler Advektionstest durchgeführt. Dabei wurde für einen chemischen Spurenstoff ein quaderförmiges Gebiet, bestehend aus horizontal 9 mal 9 und vertikal 5 Gitterzellen mit dem Wert 3,0 initialisiert, während der Hintergrundwert auf 1,0 gesetzt wird. Als Transportgeschwindigkeit verwendet das Modell ein künstliches Windfeld, das im Gesamtgebiet mit $u = 10 \frac{m}{s}$, $v = 10 \frac{m}{s}$ und $w = 0 \frac{m}{s}$ initialisiert wird. In einem im Modellgebiet zentrierten, 30 Gitterzellen breiten Band, wird eine Vertikalgeschwindigkeit in Form einer Sinuswelle aufgebracht, die im Maximum $0,0025 \frac{m}{s}$ erreicht. Das resultierende Geschwindigkeitsfeld ist

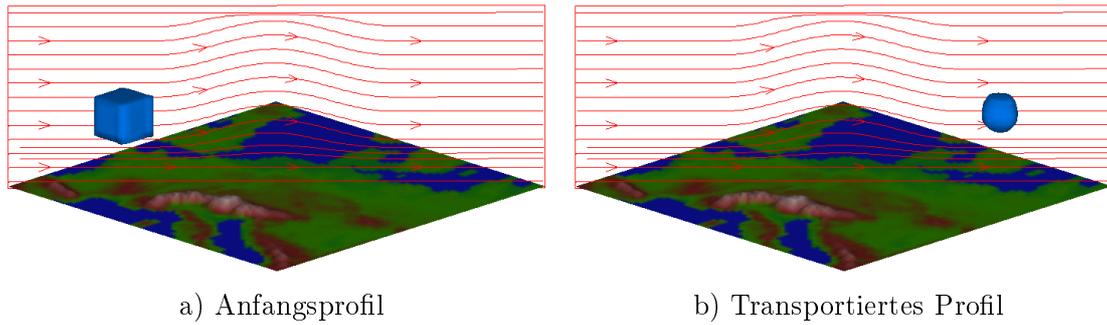


Abbildung 4.3: Referenzsimulation mit MPDATA: a) Volumenansicht des quaderförmigen Anfangsprofils mit dem Wert 3,0 zusammen mit dem Vertikalschnitt des Geschwindigkeitsfeldes; b) transportiertes Profil nach 36 Stunden

lokal nicht mehr divergenzfrei. Das Anfangsprofil wird in der Simulationszeit von 36 Stunden (entspricht 1440 Zeitschritte) genau 40 Gitterzellen nach Osten und nach Norden transportiert. Der Zeitschritt beträgt $\Delta t = 90$ Sekunden, die Gitterweite $\Delta x = 27000$ Meter und die daraus resultierenden horizontalen Courantzahlen $c_u = 1/30$ und $c_v = 1/30$. Für das Transportproblem kann somit die analytische Lösung bestimmt werden. In Abb. 4.1 ist ein horizontaler Schnitt der Anfangsbedingung, sowie der analytischen Lösung des Transportproblems dargestellt und Abb. 4.3 illustriert für die Referenzsimulation mit dem MPDATA das Transportproblem in einer dreidimensionalen Ansicht. In den Teilabbildungen ist ein Vertikalschnitt durch das Geschwindigkeitsfeld dargestellt. Ebenfalls wird in a) das Anfangsprofil als Volumenansicht des Quaders mit dem Wert 3,0 und in b) das resultierende transportierte dreidimensionale Profil als Volumenansicht des Gebietes mit dem Wert 3,0 nach 36 Stunden gezeigt. Der Hintergrundwert beträgt 1,0, sodass zwischen Testprofil und Hintergrund ein ausreichend großer Gradient entsteht.

Die Ergebnisse der Simulationen sind in Abb. 4.4 als Horizontalschnitte für die Differenzen zwischen analytischer und numerischer Lösung dargestellt. Es zeigt sich in Abb. 4.4 a), dass das Advektionsverfahren in der MPDATA-Simulation einen positiven Phasenfehler erzeugt, da das transportierte Profil einige Gitterzellen weiter transportiert wurde als die analytische Lösung. Weiter ist durch die Diffusion des Verfahrens die Quaderform des Anfangsprofils kaum mehr zu erkennen, wie bereits zuvor die Abb. 4.3 gezeigt hat. Betrachtet man die Gestalt des transportierten Profils für MPDATA, so zeigt es eine kugelhähnliche Form mit einem inneren Maximum von 3,69. Der Anfangswert des Quaders (3,0) wird um 23,1% überschritten. Abb. 4.5 zeigt Vertikalschnitte durch die transportierten Profile und durch die Differenzen zwischen analytischer und numerischer Lösung bezüglich des Modellgitters. Es sind dabei lediglich die entsprechenden 20 horizontalen Gitterzellen in x-Richtung (Gitterzellen 45 bis 65) und die 25 vertikalen σ -Schichten dargestellt. Hier ist der positive Phasenfehler durch ein deutlich weiter transportiertes Profil und die starkte numerische Diffusion durch die kugelhähnliche Gestalt im Vergleich zum Anfangsprofil deutlich zu erkennen.

Für die BOTTM-Simulation zeigen die Abb. 4.5 und 4.5 einen erkennbaren aber im Vergleich zum MPDATA wesentlich geringeren positiven Phasenfehler. Das Advektionsverfahren erhält die quaderförmige Gestalt des Anfangsprofils wesentlich besser. Es zeigen sich aufgrund der geringen numerischen Diffusion des Verfahrens, abgerundete Kanten für das transportier-

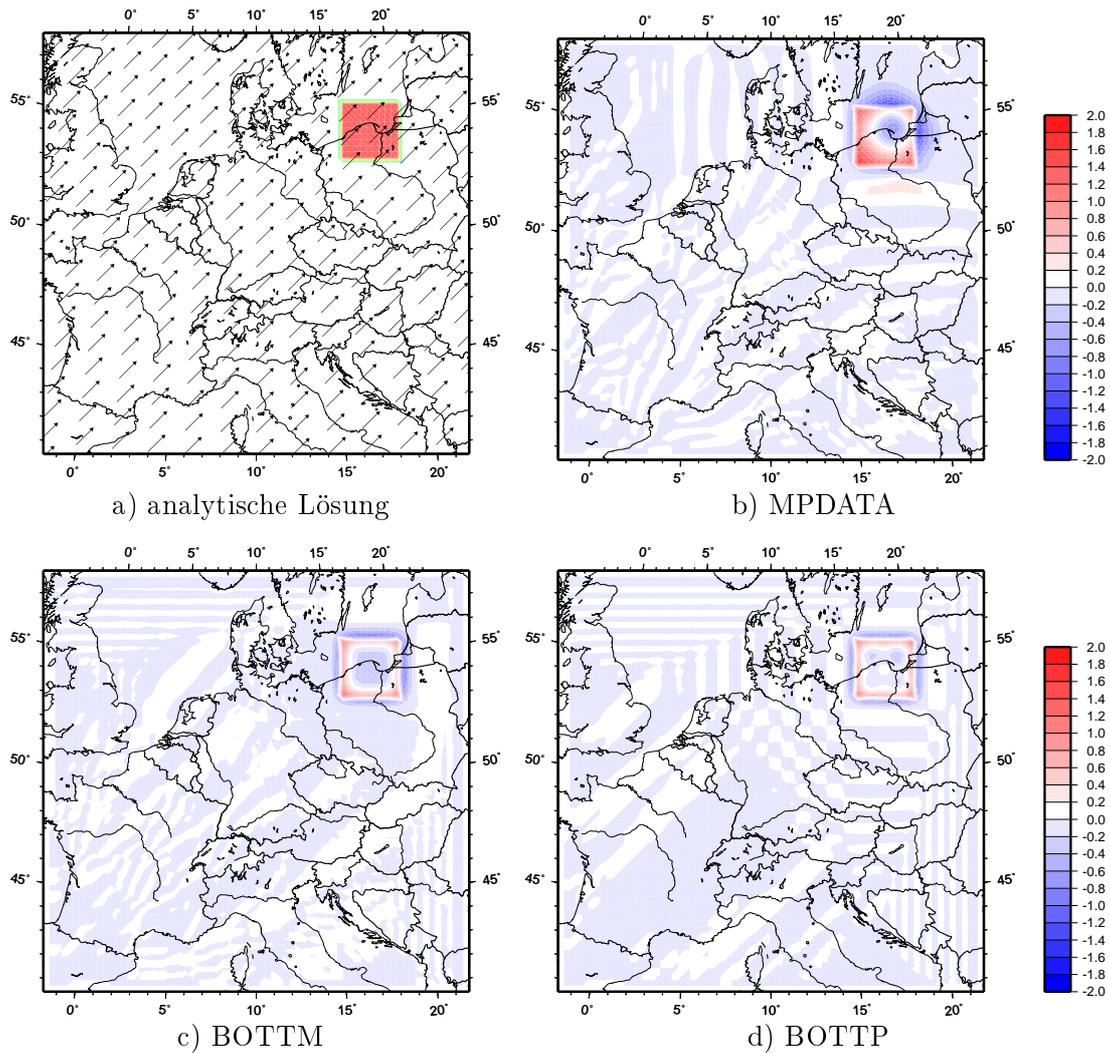


Abbildung 4.4: MCM-Advektionstest: a) analytische Lösung; Horizontaler Schnitt der Differenzen zwischen analytischer und numerischer Lösung: a) MPDATA, b) BOTTM und c) BOTTP4

te Profil in der numerischen Lösung, vor allem in den Ecken. Diese Diffusion ist aber weit geringer als beim MPDATA. Die quaderförmige Anfangsgestalt des transportierten Profils ist wesentlich besser zu erkennen. Das Maximum des transportierten Profils liegt mit 3,35 lediglich 11,7 % über dem Wert des Anfangsprofils. Durch das nicht divergenzfreie dreidimensionale Geschwindigkeitsfeld bleibt das transportierte Profil nicht monoton.

Die BOTTP-Simulation zeigt in den dargestellten Abbildungen die besten Ergebnisse. Es ist kein Phasenfehler erkennbar. Erwartungsgemäß erhält das positiv definite Bott-Verfahren die starken Gradienten des transportierten Profils wesentlich besser, als die beiden anderen Verfahren. Die Form des transportierten Profils ist nahezu vollständig erhalten geblieben und es sind kaum Einflüsse aufgrund numerischer Diffusion erkennbar. Es zeigen sich die lokalen Maxima nicht wie beim MPDATA und BOTTM in der Mitte, sondern an den Rändern des transportierten Profils in Abb. 4.5 durch das Überschießen des Advektionsverfahrens an starken Gradienten. Das Maximum des transportierten Profils liegt mit 3,33 lediglich 11,0 % über dem Wert des Anfangsprofils.

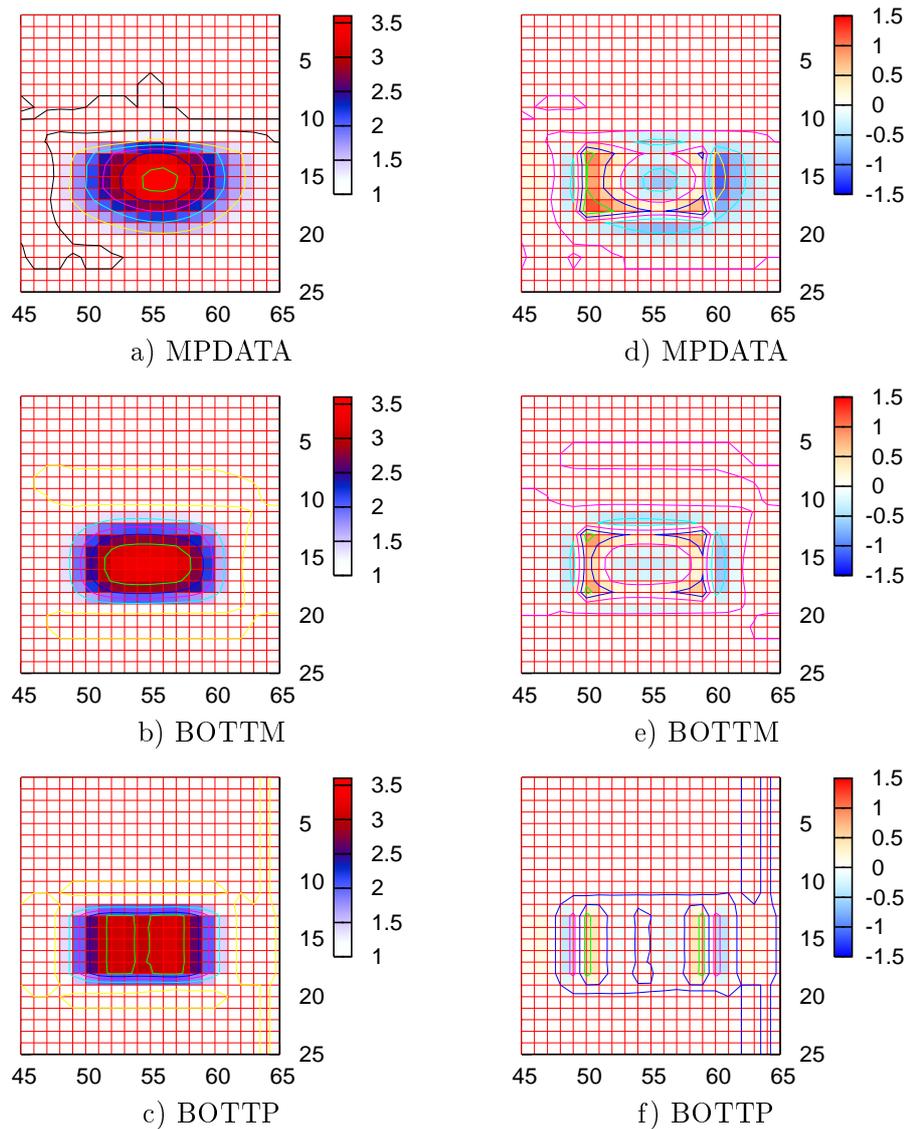


Abbildung 4.5: Linke Spalte: Vertikalschnitt durch die Mitte des numerisch transportierten Profils; Rechte Spalte: Vertikalschnitt des Profils der Differenzen zwischen analytischer und numerischer Lösung; Dargestellt sind die Gitterzellen von 45 - 65 in x-Richtung und von 1-25 in vertikaler Richtung (MCCM-Orientierung von oben nach unten).

Die Maßzahlen MDR und AAE für die statistische Bewertung der Güte der Advektionsverfahren sind in Tab. 4.3 zusammengefasst. Diese Maßzahlen liegen aufgrund des hohen Hintergrundwertes von 1,0 sehr eng beieinander. Die Massenverteilungsrates bestätigt die Beobachtungen und zeigt für die BOTTP-Simulation die beste Übereinstimmung mit der analytischen Lösung und für den durchschnittlichen absoluten Fehler den geringsten Wert. Um die Maßzahlen zu entzerren wurde mit der gleichen Konfiguration ein zweites Experiment durchgeführt, wobei für das Profil ein Wert von 2,0 bei einem Hintergrundwert von 0,01 verwendet wurde. Durch den sehr geringen Hintergrundwert werden die Maßzahlen herunterskaliert und sind damit wesentlich aussagekräftiger. Die Maßzahlen für das zweite Advektionsexperiment sind in Tab. 4.4 dargestellt. Die resultierenden Profile zeigen keine neuen Erkenntnisse.

Das numerische Experiment hat bereits den ersten Teil der Hypothese bestätigt und deutliche Unterschiede durch die Advektionsverfahren in den transportierten Profilen gezeigt.

Tabelle 4.3: Dreidimensionaler Advektionstest in MCCM: MDR und AAE für die Simulationen mit MPDATA, BOTTP und BOTTM mit Anfangsprofil von 3,0 und Hintergrundwert von 1,0

Modell	MDR [%]	AAE [%]	Maximalwert	Abweichung [%]
MPDATA	99,14	1,01	3,64	23,10
BOTTM	99,50	0,73	3,36	11,87
BOTTP	99,93	1,32	3,33	10,93

Tabelle 4.4: Dreidimensionaler Advektionstest mit Anfangsprofil von 2,0 und Hintergrundwert von 0,01: MDR und AAE für MPDATA, BOTTP und BOTTM

Modell	MDR [%]	AAE [%]	Maximum	Abweichung [%]
MPDATA	55,99	0,87	2,69	34,45
BOTTM	69,61	0,61	2,34	17,20
BOTTP	81,66	0,38	2,33	16,35

Das Referenzmodell MPDATA erzeugt aufgrund seiner Diffusivität aus dem quaderförmigen Anfangsprofil eine kugelhähnliche Gestalt und transportiert das Profil mit einem nicht unerheblichen positiven Phasenfehler. Das numerische Advektionsexperiment favorisiert das BOTTP Verfahren für die Behandlung der Advektion, da dieses Verfahren keinen erkennbaren Phasenfehler zeigt und die Gestalt des quaderförmigen Anfangsprofils in der numerischen Lösung erhalten bleibt. Auch die Maßzahlen für die Gütebewertung der Verfahren in Tab. 4.3 und 4.4 zeigen für das BOTTP-Verfahren die besten Ergebnisse.

Die gezeigten Unterschiede in der Advektion werden in einer realen MCCM-Simulation durch die nichtlinearen physikalischen und chemischen Prozesse und deren Rückkopplungen starke Auswirkungen auf die Spurenstoffverteilungen in MCCM haben, welche sicherlich nicht vernachlässigt werden können.

4.4 Auswirkungen der Spurenstoffadvektion in MCCM

Um die Auswirkungen der verschiedenen Advektionsverfahren auf die Spurenstoffverteilung in MCCM zu untersuchen und zu quantifizieren, wurde eine Photosmogepisode wie in Abschnitt 5.3 beschrieben vom 29.07. - 07.08.03 mit den 3 Advektionsverfahren in MCCM simuliert. Im Einzelnen wurden dabei zwei Schwerpunkte betrachtet:

- **Untersuchungsschwerpunkt I: Simulation einer Abluftfahne**

In Abschnitt 4.4.1 werden die 3 Advektionsverfahren im Hinblick auf die hochaufgelöste Simulation einer Abluftfahne getestet. Dabei werden die simulierten Luftschadstoffverteilungen von Kohlenmonoxid (CO) im Lee-Bereich einer industriellen Emissionquelle betrachtet und miteinander verglichen. CO reagiert in der Troposphäre sehr langsam mit anderen Spurengasen. Es eignet sich dadurch und aufgrund von hohen anthropogenen CO -Emissionen sehr gut als passiver Tracer für den Advektionstest.

- **Untersuchungsschwerpunkt II: Regionale Luftchemiesimulation**

In Abschnitt 4.4.2 wurde die Modellkaskade ineinander genesteter Domains D1 bis D4 jeweils mit den drei Advektionsverfahren simuliert. Durch die Nestung werden sich

Unterschiede in den Spurenstoffverteilungen in dem jeweils übergeordneten Domains durch die aus den Ergebnissen erzeugten Rand- und Anfangsbedingungen für die nachfolgenden Domains mit höherer räumlicher Auflösung auswirken. Die Unterschiede in den Spurenstoffverteilungen ergeben sich somit nicht nur aus den verschiedenen Advektionsverfahren im jeweiligen Domain, sondern werden über die Rand- und Anfangsbedingungen auch ganz wesentlich durch die Nestung beeinflusst.

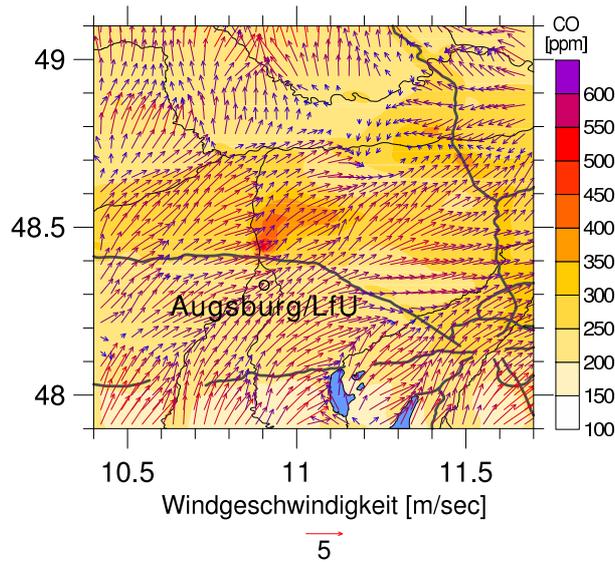
Somit lassen sich die Auswirkungen der Advektionsverfahren auf die Spurenstoffverteilungen im Inter-Modellvergleich und im Vergleich mit Messungen an den 8 Messstationen des LfU bestimmen. Zur Evaluierung werden die in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Methoden angewendet.

4.4.1 Spurenstoffverteilung in einer Abluftfahne

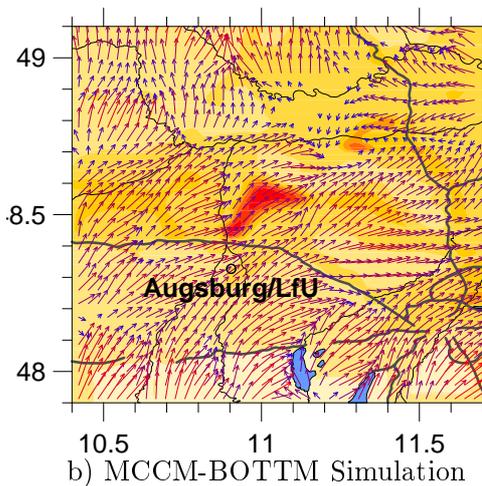
Der numerische Advektionstest in Abschnitt 4.3 zeigte bereits die unterschiedliche Qualität der Advektionsverfahren für den Spurenstofftransport aufgrund der deutlichen Qualitätsunterschiede im Hinblick auf die Gradientenerhaltung sind entsprechend deutliche Unterschiede vor allem in der Nähe der Emissionsquellen zu erwarten. Dazu wird zunächst eine Abluftfahne aus industriellen Emissionen betrachtet. Hier ist vor allem die Kohlenmonoxidemission von Interesse, da CO in der Troposphäre als inert betrachtet werden kann und somit Einflüsse durch chemische Reaktionen keinen Einfluss auf die Spurenstoffverteilung haben.

Abb. 4.6 zeigt eine Momentaufnahme (30. Juli 2003, 4:30 Uhr) der bodennahen CO -Verteilung für die Region Augsburg mit einer deutlichen Abluftfahne aus industriell emittiertem CO aus einer sehr starken CO -Emissionspunktquelle, nördlich von Augsburg im Bereich der A8 gelegen. Die Abluftfahne der Autobahn A8 zwischen Ulm - Augsburg und München ist ebenfalls zu erkennen. Die Anströmung der Emissionsquellen wechselt dabei zwischen ca. 3:00 Uhr von aus südöstlicher Richtung auf Süd bis Süd-West. Die in Abb. 4.6 a) dargestellte Abluftfahne zeigt einen sehr starken diffusiven Einfluss, da die CO -Emission bereits auf mehrere Gitterzellen verteilt ist und lokale Gradienten nur unmittelbar an der Emissionsquelle zu erkennen sind. Betrachtet man im Gegensatz dazu die Abluftfahnen der Simulationen mit den Bott-Advektionsverfahren in Abb. 4.6 b) und c), so liefern die Simulationen mit den neuen Advektionsverfahren deutlich ausgeprägtere Abluftfahnen. Die sehr starken Gradienten der Abluftfahnen in Abb. 4.6 b) und c) bleiben auch im Lee-Bereich der Emissionsquelle im Gegensatz zur Abluftfahne der MCCM-MPDATA Simulation noch erhalten. Die Differenzen zwischen der Referenzsimulation mit dem MPDATA- und den Bott-Advektionsverfahren in Abb. 4.6 d) und e) zeigen deutlich die starke Diffusivität des MPDATA-Advektionsverfahrens, da hier die hohen CO -Konzentrationen auf eine sehr breite Abluftfahne verteilt werden, wohingegen die Bott-Advektionsverfahren eine wesentlich kompaktere Abluftfahne mit deutlich höheren CO -Konzentrationen liefern.

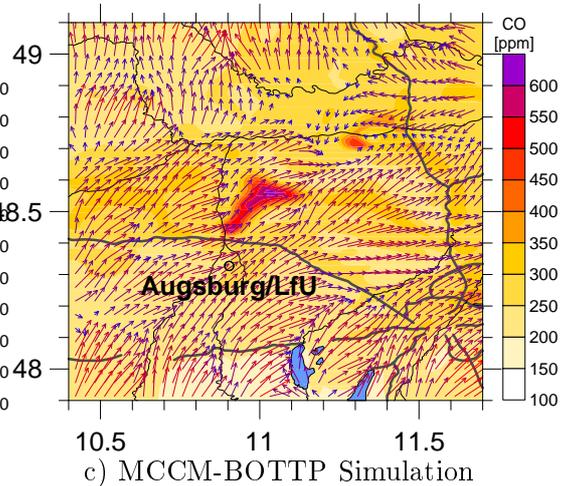
Wie der numerische Advektionstest im 3D Modell in Abschnitt 4.3 bereits gezeigt hat, besitzt die positiv definite Version des Bott-Advektionsverfahrens aufgrund seiner geringen Diffusivität die Eigenschaft, starke Gradienten zu erhalten. Bei der Anströmung von starken Emissionsquellen (Punktquellen) können sehr große Konzentrationsgradienten entstehen. Die Emission wird als Quellterm je Zeitschritt auf die Konzentrationen der entsprechenden Git-



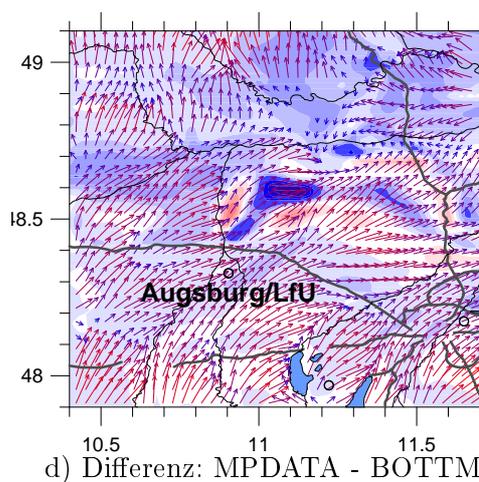
a) Referenzsimulation MCCM-MPDATA



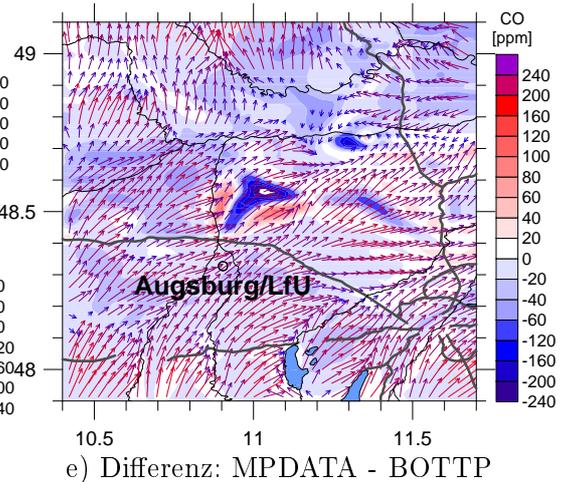
b) MCCM-BOTTM Simulation



c) MCCM-BOTTP Simulation



d) Differenz: MPDATA - BOTTM



e) Differenz: MPDATA - BOTTP

Abbildung 4.6: Momentaufnahme (30.07.03, 4:30 Uhr) für die Region Augsburg mit a) der bodennahen CO -Verteilung mit einer deutlichen CO -Abluftfahne und dem bodennahen Windfeld; b) CO -Abluftfahne der BOTTM-Simulation und c) der BOTTP-Simulation; d) Differenz MCCM-MPDATA minus MCCM-BOTTM; e) Differenz MCCM-MPDATA minus MCCM-BOTTP

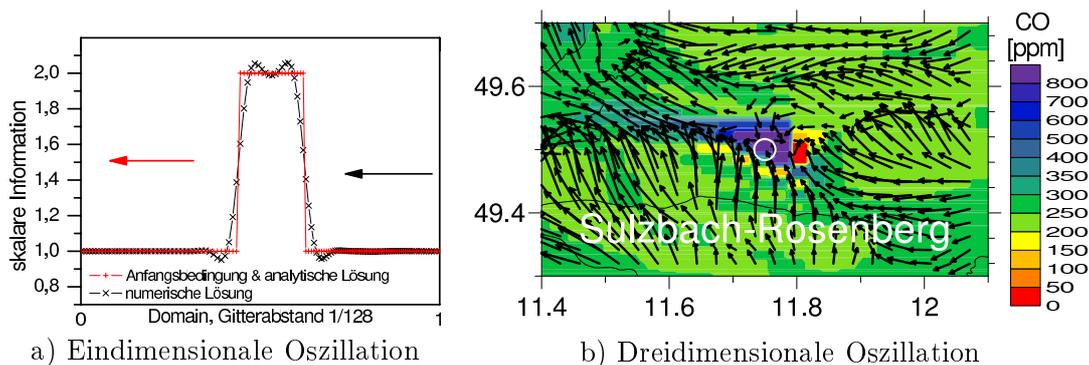


Abbildung 4.7: a) Oszillationen bei einem numerischen Advektionstest mit dem BOTTP-Verfahren; b) Momentaufnahme (30. Juli 2003, 4:30 Uhr) für die Region Sulzbach-Rosenberg im Domain D4 der bodennahen CO -Verteilung einer Abluftfahne aus industriell emittiertem CO (Stahlverhüttung) und dem bodennahen Windfeld; Numerische Instabilitäten durch Oszillationen an starken Gradienten

terzelle aufaddiert. Auf diese Weise wurden in der Anströmrichtung je nach räumlicher Gitterauflösung Konzentrationsunterschiede um den Faktor 10-20 beobachtet. Die resultierenden Konzentrationsgradienten können im Extremfall bei der positiv definiten Version des Bott-Advektionsverfahrens zu unphysikalischen und rein numerisch verursachten Oszillationen führen, wie in Abb. 4.7 dargestellt. Abb. 4.7 b) zeigt die bodennahen CO -Konzentrationen in der Umgebung der Stadt Sulzbach-Rosenberg mit ihren starken CO -Emissionsquellen durch die Eisenverhüttung. Die Oszillation führt zu einem Unterschreiten der Hintergrundkonzentration in der Anströmung direkt vor den Emissionsquellen (gelb bis rote Bereiche) und zu einem entsprechenden Überschreiten der durch die Emission resultierenden Konzentration an der Emissionsquelle. Dies beeinträchtigt zunächst die Genauigkeit des numerischen Modells. Betrachtet man hingegen Emissionen stark reaktiver Spurenstoffe wie NO , so können diese Oszillationen aufgrund nichtlinearer Rückkopplungen zu Instabilitäten im Chemiemechanismus führen. Numerische Experimente haben gezeigt, dass MCCM Simulationen mit dem BOTTP-Advektionsverfahren wesentlich sensitiver auf größere Zeitschritte reagieren und wesentlich früher zu Instabilitäten (Singularitäten in der Integration des nichtlinearen Chemiemechanismus) führen, während die Simulationen mit dem MPDATA und dem BOTTM-Verfahren diesbezüglich wesentlich robuster sind und Integrationszeitschritte nahe der Stabilitätsbedingung durch das CFL-Kriterium (Courant u. a., 1928) erlauben.

4.4.2 Regionale Luftchemiesimulationen für die Stadt-Umland Wechselwirkung

Für den zweiten Untersuchungsschwerpunkt wurden mit den 3 Advektionsverfahren genestete Simulationen (Domains D1 bis D4) für eine 10-tägige Photosmogepisode aus dem Sommer 2003 durchgeführt. Im Vordergrund der Untersuchung stehen dabei die Auswirkungen unterschiedlicher numerischer Advektionsverfahren auf die räumliche und zeitliche Verteilung der Ozonkonzentrationen. Die Rand- und Anfangsbedingungen für Domain D1 stammen vom NCEP GDAS (Global Data Assimilation System) Datensatz (NCEP-DS-Dataset-82/1, 2003) und für D2 bis D4 wurden diese durch Nestung aus den jeweils übergeordneten Domains er-

stellt, sodass sich Unterschiede aufgrund der Advektionsverfahren in den einzelnen Domains über die Rand- und Anfangsbedingungen auf die jeweils feiner aufgelösten Sub-Domains fort-pflanzen können. Die MCCM-Simulationen verwenden wie in Grell u. a. (2000) beschrieben den RADM-Chemiemechanismus (Stockwell u. a., 1990) mit dem QSSA-Löser (Chang u. a., 1989).

Zur Evaluierung der luftchemischen Simulationsgüte durch die Advektionsverfahren werden in Abb. 4.8 für Domain D3 und in 4.9 für Domain D4 der zeitliche Verlauf der Ozonkonzentrationen an den Messstationen des LfU dargestellt. Es zeigt sich im Inter-Modellvergleich im Domain D3 während den Tagesstunden ein eindeutiger Trend zu wesentlich höheren Ozonkonzentrationen durch das MPDATA-Verfahren, die teils erheblich über den gemessenen Tageshöchstwerten liegen. Das monotone Bott-Verfahren BOTTM liefert während den Tagesstunden tendenziell höhere Ozonkonzentrationen als das positive Bott-Verfahren BOTTP. Dies wird vor allem durch die Scatter-Plots der Quantilen der Simulationen gegen die Quantilen der Beobachtungen an den Messstationen in Abb. 4.10 deutlich und ist an nahezu allen Messstationen zu beobachten. Die Quantilen mit niedrigem Rang repräsentieren die nächtlich niedrigen O_3 -Konzentrationen in der Verteilung und die mit hohem Rang die entsprechend hohen Konzentrationen während der Tageszeit. Es zeigt sich an einigen Messstationen, dass die Simulationen mit den Bott-Verfahren nachts und über weite Teile auch tagsüber deutlich geringere O_3 -Konzentrationen als die Beobachtungen liefern, während die Referenzsimulation diese tendenziell übersteigen. Keine der 3 Simulationen zeigt eindeutig bessere Übereinstimmungen mit den Beobachtungen (Abb. 4.10).

Betrachtet man die statistischen Maßzahlen, die in Tab. 4.5 zusammengefasst sind, so werden die bereits gewonnenen Erkenntnisse statistisch bestätigt. Mittelwerte und Quantilen der Zeitreihen zeigen den Trend zu höheren O_3 -Konzentrationen für die MPDATA-Referenzsimulation im Vergleich mit den Beobachtungen und den Bott-Simulationen. Die beiden Bott-Simulationen liefern deutlich geringere O_3 -Konzentrationen als die Beobachtungen. Die statistischen Fehlergrößen (nach Tab. 4.2) liefern eine geringfügig bessere Übereinstimmung bzw. geringere Abweichungen von den Beobachtungen für die Simulationen mit den Bott-Verfahren im Vergleich zur Referenzsimulation für das Domain D3.

Der nächtliche Ozonabbau ist durch die Titration von O_3 durch NO dominiert (siehe Gl. 4.18). Diese Reaktion findet innerhalb von Sekunden statt, während die übrigen relevanten Abbaureaktionen und Verdünnungseffekte von Ozon (z.B. durch Deposition) wesentlich langsamer stattfinden. Bodennahes NO stammt vor allem aus antropogenen Emissionsquellen wie dem Straßenverkehr, industriellen Anlagen und Verbrennungen aller Art und reagiert sehr schnell mit Kohlenwasserstoffen oder in langsamerer Reaktion mit Sauerstoff zu NO_2 . Ein Advektionsverfahren, welches die Gradienten dieser lokal teils sehr starken NO -Emissionen beim atmosphärischen Transport besser erhält, liefert in den Abluftfahnen auch wesentlich höhere NO -Emissionen als ein stark diffusives Verfahren, welches die Konzentrationen auf mehrere Gitterzellen verteilt. Diese höheren NO -Konzentrationen tragen somit wesentlich stärker zur lokalen Ozontitration bei.

Abb. 4.11 und 4.12 zeigt die Zeitreihen der Konzentrationen für die Spurenstoffe O_3 , NO , NO_2 , NO_x sowie für das NO_2/NO -Verhältniss detailliert an den Messstationen Augsburg-LfU und München-Johanneskirchen (für die entsprechende Beobachtungen verfügbar sind).

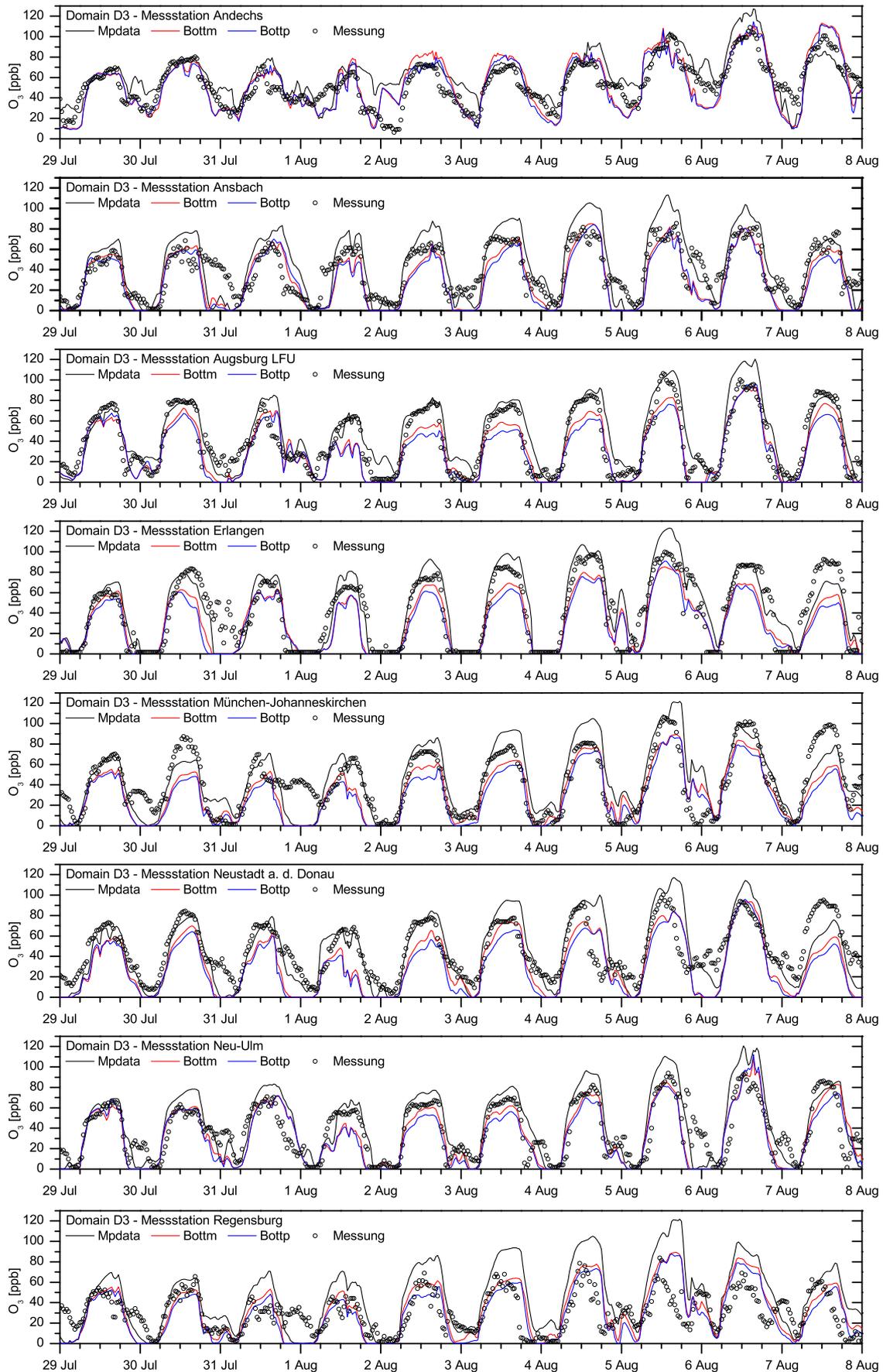


Abbildung 4.8: Domain D3: Zeitreihen der O_3 -Konzentrationen [ppb] an den Messstationen

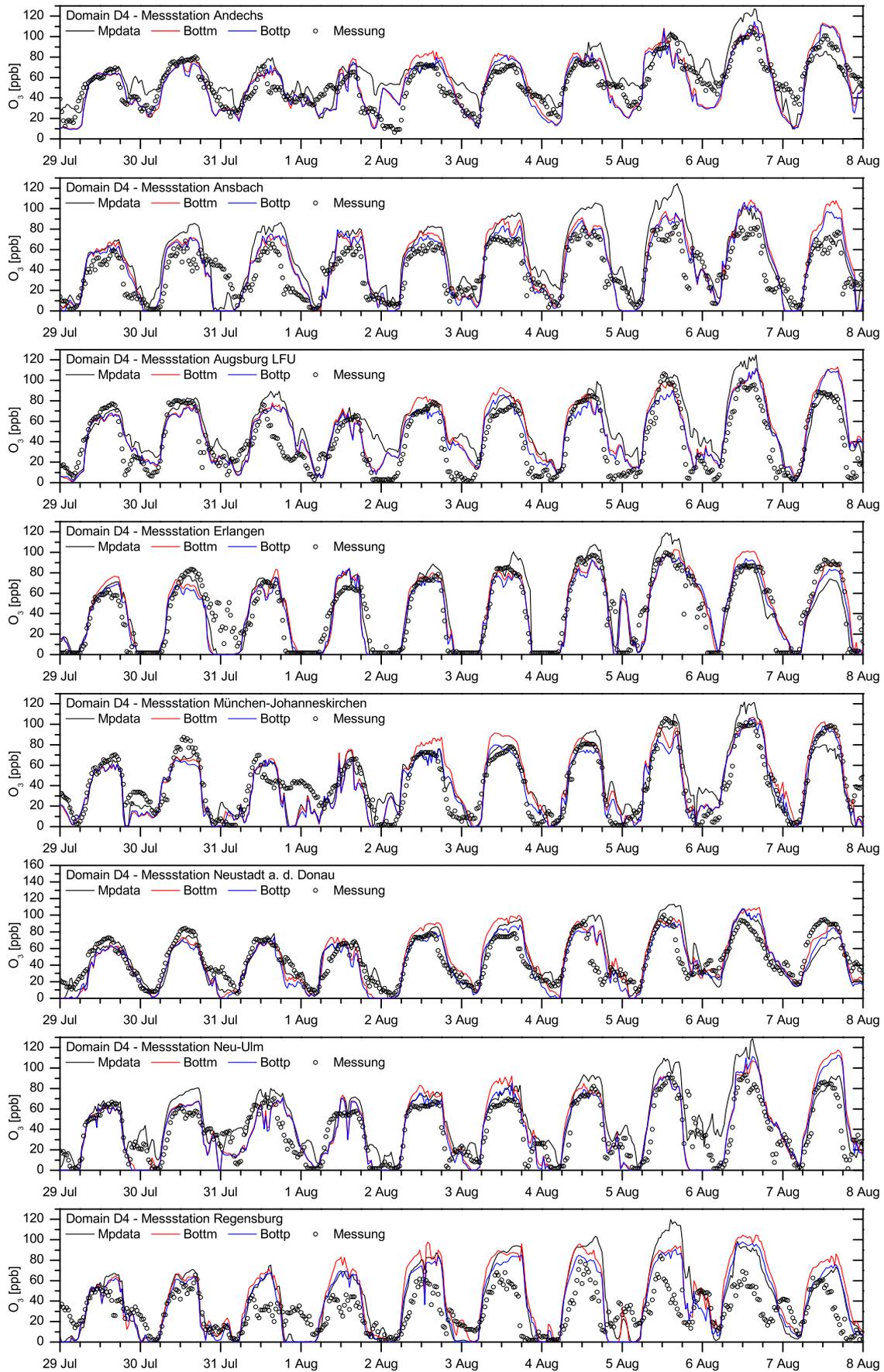


Abbildung 4.9: Domain D4: Zeitreihen der O_3 -Konzentrationen [ppb] an den Messstationen

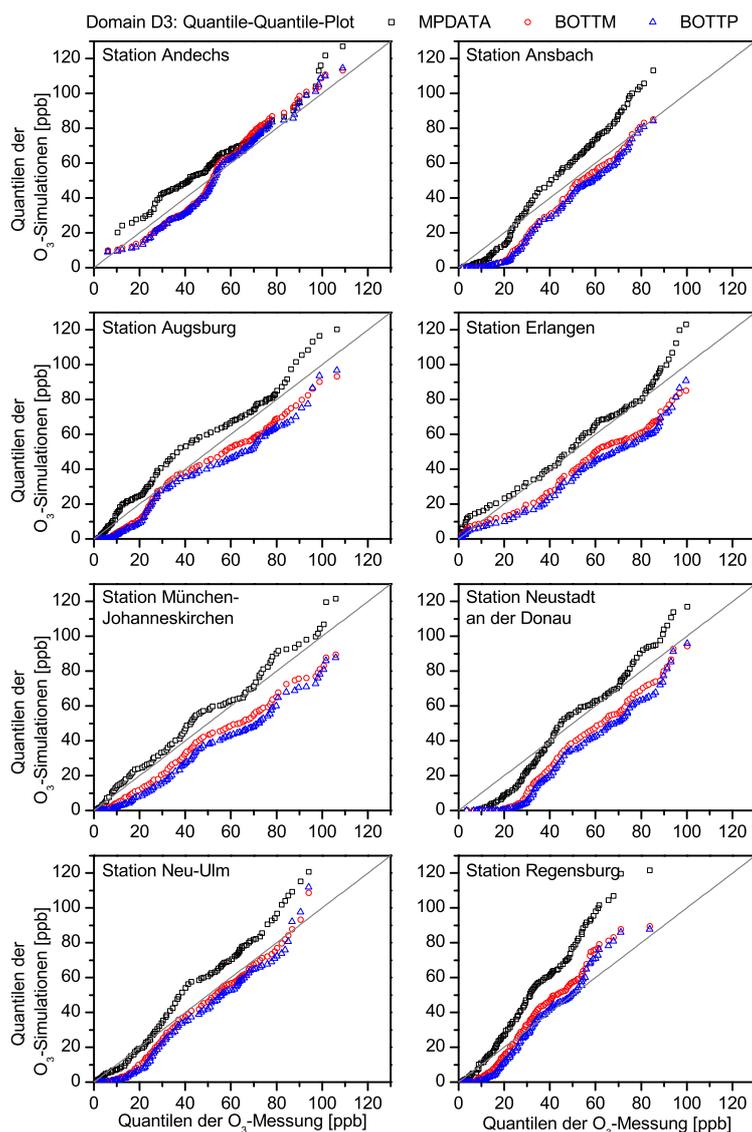


Abbildung 4.10: Domain D3: Quantilen-Scatterplots für bodennahes Ozon [ppb] an den Messstationen

Es zeigen sich dabei eindeutige Korrelationen in den Differenzen der simulierten NO -Konzentrationen zu den Differenzen in den resultierenden O_3 -Konzentrationen zwischen den Simulationen. Es gilt dabei zu beachten, dass aufgrund der Nestung bereits Unterschiede aus dem größeren Domain D2 durch die Randbedingungen Einfluss auf die Spurenstoffverteilung im Domain D3 haben. Die Unterschiede durch die Randbedingungen konzentrieren sich hier aber im Wesentlichen auf die langlebigeren und langsamer reagierenden sekundären Luftschadstoffe wie z.B. O_3 , sodass vereinzelte Unterschiede in den O_3 -Konzentrationen auch zu einem geringen aber nicht vernachlässigbaren Anteil durch die Randbedingungen verursacht werden ohne dass hierfür lokale NO -Unterschiede notwendig sind. Die Unterschiede an den Messstationen in den gezeigten NO -Konzentrationen sind aber aufgrund der kurzen Lebensdauer von NO eindeutig durch Prozesse in unmittelbarer Nähe zu den Emissionsquellen (siehe Abb. 4.2) aufgrund der Behandlung mit verschiedenen Advektionsverfahren zu erklären.

Das O_3/NO_x -Verhältnis, das nach Arnold u. a. (2003) als Kriterium für die Limitierung der Photochemie dient, liefert eine Aussage über die lokalen NO_x - VOC -Verhältnisse, die

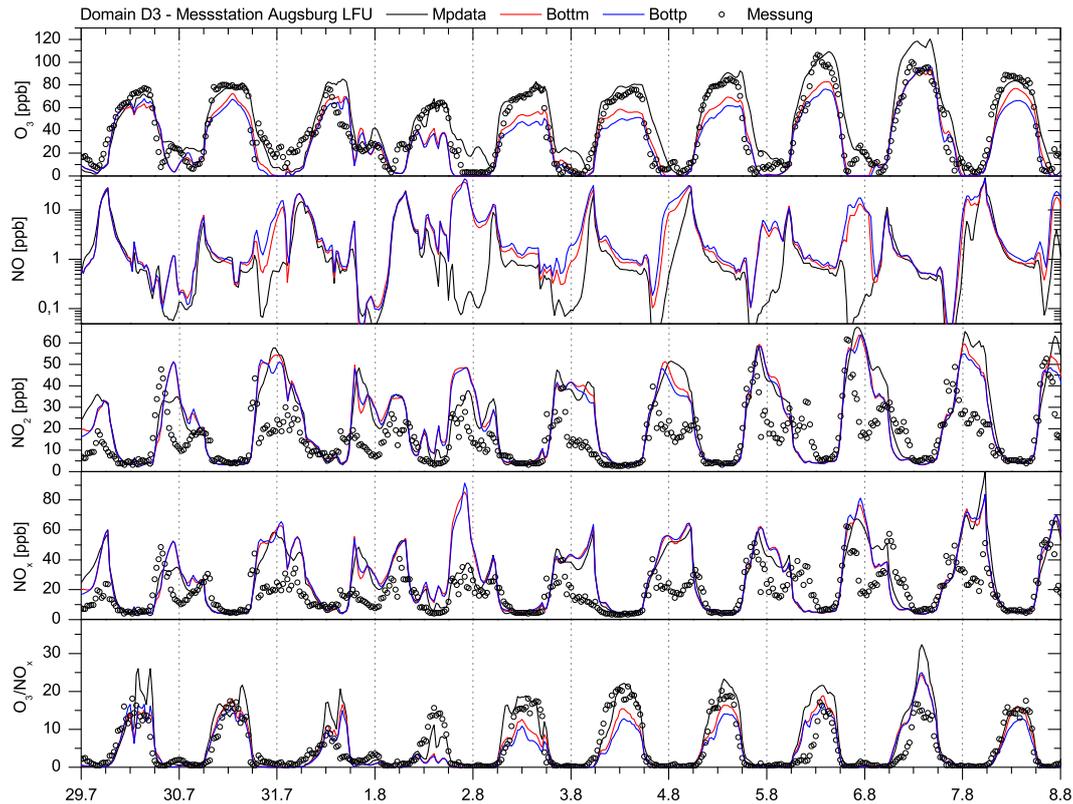


Abbildung 4.11: Domain D3: Zeitreihen für die Konzentrationen von O_3 , NO , NO_2 , NO_x und für das O_3/NO_x -Verhältnis an der Messstation Augsburg-LfU

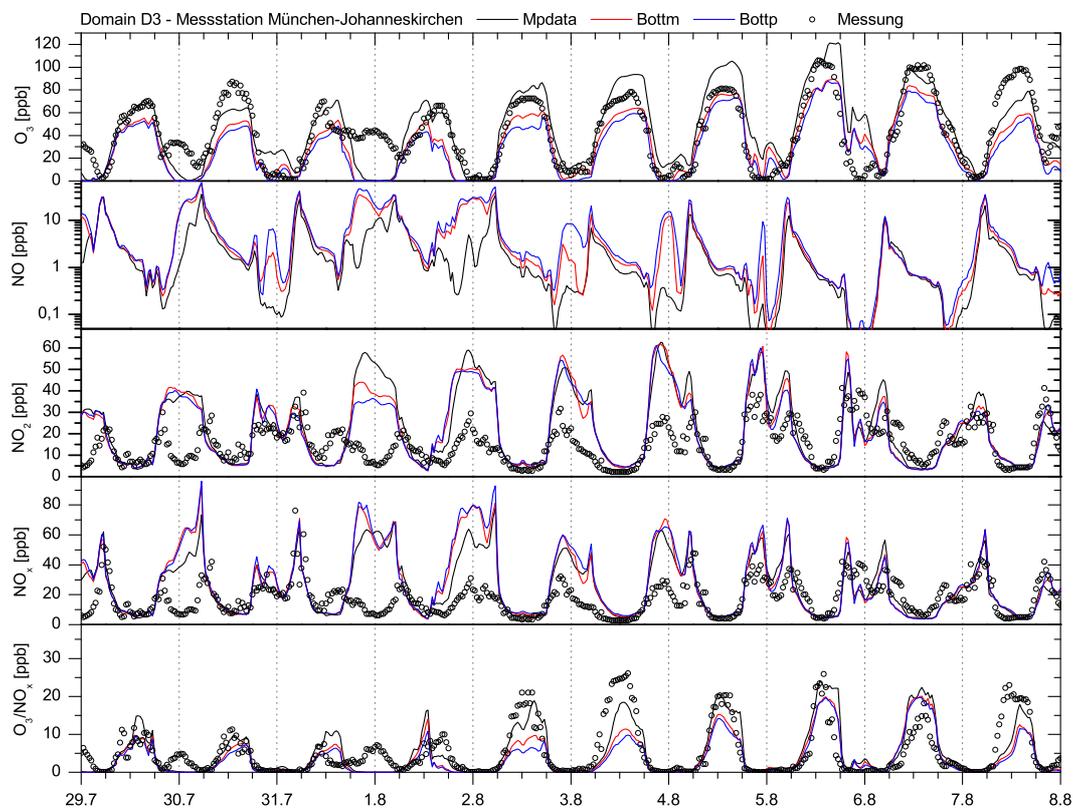


Abbildung 4.12: Domain D3: Zeitreihen für die Konzentrationen von O_3 , NO , NO_2 , NO_x und für das O_3/NO_x -Verhältnis an der Messstation München-Johanneskirchen

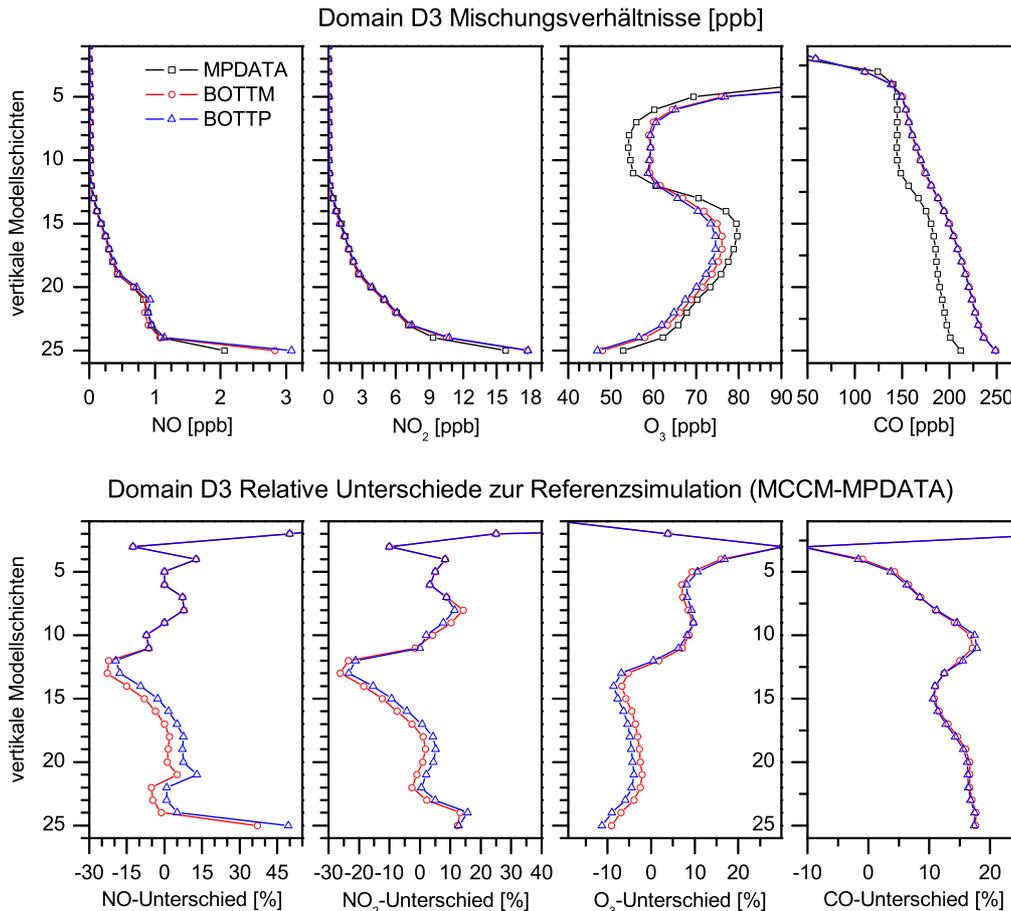


Abbildung 4.13: Domain D3: Verteilung der NO -, NO_2 -, O_3 - und CO -Konzentrationen als Mittelung über die jeweilige Modellschicht und die Simulationszeit, alle Konzentrationen in [ppb]

zu den entsprechenden Ozonkonzentrationen führen (siehe Abschnitt 5.5.1 bzw. Arnold u. a. 2003). O_3/NO_x -Verhältnisse unterhalb von 15 kennzeichnen eine Radikal-Limitierung und O_3/NO_x -Verhältnisse mit Werten über 46 kennzeichnen NO_x -limitierte und deshalb NO_x -sensitive Verhältnisse. Das O_3/NO_x -Verhältnis liefert somit einen guten Indikator für den photochemischen Zustand und es zeigen sich in Abb. 4.11 und 4.12 deutlich höhere O_3/NO_x -Verhältnisse für die Referenzsimulation. Einem hohen Angebot von Kohlenwasserstoffen steht hier nur ein sehr limitiertes Angebot an NO und NO_2 zur Ozonbildung zur Verfügung. Bei den Simulationen mit den Bott-Verfahren kommt es andererseits zu geringeren O_3/NO_x -Verhältnissen, welche durch die höheren NO - und NO_2 -Konzentrationen begründet sind.

Betrachtet man in Abb. 4.13 die vertikale Verteilung der NO -Konzentration als Mittelung über die jeweilige Modellschicht und die Simulationszeit für Domain D3, so zeigen sich in der untersten Modellschicht der BOTTP- und BOTTM-Simulationen wesentlich höhere NO -Konzentrationen die zu geringeren O_3 -Konzentrationen führen. Die NO -Akkumulationen in der untersten Modellschicht der BOTTP- und BOTTM-Simulationen entsprechen geringeren NO -Konzentrationen in den darüberliegenden Modellschichten (bis zur Grenzschicht) im Vergleich zur Referenzsimulation. Die einzige Erklärung dafür ist, dass das MPDATA Verfahren durch diffusive Effekte wesentlich mehr NO aus der untersten Modellschicht (Schicht mit den stärksten Emissionsquellen) in die darüberliegenden Schichten transportiert, während

die Simulationen mit den Bott-Verfahren wesentlich stärkere Konzentrationen und Gradienten in der untersten Modellschicht liefern. Während der Photosmogepisode herrschte eine stabile Hochdruckwetterlage über Mitteleuropa mit sehr geringen Windgeschwindigkeiten. Die lokale Dynamik war aufgrund geringer Druckunterschiede durch sehr schwach ausgeprägte kleinskalig konvektive Zirkulationen geprägt. Bei den Simulationen mit den BOTTP- und BOTTM-Verfahren findet ein deutlich geringerer advektiver Vertikaltransport statt, was zu den entsprechend höheren bodennahen Konzentrationen führt. Begründet ist dies durch die Tatsache, dass alle 3 MCCM-Modelle bis auf die numerische Behandlung des Advektionsterms identisch sind. Die gezeigten Unterschiede in der räumlichen NO -Verteilung müssen aus den gezeigten diffusiven Eigenschaften der numerischen Advektionsverfahren resultieren. Durch die Nestung können sich die Unterschiede durch die Generierung der Randbedingungen aus den lokalen Verteilungen noch deutlich verstärken, wenn z.B. starke Emissionsquellen und Regionen mit hohen Konzentrationen in unmittelbarer Nähe zum Modellrand des Sub-Domains liegen. So können die bereits gezeigten erheblichen Unterschiede in den Abluftfahnen direkt die Randbedingungen für das Sub-Domain in erheblichem Maß beeinflussen.

Die vertikalen Verteilungen in Abb. 4.14 liefern für das hochaufgelöste Domain D4 noch eindeutiger Korrelationen zwischen den gemittelten O_3 - und den NO -Konzentrationen. Die großen Unterschiede in den NO -Konzentrationen zeigen im Vergleich zum D3 noch ausgeprägtere Differenzen in der O_3 -Vertikalverteilung, da die höheren NO -Konzentrationen durch die O_3 -Titrations die geringeren Ozonkonzentrationen im Vergleich zur Referenzsimulation bewirken. Da bei der Titration NO_2 Moleküle erzeugt werden (siehe Gleichung 4.18), bestätigen die höheren NO_2 -Konzentrationen in den unteren Modellschichten diese Annahme.

In den Abb. 4.13 und 4.14 sind auch die vertikalen Verteilungen der gemittelten CO -Konzentrationen dargestellt. CO kann für die hier durchgeführten Betrachtungen praktisch als passiver Tracer angesehen werden, da es nur extrem langsam mit wenigen anderen Spurenstoffen reagiert. Somit liefert die CO -Verteilung einen Aussage über den advektiven Transport, der nur sehr schwach durch die Rückkopplungsprozesse aus dem Chemiemechanismus wie bei den stark reaktiven Spurenstoffen dominiert wird. In D3 und D4 liefern die Simulationen mit den Bott-Verfahren im betrachteten Mittel deutlich höhere CO -Konzentrationen als die Referenzsimulation. Dieser Effekt kann nur durch die bereits erwähnte Fortpflanzung lokaler Unterschiede im Domain D1 und D2 durch die Nestung entstanden sein. Grundsätzlich liefern die beiden Bott-Verfahren höhere CO -Konzentrationen, die aufgrund ihrer Eigenschaft lokale Gradienten besser zu erhalten nur so zu erklären sind, dass das Domain D2 im Südwesten unmittelbar an den Großraum Barcelona angrenzt. Im vorliegenden Emissionskataster stellt diese Region eine der höchsten CO -Emissionen dar. In den Simulationen mit den Bott-Verfahren sind die CO -Konzentrationen in unmittelbarer Nähe zu den Emissionsquellen deutlich höher, sodass sich diese stärkeren Abluftfahnen durch die Nestung auch auf die Randbedingungen für das nächste Domain auswirken. Aufgrund der turbulenten Durchmischung in der Grenzschicht werden diese höheren bodennahen Konzentrationen auch entsprechend stark vertikal transportiert. Die Referenzsimulation verteilt die Konzentrationen in Quellnähe durch die numerische Diffusion des Advektionsverfahrens hauptsächlich horizontal, da aufgrund der dominierenden horizontalen Strömung die numerische Diffusion hier am stärksten zu tragen kommt. Im Domain D1 wurden für alle Simulationen an den seitlichen Rändern

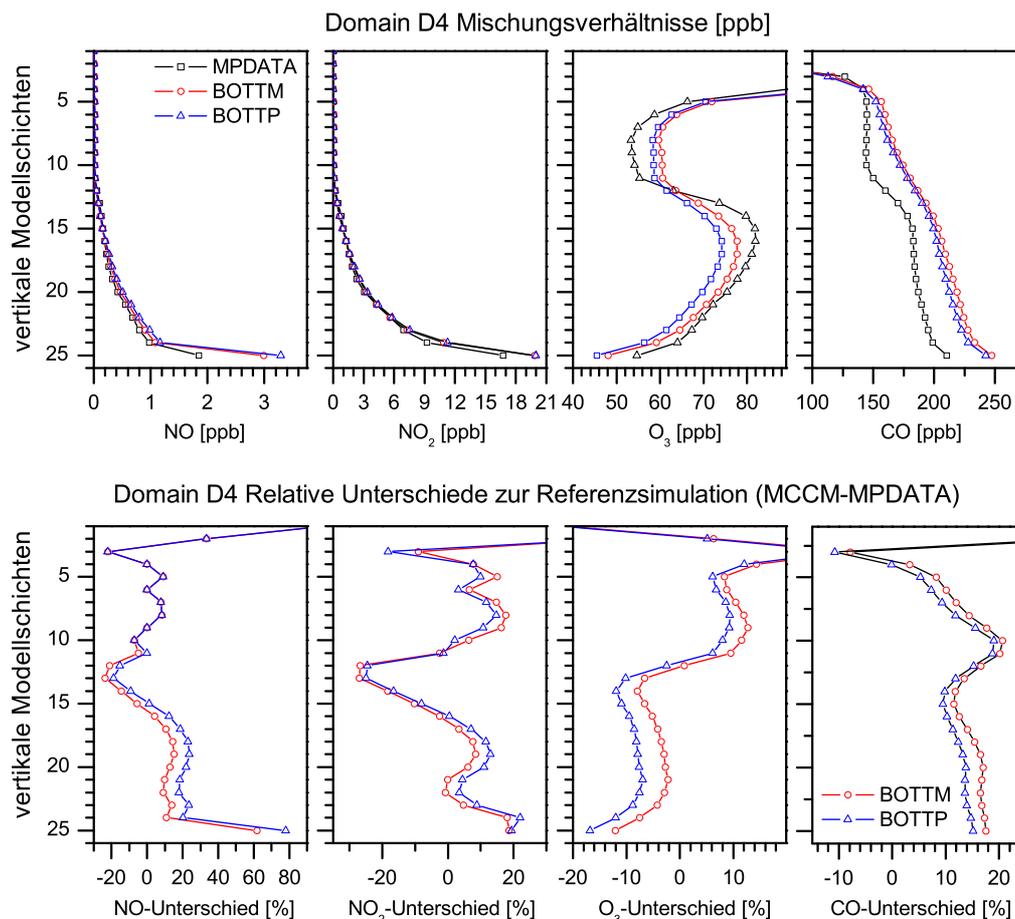


Abbildung 4.14: Wie Abb. 4.13 nur für Domain D4

Randbedingung gesetzt, die für einströmenden Luftmassen zeitlich konstante chemische Hintergrundkonzentrationen definieren. Es besteht somit die Möglichkeit, dass durch diffusive Effekte aus den Advektionsverfahren Spurenstoffe wesentlich schneller zum Modellrand und damit aus dem Modellgebiet transportiert werden, während diese bei gradientenerhaltenden numerischen Verfahren wesentlich länger im Modellgebiet verweilen und sich durch die turbulente Durchmischung im Modellgebiet verteilen können. Dieser Effekt ist für die gezeigten Unterschiede in den CO -Verteilungen verantwortlich.

Betrachtet man die Ergebnisse der drei Simulationen im Domain D4, so sind in Abb. 4.9 die Differenzen für die bodennahen O_3 -Konzentrationen vor allem tagsüber im Vergleich zum Domain D3 geringer geworden. An den Messstationen Augsburg und München-Johanneskirchen in Abb. 4.15 bewirken die geringeren Unterschiede in den NO -Konzentrationen im Vergleich zum Domain D3 auch deutlich geringere Unterschiede in den resultierenden O_3 -Konzentrationen. Hier zeigen die Simulationen vor allem für die primären Luftschadstoffe wie NO durch die feinere räumliche Auflösung eine grundsätzlich geringere Sensitivität im Vergleich zum Domain D3. Aufgrund der feineren räumlichen Auflösung wirkt sich die Diffusivität der MPDATA-Verfahrens weniger stark auf die NO - und die daraus resultierenden O_3 -Konzentrationen aus, als dies im Domain D3 beobachtet wurde. Die Quantilen der O_3 -Verteilungen aus den 3 Simulationen in Abb. 4.16 liegen im Vergleich zum Domain D3 in Abb. 4.10 deutlich näher beieinander und der eindeutige Trend zu höheren O_3 -Konzentrationen in

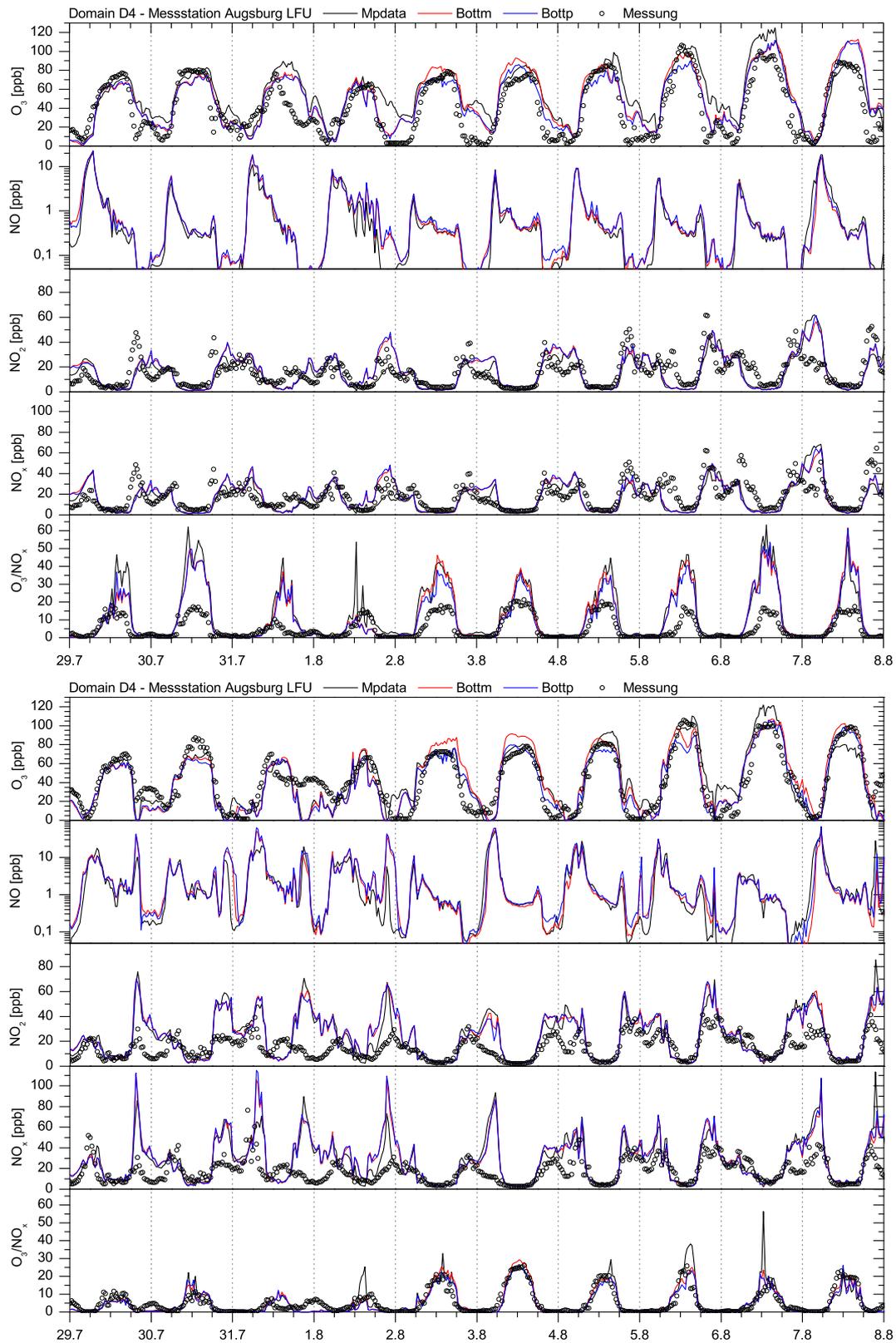


Abbildung 4.15: Domain D4: Zeitreihen für O_3 , NO , NO_2 , und NO_x -Konzentrationen sowie für das O_3/NO_x -Verhältnis an den Messstationen Augsburg-LfU und München-Johanneskirchen

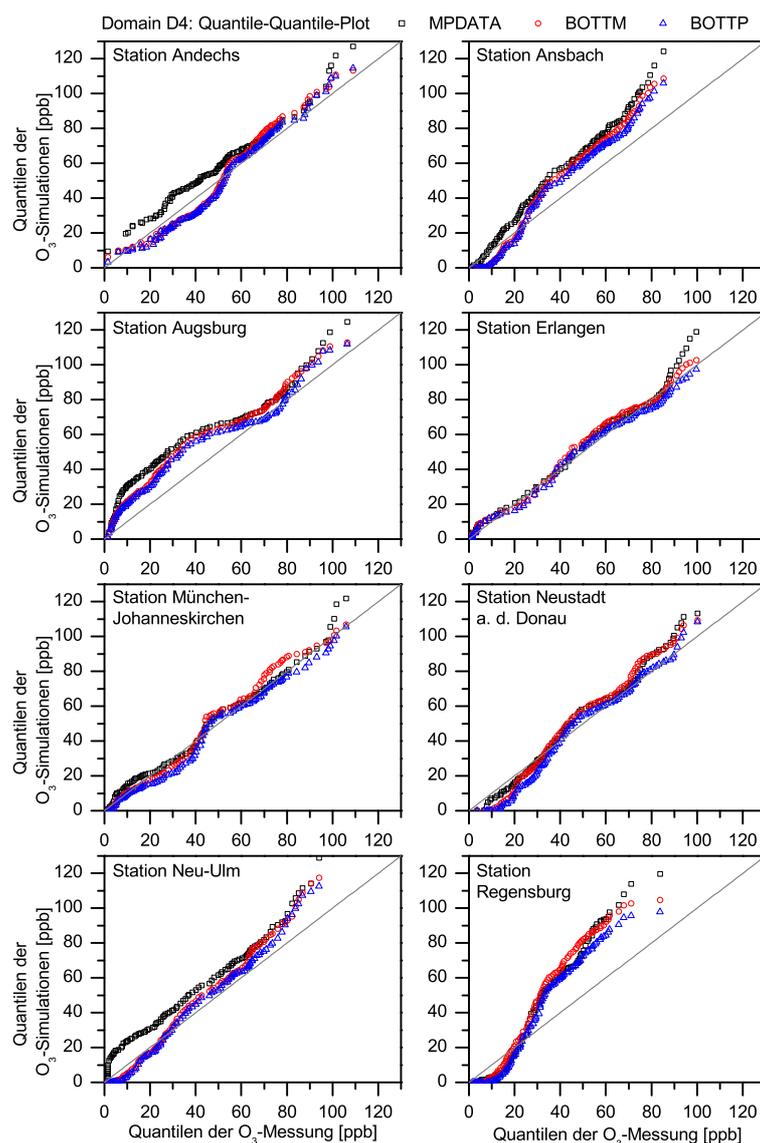


Abbildung 4.16: Domain D4: Quantilen-Scatterplots der bodennahen Ozonkonzentrationen [ppb] an den Messstationen

der MPDATA-Simulation wie im Domain D3 ist in Abb. 4.16 nicht mehr zu erkennen. Die MPDATA-Simulation zeigt lediglich an einzelnen Stationen noch grundsätzlich höhere Quantilen in den O_3 -Verteilungen. Es liefert aber an allen Messstationen die höchsten Werte in den Verteilungen der O_3 -Konzentrationen, welche durch die Quotilen Q_{95} - Q_{100} (mit höchstem Rang) wiedergegeben werden.

Der Vergleich der O_3 -Konzentrationen zeigt im Domain D4 (Abb. 4.9) wie bereits diskutiert geringere Unterschiede zwischen den Simulationen im Vergleich zum Domain D3 (Abb. 4.8). Eine eindeutige Aussage bezüglich der Übereinstimmung der simulierten O_3 -Konzentrationen mit den Beobachtungen ist aber nur mit Hilfe der statistischen Größen in Tab. 4.6, 4.7 und 4.8 möglich.

Für die statistische Evaluierung wurden die Zeitreihen der simulierten und beobachteten O_3 -Konzentrationen, die täglichen Maximalkonzentrationen, sowie die täglichen 8-Stundenmittelwerte (jeweils von 10:00 - 18:00 Uhr Ortszeit gemittelt) herangezogen. Das 8-Stunden-

mittel und die Maximalkonzentration repräsentieren ein Maß für die mögliche Exposition von Mensch und Umwelt auf die tägliche Ozon-Belastung und findet in der Luftschadstoffmodellierung breite Anwendung. In Zeitfenster des 8-Stundenmittelwertes treten in der Regel die höchsten bodennahen Ozonkonzentrationen auf. Das 8-Stundenmittel und die Maximalkonzentrationen haben für die Berechnung der Statistiken einen weiteren Vorteil, denn es werden Verzerrungen durch kleine Werte bei der Quotientenbildung verhindert. Diese Verzerrungen durch einzelne Werte können letztlich das Fehlermaß dominieren und unbrauchbar machen (Jimenez u. a., 2006; Shaocai u. a., 2006).

Betrachtet man die kontinuierlichen Zeitreihen der O_3 -Konzentrationen, so liefert das Mittel über alle Messstationen bessere Korrelationskoeffizienten für die Bott-Simulationen. Die Mittelwerte und die Quotilen in Tab. 4.6 zeigen für die Bott-Simulationen ebenfalls bessere Übereinstimmungen mit den Beobachtungen wie auch die übrigen statistischen Fehlergrößen.

Wesentlich detailliertere Informationen bezüglich den Übereinstimmungen mit den Beobachtungen zur photochemisch aktiven Tageszeit liefert die statistische Betrachtung der täglichen Ozonmaxima und 8-Stundenmittelwerte in Tab. 4.7 und 4.8. Hier werden die statistischen Unterschiede zwischen den simulierten O_3 -Konzentrationen und den Beobachtungen deutlicher, da die nächtlichen Ozonwerte die statistischen Größen nicht mehr beeinflussen. Die statistischen Größen für die Zeitreihen der täglichen Ozonmaxima liefern für die BOTTP-Simulation die beste Übereinstimmung mit den Beobachtungen (Tab. 4.7). Hier zeigt die BOTTM-Simulation ähnlich hohe Ozonmaxima wie die Referenzsimulation mit dem MPDATA-Verfahren, wie bereits in Abb. 4.9 beobachtet wurde.

Betrachtet man die Statistiken für die 8-Stundenmittelwerte, so stimmen dabei O_3 -Mittelwerte und Quotilen der Bott-Simulationen im Vergleich zur Referenzsimulation wesentlich besser mit den Beobachtungen überein. Dies gilt auch für die übrigen statistischen Fehlergrößen in Tab. 4.8. Es zeigt sich dabei im betrachteten 8-Stundenmittel eine deutliche Tendenz in der Referenzsimulation zu höheren O_3 -Konzentrationen. Der mittlere Bias beträgt für die Referenzsimulation ca. 5 ppb, während die Simulationen mit dem BOTTM einen deutlich geringeren Bias von ca. 2 ppb, bzw. BOTTP einen Bias von nur ca. 1 ppb im täglichen 8-Stunden-Ozonmittel zeigt.

4.5 Zusammenfassung und Bewertung

In der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, dass sich durch die Entwicklung und Implementierung alternativer Advektionsverfahren in MCCM dessen Eigenschaften zur Simulation und Prognose von chemischen Spurenstoffen wesentlich verbessert haben.

Im Einzelnen konnte dabei durch ein numerisches Experiment verdeutlicht werden, dass die numerischen Advektionsverfahren eine große Quelle für Fehler und Ungenauigkeiten sind. Der numerische Test - welcher auf den MM5/MCCM-Modellgleichungen und -Modellgitter basierte - wurde dabei so gewählt, dass sich die gewonnenen Erkenntnisse auch auf das MM5/MCCM-Modell übertragen lassen, anstatt wie in der Literatur einen zweidimensionalen Advektionstest für ein Transportproblem in Flussform zu behandeln. Bei diesem numerischen Advektionstests wurde ein numerisch erzeugtes Profil einer skalaren Information dreidimensional durch das Modellgebiet transportiert. Das Transportproblem wurde so definiert, dass

Tabelle 4.6: Statistik D4: O₃-Konzentrationen vom 29.07. - 07.08.03;

Station	r	MW	SD	Q ₅₀	Q ₉₀	Q ₉₅	Q ₉₈	Q ₉₉	MB	MNBE	MFB	MAGE	MNGE	NME	NMB	RMSE	
Mittelwerte über alle Messstationen																	
	MPDATA	0,83	49,51	29,67	48,55	88,19	99,16	110,80	116,23	4,50	49,32	6,97	8,31	63,43	37,96	20,88	14,45
	BOTTM	0,84	46,33	31,58	46,62	88,10	96,33	104,57	106,88	2,74	30,81	-2,22	7,83	51,20	35,94	13,61	13,49
	BOTTP	0,85	43,14	29,96	42,69	81,77	92,08	100,64	102,79	0,97	23,59	-7,00	7,12	47,10	32,50	26,86	12,45
	Messung		41,39	25,98	38,95	76,67	84,70	89,79	91,98								
Andechs	MPDATA	0,77	62,01	20,93	61,73	86,63	99,23	116,08	121,89	4,38	16,27	8,77	7,00	21,10	23,32	14,60	12,17
	BOTTM	0,84	54,29	26,66	53,08	88,84	100,90	108,67	110,90	0,10	2,15	-2,82	6,49	16,39	21,63	0,32	10,74
	BOTTP	0,84	52,33	25,72	51,08	84,71	99,06	108,80	109,95	-0,99	0,30	-4,82	6,20	16,03	20,64	14,52	10,55
	Messung		54,12	21,29	52,96	83,29	93,06	99,43	101,39								
Ansbach	MPDATA	0,84	52,40	31,63	55,73	93,53	101,16	110,64	116,07	7,47	35,84	14,01	10,00	45,33	46,28	34,55	16,46
	BOTTM	0,86	46,44	32,59	50,63	87,40	96,64	103,58	105,57	4,16	10,94	-4,04	8,30	31,57	38,40	19,25	14,02
	BOTTP	0,86	44,27	31,23	47,75	82,68	91,53	97,52	101,33	2,96	8,53	-5,94	7,37	29,69	34,09	39,88	12,80
	Messung		38,94	23,64	37,53	70,95	75,06	79,38	81,23								
Augsburg	MPDATA	0,84	54,70	27,23	53,40	86,86	99,82	112,60	118,79	7,89	91,03	23,83	9,56	96,40	42,57	35,16	16,20
	BOTTM	0,87	51,05	29,16	50,21	90,14	97,98	108,24	110,70	5,87	63,82	19,38	8,09	70,44	36,03	26,12	13,53
	BOTTP	0,87	48,05	27,53	47,31	82,42	98,02	107,78	108,52	4,21	56,92	16,48	7,32	64,94	32,60	35,32	12,26
	Messung		40,47	29,82	32,39	80,21	88,43	95,84	98,92								
Erlangen	MPDATA	0,88	43,10	35,33	44,48	86,41	99,33	109,54	115,08	1,15	70,04	-11,11	6,62	99,09	29,09	5,06	12,54
	BOTTM	0,89	42,64	34,49	47,22	86,33	93,81	100,39	101,08	0,89	66,20	-12,06	6,31	96,09	27,74	3,92	12,06
	BOTTP	0,88	40,26	32,55	45,62	81,81	87,18	92,30	94,52	-0,42	61,40	-15,11	6,04	93,30	26,54	18,43	11,79
	Messung		41,03	33,28	43,70	86,38	91,00	95,32	96,76								
München-Johanneskirchen	MPDATA	0,87	43,40	30,08	36,66	80,95	97,03	110,24	118,50	0,96	56,98	2,49	6,90	75,36	29,85	4,15	11,60
	BOTTM	0,87	42,85	32,08	37,48	88,81	96,43	100,70	103,40	0,66	35,54	-2,43	7,10	57,52	30,69	2,84	11,77
	BOTTP	0,88	38,96	29,77	31,45	78,98	90,58	97,70	100,38	-1,50	24,54	-8,28	6,34	50,34	27,42	8,77	10,86
	Messung		41,67	29,53	39,59	80,72	97,17	100,67	101,80								
Neustadt	MPDATA	0,82	48,39	29,78	46,68	91,00	99,04	107,84	111,30	1,14	3,24	-3,22	6,74	19,45	26,21	4,43	12,78
	BOTTM	0,86	47,93	31,17	48,27	90,24	96,20	104,56	106,46	0,88	-1,04	-9,21	6,77	19,88	26,34	3,42	11,79
	BOTTP	0,87	43,24	29,77	43,79	83,07	87,65	99,20	102,28	-1,72	-7,73	-17,03	6,54	19,96	25,44	11,58	11,23
	Messung		46,34	25,09	41,65	82,26	89,46	93,06	94,19								
Neu-Ulm	MPDATA	0,87	50,28	28,67	46,80	89,33	102,71	111,45	114,18	6,81	85,83	22,90	8,34	89,84	39,56	32,32	14,08
	BOTTM	0,84	41,66	33,01	40,65	85,31	95,19	108,78	114,15	2,03	20,43	-8,15	7,57	45,83	35,89	9,62	13,60
	BOTTP	0,85	39,70	31,86	37,91	79,93	96,37	107,27	109,56	0,94	15,10	-11,94	6,88	42,77	32,64	35,85	12,69
	Messung		38,00	26,48	34,45	73,52	82,26	86,79	90,49								
Regensburg	MPDATA	0,72	41,75	33,72	42,95	90,80	94,97	107,99	114,04	6,23	35,30	-1,89	11,31	60,84	66,77	36,76	19,76
	BOTTM	0,72	43,77	33,49	45,43	87,74	93,47	101,63	102,80	7,35	48,46	1,56	11,99	71,85	70,78	43,39	20,42
	BOTTP	0,72	38,33	31,28	36,58	80,54	86,26	94,54	95,76	4,33	29,63	-9,36	10,26	59,80	60,61	50,56	17,42
	Messung		30,53	18,72	29,31	56,04	61,18	67,87	71,05								

Tabelle 4.8: Statistik D4: 8-Stundenmittelwerte der O_3 -Konzentrationen vom 29.07. - 07.08.03;

Station		r	MW	SD	Q_{50}	Q_{90}	Q_{95}	Q_{98}	Q_{99}	MB	MNBE	MFB	MAGE	MNGE	NME	NMB	RMSE
Mittelwerte über alle 8 Messstationen																	
	MPDATA	0,81	79,47	15,32	73,85	96,16	105,17	110,57	112,37	5,10	7,99	7,05	6,25	9,34	15,29	12,48	9,54
	BOTTM	0,88	74,42	14,69	70,43	91,48	96,35	99,27	100,24	2,18	3,50	3,15	3,63	5,25	8,87	5,33	5,94
	BOTTP	0,86	73,86	14,75	69,53	89,31	95,63	99,43	100,70	1,86	3,06	2,69	3,55	5,12	8,68	4,75	6,11
	Messung		70,65	14,81	66,32	88,22	89,94	90,98	91,32								
Andechs	MPDATA	0,81	79,47	15,32	73,85	96,16	105,17	110,57	112,37	5,10	7,99	7,05	6,25	9,34	15,29	12,48	9,54
	BOTTM	0,88	74,42	14,69	70,43	91,48	96,35	99,27	100,24	2,18	3,50	3,15	3,63	5,25	8,87	5,33	5,94
	BOTTP	0,86	73,86	14,75	69,53	89,31	95,63	99,43	100,70	1,86	3,06	2,69	3,55	5,12	8,68	4,75	6,11
	Messung		70,65	14,81	66,32	88,22	89,94	90,98	91,32								
Ansbach	MPDATA	0,81	84,91	17,15	80,77	109,77	112,23	113,70	114,20	15,61	26,50	21,11	15,61	26,50	46,53	46,53	22,39
	BOTTM	0,67	81,26	18,94	78,92	95,55	110,77	119,90	122,94	13,49	22,90	18,37	13,49	22,90	40,22	40,22	20,91
	BOTTP	0,70	77,57	16,67	72,46	93,87	104,86	111,46	113,65	11,36	19,30	15,94	11,36	19,30	33,85	34,94	17,63
	Messung		57,95	6,69	56,31	66,11	66,25	66,33	66,36								
Augsburg	MPDATA	0,79	80,81	13,14	77,14	94,34	100,79	104,65	105,94	8,17	12,65	11,00	8,17	12,65	21,16	21,16	12,23
	BOTTM	0,71	79,23	16,57	76,69	100,55	103,78	105,71	106,35	7,26	10,97	9,40	7,26	10,97	18,80	18,80	12,77
	BOTTP	0,70	75,12	16,83	70,23	97,72	101,15	103,21	103,90	4,88	7,35	6,23	5,62	8,38	14,57	13,72	10,87
	Messung		66,69	10,29	64,18	78,63	81,20	82,75	83,26								
Erlangen	MPDATA	0,64	79,48	16,66	71,55	105,42	106,23	106,72	106,88	3,95	5,78	4,82	7,47	10,28	17,75	9,40	10,63
	BOTTM	0,62	79,63	17,94	73,84	95,17	109,02	117,33	120,10	4,04	5,85	4,82	5,93	8,28	14,10	9,61	11,55
	BOTTP	0,67	74,22	15,84	70,38	91,12	101,27	107,36	109,39	0,91	1,49	0,89	4,31	5,86	10,24	1,08	8,70
	Messung		72,65	11,67	75,34	86,07	86,59	86,90	87,00								
München- Johannes- kirchen	MPDATA	0,78	70,30	16,44	64,82	88,87	96,98	101,84	103,47	0,66	1,13	0,64	4,81	6,67	12,01	1,64	7,49
	BOTTM	0,81	71,23	17,46	73,80	96,54	96,62	96,66	96,68	1,20	1,73	1,12	5,06	7,49	12,65	2,99	7,53
	BOTTP	0,85	65,65	16,94	63,56	94,01	94,55	94,87	94,98	-2,03	-3,07	-3,60	4,44	6,39	11,08	-4,17	6,97
	Messung		69,16	13,46	66,93	85,44	86,57	87,25	87,48								
Neustadt	MPDATA	0,23	77,38	15,45	75,78	91,63	97,14	100,44	101,54	5,60	9,49	7,23	7,84	12,39	19,99	14,30	14,16
	BOTTM	0,58	76,14	17,24	76,02	97,77	98,49	98,92	99,07	4,89	7,56	5,98	7,84	12,06	19,99	12,47	12,07
	BOTTP	0,64	71,27	16,54	71,98	94,87	95,56	95,98	96,12	2,07	3,24	2,13	6,65	10,32	16,97	6,53	9,58
	Messung		67,70	10,75	65,78	79,84	83,53	85,75	86,48								
Neu-Ulm	MPDATA	0,72	78,44	13,93	73,59	98,35	100,02	101,03	101,36	10,65	17,86	15,02	10,65	17,86	30,63	30,63	15,67
	BOTTM	0,31	74,40	19,03	70,37	102,94	106,50	108,64	109,35	8,31	14,31	11,11	9,19	15,59	26,43	23,90	17,21
	BOTTP	0,38	71,63	18,16	65,38	97,03	101,51	104,20	105,10	6,71	11,49	9,03	7,59	12,76	21,84	21,47	15,08
	Messung		60,05	8,66	56,49	76,09	76,12	76,14	76,15								
Regensburg	MPDATA	0,53	73,78	17,78	74,56	94,22	98,69	101,37	102,27	19,31	47,98	32,73	19,31	47,98	82,49	82,49	27,75
	BOTTM	0,30	72,53	17,15	73,57	97,55	97,63	97,68	97,70	18,58	47,07	31,72	18,58	47,07	79,40	79,40	27,16
	BOTTP	0,33	67,32	17,03	65,77	89,56	94,14	96,89	97,80	15,57	39,31	27,63	15,57	39,31	66,53	70,90	23,55
	Messung		40,43	6,04	41,71	45,76	46,30	46,63	46,74								

die analytische Lösung bekannt war und mit den numerischen Lösungen auf dem Modellgitter verglichen werden konnte. Der Vergleich zeigte für die beiden Bott-Advektionsverfahren BOTTM und BOTTP deutlich Gradienten erhaltendere Eigenschaften im Vergleich zum MPDATA-Referenzverfahren. Das positiv definite Bott-Advektionsverfahren zeigte durch seine sehr geringe numerische Diffusion die beste Übereinstimmung der numerischen mit der analytischen Lösung. Das MPDATA-Referenzverfahren produzierte aufgrund seiner ausgeprägten Diffusion und eines positiven Phasenfehlers eine deutlich schlechtere Übereinstimmung der numerischen Lösung des Transportproblems mit der analytisch exakten Lösung. Das quaderförmige Anfangsprofil wurde durch die Diffusion so stark verändert, dass die Form der numerischen Lösung nur noch eine sehr geringe Ähnlichkeit mit der analytischen Lösung hatte und das Maximum der numerischen Lösung hat den Wert des Anfangsprofils erheblich überschritten. Damit konnte bereits die erste Vermutung bestätigt werden, dass die beiden Gradienten erhaltenderen Bott-Verfahren wesentlich exaktere numerische Lösungen für den advektiven Transport in MCCM liefern.

Die in den regionalen Simulationen mit MCCM erwarteten erheblichen Unterschiede in den Spurenstoffverteilungen durch die numerischen Advektionsverfahren konnten im ersten Teil der Evaluierung anhand der Simulation von *CO*-Ablufffahrten bestätigt werden. Wie erwartet lieferten die wesentlich gradientenerhaltenderen Advektionsverfahren BOTTM und BOTTP in den Simulationen deutlich ausgeprägtere Ablufffahrten in unmittelbarer Nähe zu den Emissionsquellen als die Referenzsimulation mit dem wesentlich diffusiveren MPDATA-Verfahren. Die lokalen Unterschiede in den *CO*-Konzentrationen in den simulierten Ablufffahrten lagen bei über 100%. Es konnte bei der Untersuchung auch gezeigt werden, dass das positiv definite Bott-Advektionsverfahren BOTTP aufgrund der sehr starken lokalen Gradienten an den Emissionsquellen durch ein Überschwingen an den Gitterpunkten in Anstömrichtung vor und hinter der Emissionsquelle auch erhebliche numerische Fehler induzierte. Diese numerischen Fehler traten besonders an den starken Gradienten der antropogenen Emissionsquellen auf. Die Emissionen werden in MCCM als Flüsse bei der Integration der Erhaltungsgleichungen für die chemischen Spurenstoffe berücksichtigt und entweder als Flächenemissionen (über den unteren Modellrand) in der untersten Modellschicht oder als Punktquellen (z.B. von hohen Schornsteinen) direkt in einzelne Gitterzellen im Modellgebiet modelliert. Bei quasi-inerten Spurenstoffen wie *CO* haben diese Fehler keine größeren Auswirkungen. Handelt es sich bei den Emissionen aber um sehr schnell reagierende Spurenstoffe wie *NO*, so erfolgt z.B. durch die nichtlineare Luftchemie eine sehr schnelle chemische Umwandlung durch O_3 in *NO*₂. Die numerisch induzierten Fehler können auf diese Art das lokale photostationäre Gleichgewicht verschieben. Die numerisch verstärkten lokalen Spurenstoffgradienten können in den nichtlinearen chemischen Prozessen auch zu numerischen Stabilitätsproblemen führen, wenn die lokalen Zeitschritte sehr progressiv gewählt wurden.

An den Messstationen haben die Unterschiede in den Verteilungen von reaktiven Emittenten in unmittelbarer Nähe zu antropogenen Emissionsquellen bei den sehr schnell reagierenden Spurenstoffen wie z.B. *NO* deutliche Unterschiede von bis zu 100 % hervorgebracht. Die Simulationen mit den Bott-Verfahren haben in der bodennahen, als auch in den unmittelbar darüberliegenden Modellschichten wesentlich höhere *NO*-Konzentrationen gezeigt, die zu entsprechend geringeren *O*₃-Konzentrationen führten.

Die O_3 -Konzentrationen an den Messstationen zeigten in den Simulationen mit der räumlichen Auflösung von 6 km bei den Bott-Verfahren wesentlich geringere O_3 -Konzentrationen, als dies für die Referenzsimulation der Fall war. Die Unterschiede in den O_3 -Konzentrationen korrelierten dabei eindeutig mit den Unterschieden in den lokalen NO -Konzentrationen, wie an den zwei Messstationen Augsburg und München-Johanneskirchen detailliert dargestellt wurde. Die Simulationen mit den Bott-Verfahren unterschätzten dabei die simulierten O_3 -Konzentrationen im Vergleich zu den Beobachtungen im selben Maß, wie die Referenzsimulation diese überschätzten. Hier zeigten die O_3 -Konzentrationen in den Simulationen mit 6 km Auflösung eine starke Sensitivität bezüglich den numerischen Advektionsverfahren. Die Simulationen mit der feinsten räumlichen Auflösung von 2 km führten an den Messstationen während der Tageszeit zu geringeren Unterschieden in den urbanen NO -Konzentrationen und konsequenterweise zu entsprechend geringeren Unterschieden in den simulierten O_3 -Konzentrationen. Hier zeigen die O_3 -Konzentrationen eine wesentlich geringere Sensitivität als bei der gröberen Auflösung von 6 km.

Die hochaufgelösten MCCM-Simulationen mit den Bott-Advektionsverfahren haben bei der Evaluierung der O_3 -Konzentrationen mit den Beobachtungen durch die statistischen Größen deutlich bessere Übereinstimmungen gezeigt, als für die Referenzsimulation mit dem MPDATA-Verfahren. Vor allem das positiv definite Bott-Advektionsverfahren - welches sich durch seine Eigenschaft auszeichnet starke Gradienten beim advektiven Transport sehr gut zu erhalten - produzierte hier die beste Übereinstimmung mit den Beobachtungen. Anhand der statistischen Kenngrößen konnte somit detailliert belegt werden, dass die O_3 -Modellierungsgüte von MCCM durch die Implementierung der neuen numerischen Advektionsverfahren verbessert wurde.

5 Gasphasenchemiemechanismen in MCCM

5.1 Einleitung

MCCM ist ein regionales Meteorologie-Chemie-Modell, das durch die Kopplung eines CTM (Chemie-Transport-Modell) an das Meteorologiemodell MM5 entstand (Grell u. a., 2000). Chemie-Transport-Modelle und auch das gekoppelte Modell MCCM werden zur Vorhersage von Luftschadstoffentwicklungen (z.B. O_3 , SO_2 und NO_x) oder auch für Simulationen zur Schadstoffminderung verwendet.

Das zentrale Element zur Schadstoffmodellierung stellt beim gekoppelten Modell, wie auch bei den CTMs stets der verwendete Gasphasenchemiemechanismus dar. Dieser Mechanismus beschreibt die Zusammensetzung der Luft bezüglich ihrer chemischen Komponenten (Spezies oder zusammengefasste Speziesklassen) und er bildet deren chemische Reaktionspfade ab. Der bisher in MCCM implementierte Chemiemechanismus RADM (Stockwell u. a., 1990) liegt in einer ursprünglich durch ein so genanntes QSSA-Verfahren (Hesstvedt u. a., 1978; Chang u. a., 1989) diskretisierten Form vor. Das QSSA-Verfahren führt für den Chemiemechanismus eine "Entsteifung" durch, indem für zeitlich schnell reagierende Spurenstoffe ein quasi stationärer Zustand angenommen wird. Für diese Spurenstoffe wird keine Differentialgleichung gelöst, sondern ihre Konzentration wird als Gleichgewicht aus den jeweiligen Produktions- und Abbautermen für den betrachteten Zeitschritt berechnet. Dadurch wird das resultierende differential-algebraische Gleichungssystem wesentlich weniger steif und folglich kann das numerische Integrationsverfahren effizienter mit größeren Zeitschritten arbeiten. Diese Vereinfachung verletzt aber die Konsistenz des numerischen Integrationsverfahrens, da nicht mehr das ursprünglich steife Differentialgleichungssystem, sondern ein verändertes differential-algebraisches Gleichungssystem approximiert wird. Verschiedene Autoren haben gezeigt, dass durch Konvergenzprobleme große Unterschiede in den Verteilungen der Spurenstoffe resultieren können (Hertel u. a., 1993; Jay u. a., 1997). Das QSSA-Verfahren war in der Vergangenheit trotz dieser gravierenden Nachteile bezüglich der Konsistenz sehr beliebt, da es den benötigten Rechenaufwand stark reduzierte. Inzwischen sind aber robustere und schnelle, implizite numerische Integrationsverfahren verfügbar, mit denen das steife Differentialgleichungssystem exakt approximiert werden kann.

Für den RADM-Mechanismus wurde in dieser Arbeit zunächst ein Vergleich von Boxmodellsimulationen (Simulation eines nulldimensionalen Luftchemiemodells in einer diskreten Gitterbox mit einem begrenzten Luftvolumen) mit dem QSSA-Verfahren und einem konsistenten impliziten Verfahren (Hairer und Wanner, 2000) durchgeführt. Dieser Vergleich sollte dazu dienen, Abweichungen zu analysieren und die Notwendigkeit zur Änderung der Implementierung in MCCM aufzuzeigen.

Eine möglichst exakte Vorhersage von Luftschadstoffkonzentrationen z.B. für O_3 erfor-

dert nicht nur ein möglichst exaktes numerisches Integrationsverfahren für das Differentialgleichungssystem des zugrundeliegenden Gasphasenchemiemechanismus. Für eine möglichst exakte Prognose mit einem regionalen Modell ist es besonders wichtig, dass der zugrundeliegende Chemiemechanismus alle notwendigen Spurenstoffe und deren Reaktionspfade beinhaltet. Der in MCCM bisher vorhandene RADM-Mechanismus stammt aus dem RADM-Modell von Chang u. a. (1989). Er wurde Ende der achtziger Jahre entwickelt, um vor allem die Luftverschmutzung durch Photooxidantien, sowie die Entstehung des Sauren Regens in Nordamerika zu untersuchen. Aus dem RADM-Modell wurde von Stockwell u. a. (1990) der RADM2-Gasphasenchemiemechanismus entwickelt, der durch eine komplexere Beschreibung der Reaktionskinetik und durch Hinzunahme weiterer Spurenstoffe gekennzeichnet ist. Inzwischen ist der RADM2-Mechanismus einer der am weit verbreitetsten Chemiemechanismen zur Schadstoffmodellierung. Während der neunziger Jahre ist das Wissen über die troposphärische Ozon-Chemie und deren biogener Vorläufersubstanzen stetig gewachsen, sodass Stockwell u. a. (1997) aus dem RADM2-Mechanismus den RACM-Gasphasenmechanismus entwickelten. Ende der neunziger Jahre wurde auch der MIM (Mainzer Isopren Mechanismus, Poeschl u. a. 2000) veröffentlicht. Mit diesem Mechanismus wird die Isopren-Chemie, sowie die Chemie biogener Vorläufersubstanzen für das Ozon detailliert beschrieben. Die Formulierungen sind teils aus dem *Master Chemical Mechanism* (MCM, Jenkin u. a. 1997, Saunders u. a. 1997), einem besonders umfassenden Chemiemechanismus abgeleitet. Im BMBF Projekt AFO-2000 wurde von Geiger u. a. (2003) der MIM in den RACM-Mechanismus eingebaut (im weiteren RACM-MIM genannt). RACM-MIM ist wesentlich komplexer als RADM, aber bei weitem nicht so ausführlich wie der MCM und somit für den Einsatz in einem regionalen Modell aufgrund des notwendigen Rechenaufwandes noch geeignet. Es wird allgemein erwartet, dass die genaueren und komplexeren Chemiemechanismen RACM und RACM-MIM auch realistischere Spurenstoffverteilungen als der einfachere und ältere RADM-Mechanismus liefern. Um diese Annahme zu untersuchen, wurden ebenfalls Boxmodelle für den RACM- und den RACM-MIM-Mechanismus erstellt. Durch vergleichende Boxmodellsimulationen sollen die Unterschiede zwischen den drei Chemiemechanismen (jeweils mit dem gleichen numerische Integrationsverfahren integriert) anhand der Analyse von resultierenden von Spurenstoffverteilungen gezeigt werden. Eine weitere Aufgabe dieser Arbeit besteht daher darin, die Chemiemechanismen RADM, RACM und RACM-MIM (in Verbindung mit einem impliziten Integrationsverfahren) in das dreidimensionale regionale Modell MCCM zu integrieren und die Leistungsfähigkeit der drei Mechanismen für die Ozon-Simulation im direkten Vergleich untereinander und im Vergleich mit Messdaten zu zeigen.

5.2 Chemiemechanismen - Ein kurzer Überblick und Stand des Wissens

Im weiteren Verlauf der Arbeit werden die folgenden drei Gasphasenchemiemechanismen behandelt:

RADM2 wurde von Stockwell u. a. (1990) aus dem RADM-Modell (Regional Acid Deposition Model, Chang u. a., 1989) entwickelt. Er beinhaltet 63 Spezies, wobei diese sich in

echte Spezies, wie NO , NO_2 oder O_3 und in zusammengefasste Spezies, wie die Kohlenwasserstoffe $HC3$, $HC5$ oder $HC8$ (siehe Chang u. a., 1989; Stockwell u. a., 1990) aufteilen. RADM beinhaltet 21 Photolysereaktionen und 136 chemische Reaktionen höherer Ordnung. Im Weiteren wird mit der Bezeichnung RADM stets der Gasphasenchemiemechanismus von Stockwell u. a. (1990) bezeichnet.

RACM wurde von Stockwell u. a. (1997) am IFU Garmisch-Partenkirchen aus RADM entwickelt. Er beinhaltet 77 Spezies (echte Spezies und zusammengefasste Speziesgruppen), sowie 23 Photolyse- und 214 chemische Reaktionen höherer Ordnung.

RACM-MIM wurde von Geiger u. a. (2003) aus RACM und dem MIM (Mainzer Isopren Mechanismus, Poeschl u. a., 2000) entwickelt. Er beinhaltet 84 Spezies, sowie 23 Photolyse- und 221 chemische Reaktionen höherer Ordnung. Er trägt im Wesentlichen der veränderten Wissenslage über die organischen Ozonvorläufersubstanzen Rechnung, welche im Vergleich zu RACM detaillierter wiedergegeben werden.

Die Grundlage für die mathematische Modellierung der Luftchemie bildet je eine Erhaltungsgleichung für die Massenmischungsverhältnisse c_i der chemischen Spurenstoffe

$$\underbrace{\frac{\partial c_i}{\partial t}}_{(a)} + \underbrace{\frac{\partial (u_j c_i)}{\partial x_j}}_{(b)} = \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_j} \left(K_{jj} \frac{\partial c_i}{\partial x_j} \right)}_{(c)} + \underbrace{R_i}_{(d)} + \underbrace{E_i}_{(e)} + \underbrace{G_i}_{(f)} + \underbrace{D_i}_{(g)} \quad (5.1)$$

mit $i = 1, \dots, n$ (n ist die Anzahl der chemischen Spurenstoffe), u_j ist die Geschwindigkeitskomponente der atmosphärischen Strömung zur Koordinatenrichtung x_j mit $j = 1, 2, 3$, K_{jj} ist der Diffusionskoeffizient (dieser kann orts-, zeit- und richtungsabhängig sein). Eine Erhaltungsgleichung (5.1) für das Massenmischungsverhältnis c_i für den i -ten Spurenstoff besteht damit aus folgenden Termen:

- a) zeitliche Änderung des Massenmischungsverhältnisses c_i ,
- b) Veränderungsrate durch Massenflüsse (Advektion),
- c) Veränderungsrate durch turbulente Diffusionsflüsse,
- d) Änderungsrate aufgrund chemischer Produktion $P(c_i)$ und Abbau $D(c_i)\vec{c}$ durch den Chemiemechanismus,
- e) Quellrate aufgrund von biogenen und antropogenen Emissionen,
- f) Massentransferrate zwischen den Aggregatzuständen,
- g) Deposition an festen und flüssigen Oberflächen.

Die Erhaltungsgleichungen (5.1) werden in MCCM numerisch durch ein Operator-Splitting-Verfahren behandelt. Berücksichtigt man lediglich den Operator-Split-Schritt für die Integration des Chemiemechanismus und bezeichnet man mit \vec{c} den Vektor aller chemischen Spezies eines gegebenen Chemiemechanismus, so erhält man mit $P(\vec{c})$ den Produktionsvektor und mit $D(\vec{c})\vec{c}$ den Abbauvektor für die chemischen Spezies. Das Differentialgleichungssystem

für den Operator-Split-Schritt (Integration des Chemiemechanismus) schreibt sich damit in Produktions- und Abbauschreibweise als

$$\frac{\partial \vec{c}}{\partial t} = P(\vec{c}) - D(\vec{c})\vec{c} \quad (5.2)$$

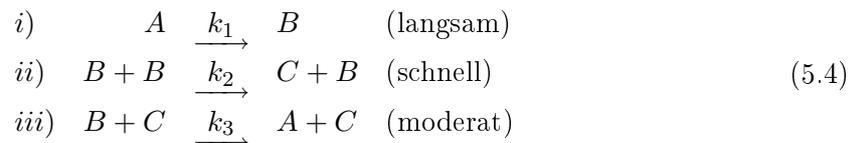
oder in aggregierter Form als

$$\frac{\partial \vec{c}}{\partial t} = A(\vec{c}) \quad (5.3)$$

mit $A(\vec{c})$ als Aggregatfunktion, welche die Differenzen zwischen den Produktions- und Abbautermen enthält. Einige numerische Integrationsverfahren berechnen die Produktions- und Abbauterme aus Gl. (5.2), andere benötigen lediglich die Aggregatfunktion aus Gl. (5.3). Implizite Integrationsverfahren benötigen zur Integration von Gl. (5.3) die Jakobimatrix der Aggregatfunktion

$$J_{A(\vec{c})} = \left[\frac{\partial A_i}{\partial c_j} \right]_{i,j}$$

Die mathematische Modellierung eines Chemiemechanismus wird hier anhand des einfachen Problems nach Robertson (Hairer und Wanner, 2000) gezeigt. Man betrachtet dazu folgende drei Reaktionsgleichungen für die chemischen Spezies A , B und C



$[A]$ gibt die Konzentration der Spezies A in $\left[\frac{\text{mol}}{\text{cm}^3}\right]$ an und k_i die Ratenkonstanten für die Reaktionen $i = 1, 2, 3$ ($k_1 = 0.04$, $k_2 = 3 \cdot 10^7$ und $k_3 = 10^4$). k_i hat die Dimension $\left[\frac{\text{cm}^3}{\text{mol} \cdot \text{s}}\right]$. Das entsprechende Differentialgleichungssystem zu (5.4) erhält man nun durch Aufsummieren der Produktions- und Abbauterme in Gl. (5.4)

$$\frac{d[A]}{dt} = -k_1 [A] + k_3 [B] [C] \quad (5.5)$$

$$\frac{d[B]}{dt} = k_1 [A] - k_3 [B] [C] - k_2 [B]^2 \quad (5.6)$$

$$\frac{d[C]}{dt} = k_2 [B]^2 \quad (5.7)$$

Für A erhält man als Produktionsterm $P(A) = k_3 [B] [C]$ und als Abbauterm $D(A) = -k_1 [A]$. Für B und C folgt dies äquivalent. Das entstandene Gleichungssystem (5.5) - (5.7) ist ein homogenes System gewöhnlicher Differentialgleichungen erster Ordnung. Man bezeichnet ein gewöhnliches Differentialgleichungssystem (DGLS) welches aus einem Reaktionssystem wie in (5.4) gegeben, als steifes System (Jacobson, 1999), wenn sich die Lebensdauer der beteiligten Reaktionspartner stark voneinander unterscheiden (wie in den Gleichungen (5.4) angedeutet). Schreibt man das Differentialgleichungssystem 5.5 - 5.7 in Vektorform

$$\frac{\partial \vec{c}}{\partial t} = f(\vec{c})$$

wobei $f(\vec{c})$ eine Vektorfunktion ist, so kann man folgende äquivalente Aussage treffen: "Bei steifen Differentialgleichungssystemen liegen die Eigenwerte der Jacobimatrix

$$J = \frac{\partial f}{\partial t} \quad (5.8)$$

weit auseinander" (Hairer und Wanner, 2000).

Numerische Integrationsverfahren

Es gibt viele Vorgehensweisen, um die kinetischen Gleichungen (5.5) - (5.7) in einem mathematischen Modell numerisch zu integrieren. Für die Luftchemiemodellierung sind die folgenden drei Methoden in der Praxis die am häufigsten gewählten:

Festkodierte Methode Dabei werden die Produktions- und Abbauterme für die Reaktionen in einer vorgegebenen Programmiersprache kodiert. Dies kann für eine bestimmte Computerplattform durch gezieltes Ausnutzen deren Eigenschaften sehr effizient durchgeführt werden. Der Hauptnachteil liegt in der Tatsache, dass eine Änderung im Chemiemechanismus (z.B. zusätzliche oder veränderte Reaktionsgleichungen) faktisch eine nahezu komplette Neuprogrammierung der Produktions- und Abbauterme erforderlich machen kann. Dies resultiert in einem erheblichen Arbeitsaufwand und ist zudem noch extrem fehleranfällig. Für die hier verwendeten Mechanismen mit mehreren hundert Gleichungen wird diese Vorgehensweise damit sehr unzuverlässig. Beispiele für diese Vorgehensweise sind STEM I und II von Carmichael u. a. (1986), sowie die QSSA-Löser für RADM (Chang u. a., 1989) und RACM (Stockwell u. a., 1997).

Integrierte Methode Dabei werden die Definitionen der Reaktionsgleichungen zu Beginn der Simulation aus externer Quelle eingelesen und die entsprechenden Produktions- und Abbauterme werden während der Simulation aufgrund der aktuellen Konzentrationen gebildet. Damit wird der Nachteil der mangelnden Flexibilität von festkodierten Methoden vermieden. Dies geschieht allerdings auf Kosten der Effizienz, da das Gleichungssystem zu Beginn der Simulation im Computer abgebildet werden muss und in der Regel die numerischen Eigenschaften des entstehenden Gleichungssystems nicht ausgenutzt werden. Ein Beispiel für diese Vorgehensweise ist LARKIN (Nowak, 1982).

Preprocessing Methode Hier ist die Definition des Mechanismus ebenfalls in einer spezifischen Formulierung in einer externen Quelle (Datei) definiert. Diese wird durch ein Preprocessor-Programm eingelesen und daraus entsteht ein hochoptimiertes Programm zur numerischen Integration des zugrunde liegenden Mechanismus, welches auch die Eigenschaft ausnutzt, dass die resultierenden Matrizen nur dünn besetzt sind (d.h. sehr viele Elemente der Matrix sind Null). Die numerische Effizienz des resultierenden Modells entspricht durch die verwendeten hochoptimierten Lineare-Algebra-Unterprogramme der optimierten festkodierten Methode, allerdings bleibt die volle Flexibilität bezüglich Änderungen am Reaktionsmechanismus erhalten. Weiter können die verwendeten numerischen Methoden evaluiert werden (zum Beispiel durch die Verwendung eines DGLS, dessen analytische Lösung bekannt ist). Die Preprocessing-Methode wurde erstmals bei CHEMKIN (Kee u. a., 1989) und SBOX (Seefeld und Stockwell, 1999)

angewendet. Jedoch waren die numerischen Integrationsmethoden noch nicht für steife Differentialgleichungssysteme optimiert und sie nutzten die dünnbesetzte Struktur der Matrizen nur sehr ungenügend aus. Das im Folgenden noch näher beschriebene Programmpaket KPP (Kinetic Preprocessor, Sandu u. a., 2003) ist dagegen einer der modernsten Vertreter dieser automatischen Codegenerierungs-Werkzeuge. Es stellt eine Vielzahl von optimierten impliziten numerischen Integrationsverfahren für steife DGLS zur Verfügung, nützt die dünnbesetzte Struktur der Matrizen aus und liefert den Programmcode in einer sehr effizienten Hochsprache (Fortran90 oder C). KPP kann so modifiziert werden, dass es sich auf der niedrigsten Software-Ebene beim Übersetzen des MCCM-Programmcodes in die MCCM-Quellcode-Struktur einpasst und somit jeden beliebigen Chemiemechanismus für MCCM als optionale Subroutine liefert.

RADM-QSSA-Integrationsverfahren in MCCM

Der bisherige Gasphasenchemiemechanismus in MCCM ist RADM in Verbindung mit einem QSSA-Löser (Chang u. a., 1989; Hesstvedt u. a., 1978). Dieser verwendet zur effizienten Integration einen chemisch motivierten Ansatz, um die Steifigkeit des Differentialgleichungssystems zu verringern. Ausgehend vom Operator-Splitting-Schritt für die Integration des Chemiemechanismus in Gl. 5.1, erhält man die Differentialgleichung des Chemiemechanismus in Produktions- und Abbauschreibweise wie in Gl. (5.2) gezeigt mit dem Produktionsterm $P(\vec{c})$ und dem Abbauterm $D(\vec{c})\vec{c}$. Unter der Annahme dass $P(\vec{c})$ und $D(\vec{c})\vec{c}$ zeitlich konstant sind, hat diese für den nächsten Zeitschritt $t + \Delta t$ die analytisch diskrete Lösung in der Form einer Exponentialfunktion

$$c_i(t + \Delta t) \approx \frac{P_i(t)}{D_i(t)} - \left(\frac{P_i(t)}{D_i(t)} - c_i(t) \right) e^{-D_i \Delta t} \quad (5.9)$$

mit der Zeitschrittweite Δt . Unterscheidet man nun die chemischen Spezies nach ihrer Lebensdauer, so erhält man folgenden Formalismus:

- Für Spezies c_i mit einer sehr langen Lebensdauer, also sehr kleinem Abbauterm D_i , kann der Term $e^{-D_i \Delta t}$ in erster Näherung durch $1 - D_i \Delta t$ ersetzt werden, sodass aus Gl. (5.9) die explizite Euler Formel wird

$$c_i(t + \Delta t) \approx c_i + (P_i - D_i c_i(t)) \Delta t \quad i \in I_l \quad (5.10)$$

mit I_l als Indexmenge der langlebigen Spezies.

- Für Spezies c_i mit einer sehr kurzen Lebensdauer, also sehr großem Abbauterm D_i , kann der Term $e^{-D_i \Delta t}$ durch 0 approximiert werden, sodass aus Gl. (5.9) folgende explizite Gleichung entsteht

$$c_i(t + \Delta t) \approx \frac{P_i(t + \Delta t)}{D_i(t + \Delta t)} \quad i \in I_k \quad (5.11)$$

mit der Indexmenge I_k der sehr kurzlebigen Spezies. Das QSSA-Verfahren nimmt an, dass diese sehr kurzlebigen Spurenstoffe, sobald sie erzeugt werden, augenblicklich durch einen ihrer Reaktionspfade umgewandelt werden. Ihre Abbaurrate D_i ist damit gleich

ihrer Produktionsrate P_i . Damit reduziert sich die gewöhnliche Differentialgleichung für den kurzlebigen Spurenstoff c_i zu einer (nichtlinearen) algebraischen Gleichung

$$0 = P(c_i) - D(c_i)c_i \quad i \in I_l \quad (5.12)$$

Dies ist nicht gleichbedeutend mit einer zeitlichen Unveränderbarkeit des Spurenstoffes c_i , sondern dieser wird für den jeweiligen Zeitschritt aus dem Gleichgewicht zwischen aktuellem Produktions- und Abbauterm berechnet.

- Für Spezies c_i mit einer mittleren Lebensdauer gilt Gl. (5.9)

$$c_i(t + \Delta t) \approx \frac{P_i}{D_i} - \left(\frac{P_i}{D_i} - c_i(t) \right) e^{-D_i \Delta t} \quad i \in I_m \quad (5.13)$$

mit I_m als der Indexmenge der Spezies mit mittlerer Lebensdauer.

Man erhält damit für das QSSA-Verfahren das diskrete differential-algebraische Gleichungssystem (DAGLS) (5.10), (5.11) und (5.13). Mit QSSA wird lediglich ein Verfahren skizziert. Wendet man es für einen konkreten Chemiemechanismus an, so muss genau spezifiziert werden, wie die oben beschriebenen Indexmengen definiert sind, d.h. welche Spezies eine kurze, mittlere oder eine lange Lebensdauer besitzen. Das resultierende System (5.11) besteht in der Regel aus nichtlinearen algebraischen Gleichungen und es wird in MCCM durch eine Fixpunktiteration approximiert. Je nach Mechanismus kommen noch weitere Gleichungen zur Fixpunktiteration hinzu, welche durch Bündelung von Speziesgruppen (Lumping) für lokale Massenerhaltung dieser Spurenstoffe sorgen (Jay u. a., 1997). Im RADM-QSSA (Stockwell u. a., 1990; Chang u. a., 1989; Hesstvedt u. a., 1978) werden die Größen NO_x , HO_x , N_2N_3 und PAO_3 durch die folgenden Gleichungen

$$\begin{aligned} NO_x &= NO + NO_2 \\ HO_x &= OH + HO_2 \\ N_2N_3 &= N_2O_5 + NO_3 \\ PAO_3 &= PAN + ACO_3 \end{aligned} \quad (5.14)$$

zu Beginn jedes Zeitschrittes definiert. Diese Gleichungen stellen eine lineare Transformation dar, welche das Gleichungssystem stabilisieren und Massenerhaltung für die zusammengefassten Größen garantieren sollen. Daraus werden anschließend die Größen NO , OH , N_2O_5 und PAN mit Hilfe der Gleichungen (5.14) errechnet. Ohne diese Kopplung der Größen konvergiert das QSSA-Verfahren schlecht (Hertel u. a., 1993; Jay u. a., 1997). Die Definition der Gleichungen (5.14) ist chemisch motiviert. Das Verfahren konvergiert in der Regel zu einer Lösung des DAGLS (5.10), (5.11) und (5.13), welches selbst nur eine Approximation zum konsistenten Differentialgleichungssystem des Chemiemechanismus (5.9) darstellt. Die Fixpunktiteration im RADM-QSSA iteriert aus Effizienzgründen lediglich dreimal über die Gl. (5.11) und (5.14), wobei eine zweite Fixpunktiteration in jedem äußeren Iterationsschritt nochmals über die Gl. (5.11) iteriert. Die Fixpunktiteration wird aus Effizienzgründen danach ohne Prüfung auf Konvergenz beendet.

Es stellen sich natürlich einige Fragen bezüglich der Effizienz und der Genauigkeit des QSSA Verfahrens für einen Chemiemechanismus. Der Vorteil der schnellen numerischen Integration wird allerdings durch eine Inkonsistenz vor allem bei der Berechnung der Radikale erkauft. Da Photooxidanzien wie *NO* direkt mit Radikalen wie *OH* reagieren, werden auch diese indirekt vom QSSA-Verfahren beeinflusst. Jay u. a. (1997) zeigen, dass für bestimmte Spurenstoffe eines Chemiemechanismus der relative Fehler durchaus zwischen 10 und 50 % liegen kann. Weitere Informationen zum QSSA-Verfahren findet man in Hesstvedt u. a. (1978), Sandu u. a. (1996), Sandu u. a. (1997) und Hertel u. a. (1993). Zudem zeigen QSSA-Verfahren einen weiteren beachtlichen Nachteil: Sie sind nicht generell für einen beliebigen Chemiemechanismus anwendbar, denn sie erfordern vom Modellierer ein sehr detailliertes chemisches Fachwissen über den zugrunde liegenden Mechanismus.

Moderne Integrationsverfahren für Chemiemechanismen

Aufgrund der vorangegangenen Überlegungen wurde der KPP Preprocessor (Sandu u. a., 2003) zur mathematischen Modellierung der Chemiemechanismen ausgewählt. Dieser bietet ein Höchstmaß an Flexibilität und stellt zahlreiche effiziente numerische Integrationsverfahren für steife DGLS zur Verfügung:

Rosenbrock-Verfahren Die Rosenbrock Verfahren basieren auf der Vermeidung von nichtlinearen GLS, wie sie z.B. bei impliziten Runge-Kutta Verfahren entstehen. Diese werden linearisiert und somit durch eine Sequenz von linearen Gleichungssystemen ersetzt. Ausgehend von dem diagonal impliziten Runge-Kutta-Verfahren

$$\begin{aligned} k_i &= hf \left(y_n + \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij}k_j + a_{ii}k_i \right), \quad i = 1, \dots, s \\ y_{n+1} &= y_n + \sum_{i=1}^s b_i k_i \end{aligned} \quad (5.15)$$

wird durch die Linearisierung

$$\begin{aligned} k_i &= hf(g_i) + hf'(g_i)a_{ii}k_i \\ g_i &= y_n + \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij}k_j \end{aligned} \quad (5.16)$$

Gl. (5.16) stellt eine Newton Iteration für jede Stufe s von (5.15) dar. Die diskrete Jakobimatrix $J = f'(g_i)$ wird durch $J = f'(y_0)$ approximiert, sodass das Rosenbrock-Verfahren schließlich folgende allgemeine Form erhält (Rosenbrock, 1962; Hairer und Wanner, 2000):

$$\begin{aligned} k_i &= hf \left(y_n + \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij}k_j \right) + hJ \sum_{j=1}^i \gamma_{ij}k_j, \quad i = 1, \dots, s \\ y_{n+1} &= y_n + \sum_{j=1}^s b_j k_j \end{aligned} \quad (5.17)$$

Im Speziellen stehen aus Hairer und Wanner (2000) folgende Versionen zur Verfügung:

ROS3 dreistufige Rosenbrock Methode 3. Ordnung

ROS4 vierstufige Rosenbrock Methode 4. Ordnung

RODAS3 dreistufige "stiffly accurate" Rosenbrock Methode 3. Ordnung

SEULEX basiert auf der Extrapolation der linear impliziten Euler Methode (Stiff linearly implicate EULER EXtrapolation method) nach Deuffhard (1985). Dabei wird für $y' = f(x, y)$, $y(x_0) = y_0$ ein fester Basiszeitschritt $H > 0$ gewählt. Danach werden positive ganze Zahlen n_i , mit $n_1 < n_2 < n_3 < \dots$ ausgewählt, welche die korrespondierenden Zeitschritte h_i , $h_1 > h_2 > h_3 > \dots$ mit $h_i = H/n_i$ definieren. Ausgehend von der linear impliziten Euler Methode der Ordnung p

$$(I - Jh)(y_{n+1} - y_n) = hf(x_n, y_n)$$

werden nun in n_i Zeitschritte mit der Zeitschrittweite h_i

$$T_{i,1} := y_{h_i}(x_0 + H)$$

berechnet. Die numerische Lösung wird schließlich nach Hairer und Wanner (2000) über folgende Extrapolationsformel für $x_0 + H$ berechnet

$$T_{j,k+1} = T_{j,k} + \frac{T_{j,k} - T_{j-1,k}}{(n_j/n_{j-k}) - 1}$$

Die Approximation ist nach Hairer und Wanner (2000) von der Ordnung $p + k - 1$.

SDIRK ist eine diagonal implizite Runge-Kutta Methode (singly diagonally implicate Runge-Kutta method, Hairer und Wanner, 2000). Dieses Verfahren benötigt für die numerische Integration im Vergleich zu den zuvor genannten Verfahren eine wesentlich längere Rechenzeit und wurde deshalb nicht weiter untersucht.

Nach Hairer und Wanner (2000) gibt es noch weitere geeignete implizite Integrationsverfahren für steife Differentialgleichungssysteme. Allerdings empfehlen sie für Probleme wie (5.4) bereits die Integrationsverfahren ROS, RODAS und SEULEX.

5.3 Evaluierungsmethoden für regionale Luftchemiesimulationen

KPP verwendet Templates und Programm-Module zum Erzeugen eines Boxmodells für den Mechanismus. Die Idee bei der hier aufgezeigten Vorgehensweise ist, diese Programmteile so anzupassen, dass das resultierende Boxmodell für den Modellvergleich bereits vollständig vorbereitet ist. Dazu werden die Gleichungen zur Berechnung der Photolyseraten und der Ratenkonstanten der Reaktionskinetik für die drei Chemiemechanismen in KPP integriert. In das Hauptprogramm zur Steuerung der Integration wird eine Schnittstelle implementiert, um so z.B. auch die Auswirkungen zeitlich variierender Emissionen auf die Simulationsergebnisse berücksichtigen zu können.

Durch das beschriebene Vorgehen beim Einsatz von KPP können nulldimensionale Boxmodelle, die identische Rand- und Anfangswerte sowie identische numerische Integrationsverfahren verwenden, automatisch erzeugt werden. Dies ist die Grundvoraussetzung für einen konsistenten Boxmodellvergleich von verschiedenen Chemiemechanismen.

Weiterhin wurde KPP so modifiziert, dass es für einen beliebigen Mechanismus ein Fortran Programm liefert, welches ohne weitere Modifikationen als optionales Unterprogramm in MCCM integriert werden kann. Somit steht erstmals ein automatisches Programm-Generierungswerkzeug zur Verfügung, welches jeden beliebigen Chemiemechanismus als komplettes Software-Paket für MCCM automatisch erzeugt. Damit ist die Grundlage für konsistente Vergleiche mit dem regionalen Modell, aber auch für eventuelle Erweiterungen der MCCM-Gasphasenchemie gelegt. Das Verfahren wird hier auf die drei Chemiemechanismen RADM, RACM und RACM-MIM angewendet. In MCCM selbst sind damit nur noch wenige mechanismus spezifische Modifikationen notwendig. Dies sind insbesondere die Initialisierung der chemischen Spurenstoffe, die Behandlung der Anfangs- und Randbedingungen sowie der Emissions- und Depositionsprozesse. Prozesse wie die Advektion oder die turbulente Diffusion sind generisch gestaltet, d.h. diese Prozesse laufen hier für alle Spurenstoffe identisch ab.

Vergleichende dreidimensionale Luftchemiesimulationen

Verschiedene Publikationen (Kuhn u. a. 1998; Sandu u. a. 1996, 1997; Jay u. a. 1997; Jimenez u. a. 2003) haben gezeigt, dass konsistente Integrationsverfahren dem QSSA-Verfahren vorzuziehen sind. Um einen konsistenten Vergleich der Chemiemechanismen zu gewährleisten, wird deshalb der MCCM-RADM-QSSA Mechanismus für die vorliegende Untersuchung nicht verwendet. Statt dessen wird - wie in den oben aufgelisteten Publikationen empfohlen - der original RADM-Mechanismus (Stockwell u. a., 1990) zusammen mit einem konsistenten impliziten Integrationsverfahren benutzt.

Aufgrund der Tests zur Auswahl eines geeigneten Integrationsverfahrens (siehe Abschnitt 5.4.1) wurden die Chemiemechanismen RADM, RACM und RACM-MIM mit dem Rosenbrock-Löser ROS4 in MCCM neu implementiert. Dieses Verfahren zeigte bei den Boxmodellsimulationen für alle drei Mechanismen auch bei größeren Zeitschritten und moderaten Genauigkeitsanforderungen an die iterativen Gleichungslöser eine gute numerische Effizienz und ein stabiles Verhalten.

Zur Modell-Evaluierung wird mit den drei Mechanismen eine Photosmog-Episode aus dem Sommer 2003 vom 1. Juli bis 31. August nachsimuliert. Das Modellgebiet und die Simulationsparameter sind im Abb. 2.2 und in Tab. 4.1 in Abschnitt 4.2.2 beschrieben.

Die hier angewendeten Methoden für die Evaluierung der regionalen Simulationen anhand von Beobachtungsdaten, wurden bereits im Abschnitt 4.2.2 beschrieben.

5.4 Boxmodell-Vergleich verschiedener Integrationsverfahren und Chemiemechanismen

Zur Evaluierung der numerischen Integrationsverfahren durch den Vergleich von Luftschadstoffkonzentrationen müssen verschiedene Szenarien definiert werden. Kriterien für geeignete Szenarien sind bei Poppe u. a. (2001) beschrieben. Für diese Untersuchung wurde hieraus das URBAN-Szenario ausgewählt, da es im Wesentlichen den Luftqualitätszustand in einem urbanen Gebiet beschreibt und damit typisch für den größten Teil der regionalen MCCM-Simulationen ist.

Tabelle 5.1: Meteorologische Parameter für das Szenario "Urban" aus Poppe u. a. (2001)

Größe	Wert	Einheit	Größe	Wert	Einheit
Höhe NN	0.0	[m]	Luftteilchendichte	$2.46 \cdot 10^{19}$	<i>Teilchen/cm³</i>
Temperatur	298.0	[k]	Luftfeuchte	1.0	%v/v
Druck	1013.25	[mbar]			

Tabelle 5.2: Anfangsbedingungen für das Szenario Urban. Anfangskonzentrationen [ppm] wurden den RADM-Klassen zugeteilt.

Nr.	Spezies	Formel	RADM Nr.	RADM Name	Anfangswert
1	Stickstoff	N_2	20	N2	10^6
2	Sauerstoff	O_2	19	O2	$2 \cdot 10^5$
3	Wasserstoff	H_2	14	H2	0.5
4	Wasser	H_2O	21	H2O	$1.3 \cdot 10^4$
5	Ozon	O_3	8	O3	0.03
6	Stickstoffmonoxid	NO	2	NO2	0.0001
7	Stickstoffdioxid	NO_2	3	NO2	0.0001
8	Salpetersäure	HNO_3	7	HNO3	0.0015
9	Kohlenmonoxid	CO	12	CO	0.1
10	Kohlendioxid	CO_2	13	CO2	350
11	Methan	CH_4	22	CH4	1.7
12	Isopren		30	ISO	0
13	Wasserstoff	H_2	14	H2	0.5
14	Wasserstoffperoxid	H_2O_2	9	HCHO	0.002
15	Formaldehyd	$HCHO$	34	ALD	0.001
16	Nicht-Methan-Kohlenw.	NMHC			0
17	Schwefeldioxid	SO_2	24	SO2	0
18	HCl	HCl	-		0
19	Amoniak NH3	NH_3	-		0.0007

Tabelle 5.3: Nach RADM-Klassen (Chang u. a., 1989; Stockwell u. a., 1990) aufsummierte Emissionen für das Szenario Urban. Gesamtemission siehe Tabelle 5.4.

Spezies-Nr.	Klasse	Emission [ppm/s]	Nr.	Klasse	Emission [ppm/s]
2	NO	$2.2358 \cdot 10^{-7}$	29	OLI	$4.2919 \cdot 10^{-9}$
10	SO2	$8.9431 \cdot 10^{-9}$	30	ISO	$5.3241 \cdot 10^{-8}$
23	ETH	$4.1580 \cdot 10^{-9}$	31	TOL	$1.1372 \cdot 10^{-8}$
24	HC3	$3.7848 \cdot 10^{-8}$	33	XYL	$8.9628 \cdot 10^{-9}$
25	HC5	$1.3042 \cdot 10^{-8}$	34	HCHO	$2.3988 \cdot 10^{-9}$
26	HC8	$7.2630 \cdot 10^{-9}$	35	ALD	$6.2462 \cdot 10^{-10}$
27	OL2	$7.8819 \cdot 10^{-9}$	36	KET	$7.6272 \cdot 10^{-9}$
28	OLT	$9.2018 \cdot 10^{-9}$			

Das ausgewählte Szenario stellt eine fiktive Photosmogepisode von 5 Tagen Dauer dar. Die meteorologischen Randbedingungen sind in Tab. 5.1 und die Anfangsbedingungen für die chemischen Spurenstoffe in Tab. 5.2 gegeben. Die Emissionen für das Szenario URBAN sind ursprünglich in wesentlich mehr Stoffgruppen aufgegliedert, als in den verwendeten Mechanismen enthalten sind (Tab. 5.4). Die Emissionen wurden daher entsprechend der Stoffgruppen der Mechanismen zusammengefasst. Für RADM sind die zusammengefassten Emissionen in

Tabelle 5.4: Gesamtemissionen für das Szenario Urban

Nr.	Klasse	Emission [ppm/s]	Nr.	Klasse	Emission [ppm/s]
23	ETH	1.386e-14	29	OLI	1.430e-14
24	HC3	1.261e-13	31	TOL	3.790e-14
25	HC5	4.347e-14	33	XYL	2.987e-14
26	HC8	2.420e-14	34	HCHO	7.996e-15
27	OL2	2.627e-14	35	ALD	2.082e-15
28	OLT	3.067e-14	36	KET	2.542e-14

Tab. 5.3 dargestellt.

5.4.1 Evaluierung der numerischen Integrationsverfahren

Tab. 5.5 zeigt die benötigte Rechenzeit für die verwendeten numerischen Verfahren bei identischen Genauigkeitsanforderungen für die iterativen Gleichungslöser. Die Simulationen zeigen, dass das Extrapolationsverfahren SEULEX nach Hairer und Wanner (2000) den Gasphasenchemiemechanismus RADM am schnellsten numerisch integriert. Ebenfalls sehr schnell approximiert das Rosenbrock Verfahren RODAS3 nach Hairer und Wanner (2000) das Differentialgleichungssystem.

Die Ergebnisse in Tab. 5.5 geben allerdings lediglich die Effizienz der Verfahren für die gewählte numerische Toleranz der iterativen Verfahren und den globalen Integrationszeitschritt wieder. Das SEULEX-Verfahren hat aber nach Hairer und Wanner (2000) Probleme mit großen Integrationszeitschritten, wie sie in MCCM durchaus vorkommen. Durch ein Operator-Splitting kann der Integrationszeitschritt der Reaktionskinetik zudem bis zu fünfmal größer werden, als der meteorologische Zeitschritt. Numerische Experimente im Boxmodell haben gezeigt, dass das SEULEX-Verfahren für moderate Fehlertoleranzen mit Zeitschritten von über 300 Sekunden tatsächlich instabil werden kann. Diese Gefahr ist bei den Rosenbrock-Verfahren geringer, wie ein Test auf Robustheit der Integrationsverfahrens gezeigt hat, weisen sie ein stabileres Verhalten selbst für große Integrationszeitschritte auf. Insgesamt vertrug der ROS4-Löser die größten Zeitschritte bei den geringsten Fehlertoleranzen ohne dabei instabil zu werden.

Die Abb. 5.1 zeigt Zeitreihen für ausgewählte chemische Spurenstoffe wie bei Poppe u. a. (2001), die zum einen mit dem QSSA-Verfahren und zum anderen mit den neuen impliziten Integrationsverfahren berechnet wurden. Zwischen den impliziten Integrationsverfahren waren keine nennenswerten Unterschiede festzustellen und die simulierten Tagesgänge der Konzentrationen stimmen mit Poppe u. a. (2001) überein. Das QSSA-Verfahren zeigt dage-

Tabelle 5.5: Rechenzeit in Sekunden für den Testfall URBAN für die Mechanismen RADM, RACM und RACM-MIM für die entsprechenden numerischen Integrationsverfahren. Die Rechenzeit wurde als Mittelwert aus zehn Programmläufen ermittelt.

	QSSA	ROS3	ROS4	RODAS3	SEULEX	SDIRK
RADM	2.57	2.49	3.15	1.38	1.04	4.07
RACM		4.21	5.30	2.40	1.60	7.17
RACMMIM		4.11	5.34	2.47	1.66	7.67

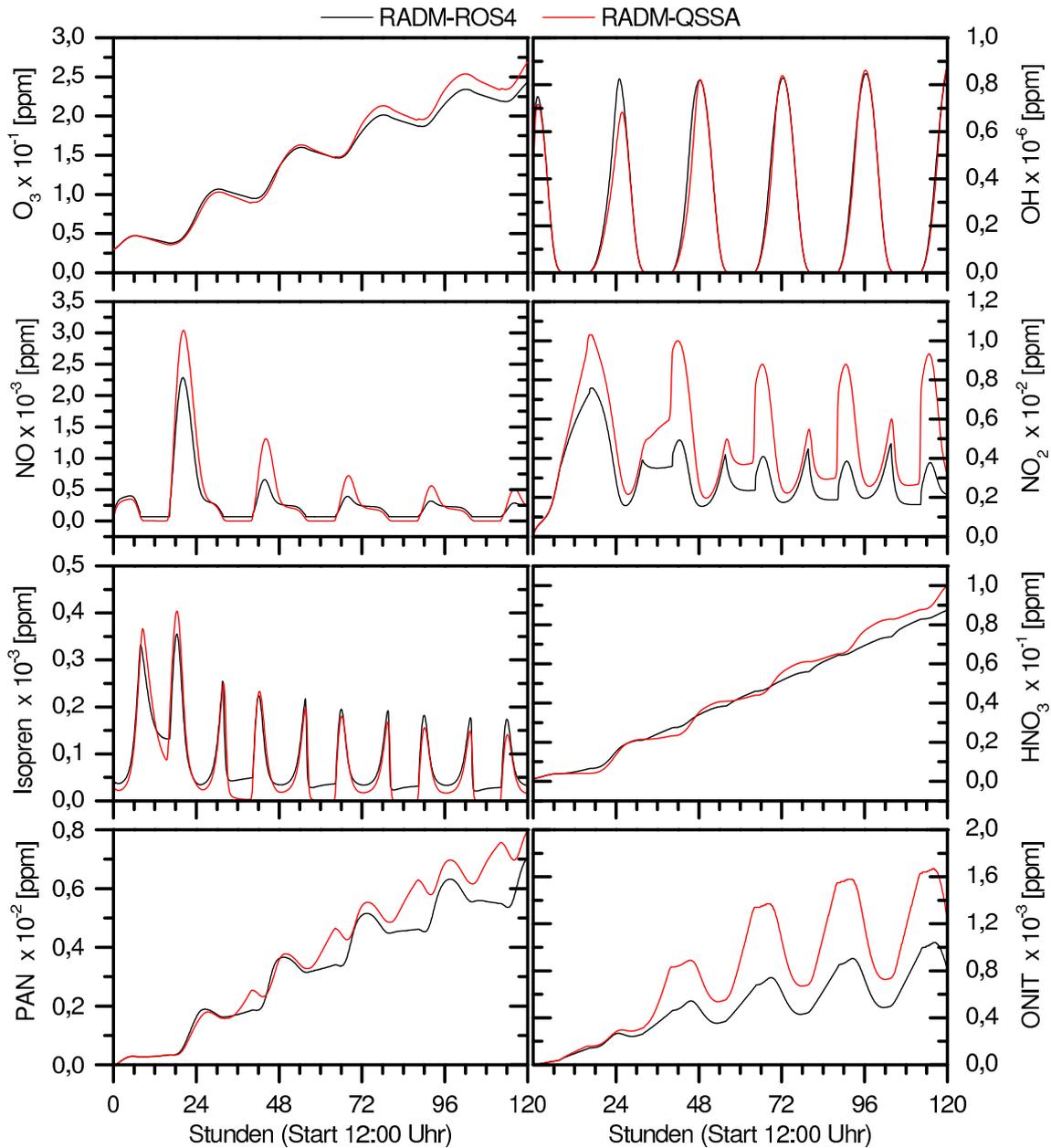


Abbildung 5.1: Zeitreihen (über 120 Stunden, Start 12 Uhr mittags) für ausgewählte Spurenstoffe für den Testfall URBAN für den Gasphasenmechanismus RADM: Vergleich zwischen dem MCCM-QSSA und dem impliziten Integrationsverfahren ROS4 nach Hairer und Wanner (2000).

gen für die Tagesgänge der meisten Spurenstoffe - wie erwartet - teils große Unterschiede zu den impliziten Verfahren und zu Poppe u. a. (2001). Für die Spurenstoffe NO , NO_2 , HNO_3 und PAN sind die Abweichungen in der Amplitude und Frequenz deutlich. Die Unterschiede in den NO_x -Konzentrationen ($NO_x = NO + NO_2$) variieren z.B. nachts zwischen ein und vier ppb, dies entspricht einer Abweichung von 20 bis 100 %. Für die Spurenstoffe O_3 , HNO_3 und PAN ist zu beachten, dass der Unterschied der Zeitreihen mit fortschreitender Zeit immer größer wird, wobei die Frequenz erhalten bleibt.

Die Unterschiede zwischen dem QSSA- und den impliziten Verfahren sind auf die Inkonsistenz des QSSA-Verfahrens bezüglich des Gleichungssystems (5.9) zurückzuführen. Scheinbar

wird durch das QSSA-Verfahren nachts wesentlich mehr Stickstoff in den Spurenstoffen NO , NO_2 , HNO_3 und PAN angereichert. Dies kann durch die nichtlinearen Reaktionsmechanismen große Auswirkungen auf Simulationsergebnisse von sekundären Luftschadstoffen wie O_3 haben.

Die in den Boxmodellsimulationen gezeigten Unterschiede durch die Verwendung unterschiedlicher Integrationsverfahren für den selben Chemiemechanismus sind gravierend und nicht akzeptabel. Kuhn u. a. (1998) beschreibt in Boxmodellvergleichen bereits Unterschiede zwischen den verschiedenen Löser-Varianten für den RADM-Mechanismus (QSSA, Gear, impliziter Euler) und kommt ebenfalls zu dem Schluss, dass stets ein exakt integrierendes Verfahren bevorzugt werden sollte, sofern ausreichend Rechenleistung zur Verfügung steht.

5.4.2 Vergleich von Chemiemechanismen

Im zweiten Teil des Vergleichs der Boxmodellsimulationen werden die Unterschiede zwischen den drei Gasphasenchemie modellen RADM, RACM und RACM-MIM untersucht. Bereits in der Einleitung zum Kapitel 5 wurde die Hypothese formuliert, dass neuere Mechanismen wie RACM oder RACM-MIM für Photooxidantien und die Ozonchemie realistischere Ergebnisse liefern sollten als der alte RADM-Mechanismus. Hier soll dieser Unterschied zwischen den Mechanismen analysiert werden. Die Boxmodellsimulationen (Poppe u. a., 2001) liefern dabei die Anfangs- und Randbedingungen.

Für den Vergleich wurde für jeden Chemiemechanismus (RADM, RACM und RACM-MIM) ein Boxmodell mit dem numerischen Integrationsverfahren ROS4 erstellt. Bei der Anwendung auf den Testfall URBAN (Poppe u. a., 2001) wurde dabei ein globaler Integrationszeitschritt von 300 Sekunden gewählt.

Bevor die Ergebnisse der Simulationen diskutiert werden, soll auf die Problematik derartiger Modellvergleiche hingewiesen werden. Jimenez u. a. (2003) und Oreskes u. a. (1994) machen darauf aufmerksam, dass ein Chemiemodell sich nie hundertprozentig validieren lässt. Es existiert weder eine analytische Lösung für das jeweilige Differentialgleichungssystem, noch kann man die Ergebnisse direkt mit Experimenten und Messungen vergleichen, da es selbst in einer Smog-Kammer nahezu unmöglich ist, die Simulationsbedingungen für einen Chemiemechanismus vollständig nachzubilden. Jimenez u. a. (2003) benutzen Mittelwerte zur Beurteilung der Chemie Modelle, während Poppe u. a. (2001) und Geiger u. a. (2003) Tagesgänge für Spurenstoffe über 120 Stunden vergleichen. Hier sollen ebenfalls die Tagesgänge für Spurenstoffe über 120 Stunden verglichen werden.

Die drei Mechanismen zeigen für O_3 nur einen geringen Unterschied in der Amplitude der Zeitreihen, wobei der Tagesgang von allen drei Mechanismen übereinstimmend wiedergegeben wird. RACM und RACM-MIM erzeugen tagsüber leicht höhere O_3 -Konzentrationen als RADM. Für NO und NO_2 treten dagegen Unterschiede in der Amplitude von bis zu 100% auf. Am größten sind die Unterschiede für PAN (Peroxyacetylnitrat). Hier steigt allerdings bei gleichbleibender Frequenz die Amplitude der Zeitreihe für RADM wesentlich stärker an, als dies für die Simulationen mit RACM und RACM-MIM der Fall ist. Die Ursache dafür liegt darin, dass RADM das PAN mit 3 Reaktionsgleichungen modelliert, während es im RACM bereits wesentlich komplexer mit 5 Reaktionsgleichungen modelliert wird. RACM-

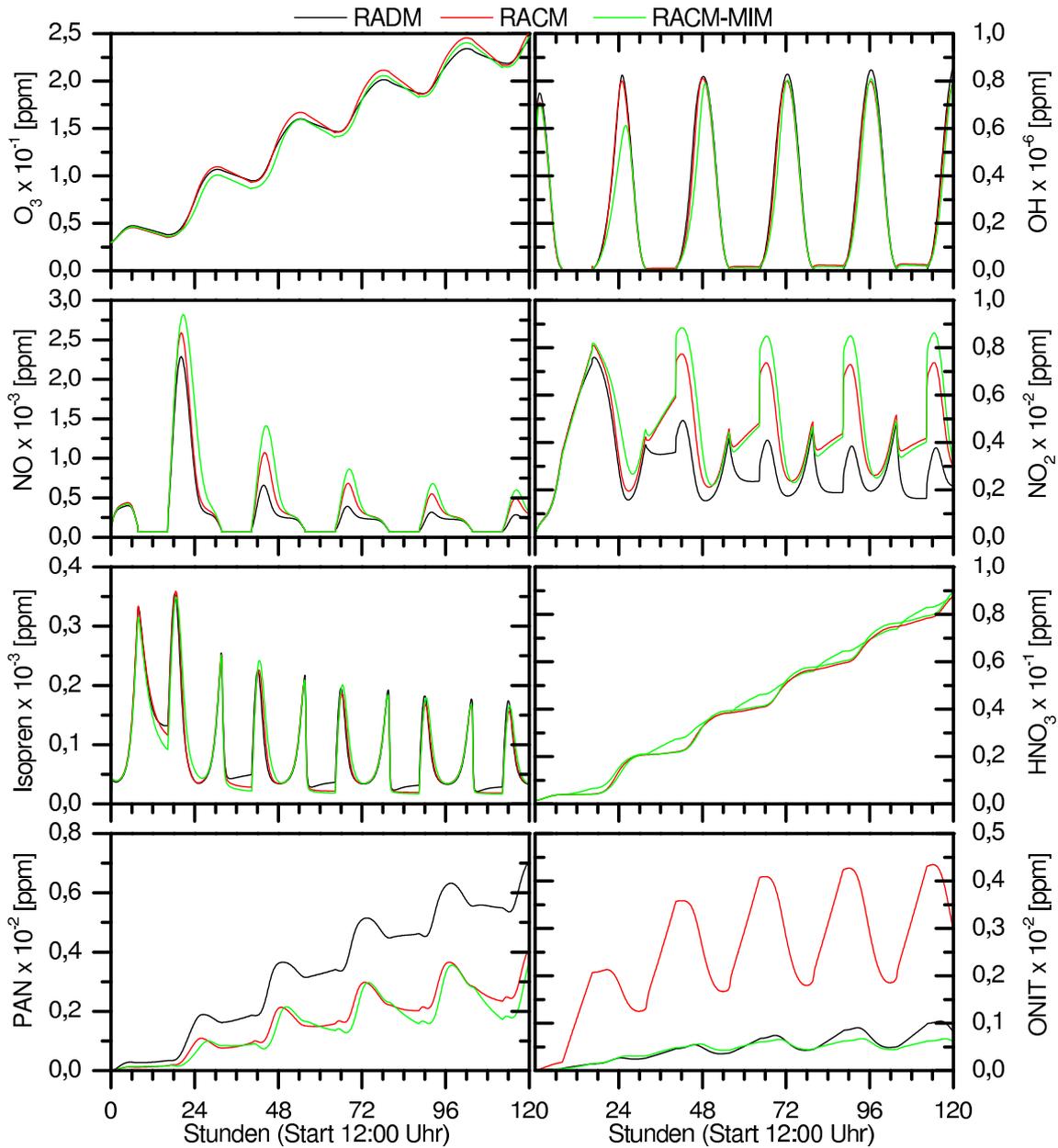


Abbildung 5.2: Vergleich der Gasphasenmechanismen RADM, RACM und RACM-MIM für den Testfall URBAN (über 120 Stunden, Start 12 Uhr mittags). Alle Mechanismen wurden einheitlich mit dem ROS4-Löser (Hairer und Wanner, 2000) integriert.

MIM beinhaltet außer *PAN* noch die ungesättigten Peroxyacetylnitrate (*TPAN*) und die *PAN*-Analoge (*MPAN* - Peroxy-Methacryloylnitrate). *PAN* wird über 5 Reaktionsgleichungen ähnlich wie beim RACM modelliert, wobei aber für *MPAN* noch 11 Reaktionsgleichungen hinzukommen.

Insgesamt zeigt Abb. 5.2 zwischen den drei Mechanismen deutliche Unterschiede in den Spurenstoffverteilungen. Eine Aussage darüber, welche der Simulationen der Realität am nächsten kommt, lässt sich aber daraus nicht ableiten. Um eine solche Aussage treffen zu können, müssen regionale Simulationen durchgeführt werden, deren Ergebnisse sich mit Messdaten vergleichen lassen. Dies wird im nächsten Abschnitt beschrieben.

5.5 Dreidimensionale Luftchemie-Simulationen

Die Simulation einer räumlich hochaufgelösten Photosmogepisode ermöglicht einen Vergleich der drei Mechanismen untereinander, wie auch mit Messdaten. Dies liefert zum einen eine Größenordnung der räumlich und zeitlich zu erwartenden Variationen und zum anderen eine Aussage darüber, wie realitätsnah die Simulationen mit den einzelnen Mechanismen sind. Hierbei wird sich auf die Ergebnisse der einzelnen Mechanismen bezüglich der regionalen Ozon-Simulation beschränkt, da für weitere Spurenstoffe wie *NO*, *NO*₂ und *PAN* keine ausreichenden Messdaten zur Verfügung stehen, die die Kriterien zur Modellevaluierung (siehe Abschnitt 5.3) erfüllen.

Im weiteren Verlauf sind mit den Bezeichnungen RADM, RACM und RACM-MIM stets die jeweiligen Modellsimulationen mit MCCM gemeint. Dabei wird in allen Fällen die Simulation mit dem ROS4-Integrationsverfahren durchgeführt.

Eine Evaluierung der Modellgüte zur Simulation von bodennahem Ozon auf der Grundlage der US-EPA-450/4-91-1013 (1991) Richtlinie wurde für das regionale Modell MCCM bereits mehrfach durchgeführt (Grell u. a., 2000; Suppan, 2001; Jazcilevich u. a., 2003; Suppan und Schaedler, 2004). Das Modell zeigte dabei bereits seine grundsätzliche Eignung zur Simulation von bodennahem Ozon in Photosmogepisoden sowie zur regionalen Ozonvorhersage. Für die im Weiteren vorgestellte Evaluierung wurde eine Episode von 2 Monaten im Sommer 2003 (Juli-August) gewählt, die aufgrund der hohen Temperaturen im August sehr hohe Ozonwerte hervorgebracht hat. Die lang anhaltende, stabile Hochdruckwetterlage macht diese Episode zu einem idealen Zeitraum, um statistisch abgesicherte Schlussfolgerungen aus der Modellevaluierung ziehen zu können und um damit die Frage zu beantworten, welcher der drei Mechanismen für die regionale Ozon-Modellierung mit MCCM die besten Ergebnisse liefert.

5.5.1 Graphische Modellevaluierung

Abb. 5.3 zeigt simulierte Ozon-Tagesgänge der drei Mechanismen (Wert der Gitterzelle der Messstation Erlangen), sowie die entsprechenden Ozon-Messungen. Der visuelle Vergleich zeigt für beide Domains eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Messwerten über den gesamten Zeitraum der 62-Tage-Episode. Dabei lassen sich visuell nahezu keine Unterschiede zwischen den Simulationen mit 6 Kilometer und mit 2 Kilometer Auflösung erkennen. Die geringen Abweichungen lassen sich durch die Unsicherheiten bei der Simulation der meteorologischen Bedingungen erklären. Wenn das Modell z.B. die lokale Wolkenbedeckung und damit die lokale Temperatur und Strahlungssituation nicht exakt wiedergibt, müssen sich diese Unterschiede auch auf die Simulation der Luftschadstoffe wie Ozon auswirken.

Fokussiert man den visuellen Vergleich aber auf die Unterschiede in den simulierten Zeitreihen der Spurenstoffen aufgrund der einzelnen Mechanismen und vergleicht diese mit den Messdaten wie z.B. in Abb. 5.3, so zeigt sich für nahezu alle simulierten Tagesgänge ein eindeutiges Bild. Die RADM Simulation liefert stets deutlich höhere Tageswerte als die Simulationen mit RACM und RACM-MIM. Dieser Unterschied kann bei den Tageshöchstwerten lokal über 10 ppb bzw. 20 % Ozon ausmachen. Dies gilt für beide Domains D3 und D4.

Der visuelle Vergleich zwischen RACM und RACM-MIM liefert einen wesentlich geringeren Unterschied von ein bis zwei ppb an den meisten Tagen. Welcher der Mechanismen die Messdaten besser wiedergibt, lässt sich im visuellen Vergleich nicht eindeutig entscheiden, da die Simulationen die Messdaten teils exakt wiedergeben, teils über- und unterschätzen. Der positive Bias der RADM-Simulation bezüglich RACM und RACM-MIM, sowie der wesentlich geringere positive Bias von RACM bezüglich RACM-MIM ist dabei unabhängig von dem Grad der Übereinstimmung mit den Messdaten. Dieses beispielhaft an der Station Erlangen dargestellte Ergebnis findet sich an allen untersuchten Messstationen.

Eine wesentlich bessere Möglichkeit einen Modellbias grafisch darzustellen sind Scatter-Plots: In Abb. 5.4 werden die simulierten täglichen Ozon-Maxima mit den Maxima der Ozon-Messungen für alle 8 Messstationen verglichen. Um den jeweiligen Bias der Mechanismen deutlich zu machen wurden für alle Mechanismen Regressionsgeraden eingezeichnet. In dieser Darstellung ist der positive Bias der RADM Simulation von ca. 2 bis 10 ppb an den Messstationen eindeutig sichtbar. Die Messstationen zeigen eine geringere Steigung der RACM-Regressionsgeraden im Vergleich zu RACM-MIM. Während RACM im Bereich von niedrigen Ozon-Tagesmaxima noch ein bis zwei ppb mehr Ozon prognostiziert als RACM-MIM, so verhält sich dies für hohe Ozon-Tagesmaxima entgegengesetzt: Hier erzeugt RACM ein bis zwei ppb weniger Ozon als RACM-MIM. Ausnahmen sind die Stationen Ansbach und Regensburg, wo die Regressionsgeraden nahezu parallel zur Winkelhalbierenden verlaufen, sodass der Bias hier für alle Bereiche der Ozon-Tagesmaxima gilt.

Eine weitere Möglichkeit der Modellgüte-Evaluierung liegt in der Betrachtung von täglichen 8-Stundenmittelwerten (jeweils von 10:00 - 18:00 Uhr Ortszeit gemittelt). In diesem Zeitfenster treten in der Regel die höchsten bodennahen Ozonkonzentrationen auf. Das 8-Stundenmittel repräsentiert ein Maß für die mögliche Exposition von Mensch und Umwelt auf die tägliche Ozon-Belastung und findet in der Luftschadstoffmodellierung breite Anwendung. Abb. 5.5 zeigt entsprechende Scatter-Plots für die 8 Messstationen. Die Regressionsgeraden zeigen ebenfalls einen deutlichen Bias von RADM gegenüber RACM bzw. RACM-MIM in der gleichen Größenordnung wie bei den Ozon-Maxima. RACM und RACM-MIM zeigen leicht unterschiedliches Verhalten für kleine und große 8-Stundenmittelwerte. Für die Messstationen Ansbach und Regensburg verlaufen die Regressionsgeraden wie bereits zuvor nahezu parallel zur Winkelhalbierenden. Die Häufungen der Datenpunkte in den Plots der 8-Stundenmittelwerte entsprechen denen der täglichen Maximalwerte.

Die Q-Q-Plots (wie in Abschnitt 4.2.2 beschrieben) dienen zum Vergleich von Verteilungen der Ozonkonzentrationen in den simulierten und gemessenen Zeitreihen. Dazu werden an allen 8 Messstationen die Quantilen Q_1 bis Q_{100} für die drei Simulationsergebnisse den Messungen gegenübergestellt (Abb. 5.6). Der Q-Q-Plot zeigt beispielsweise für die Station Regensburg für geringe Ozonkonzentrationen eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Simulationen und Messung, da hier die Quantilen-Paare auf der Winkelhalbierenden liegen. Für zunehmend höhere Ozonkonzentrationen zeigen die Quantilen-Paare einen deutlichen Bias, d.h. die Quantilen der Simulationen wachsen schneller an, als die der Messung. Dies bedeutet, dass bei höheren Ozonkonzentrationen (die vor allem tagsüber auftreten) die Simulationsergebnisse die Messungen an dieser Station deutlich übersteigen, während bei geringen Ozonkonzentrationen (die vor allem nachts auftreten) die Simulationsergebnisse sehr gut mit

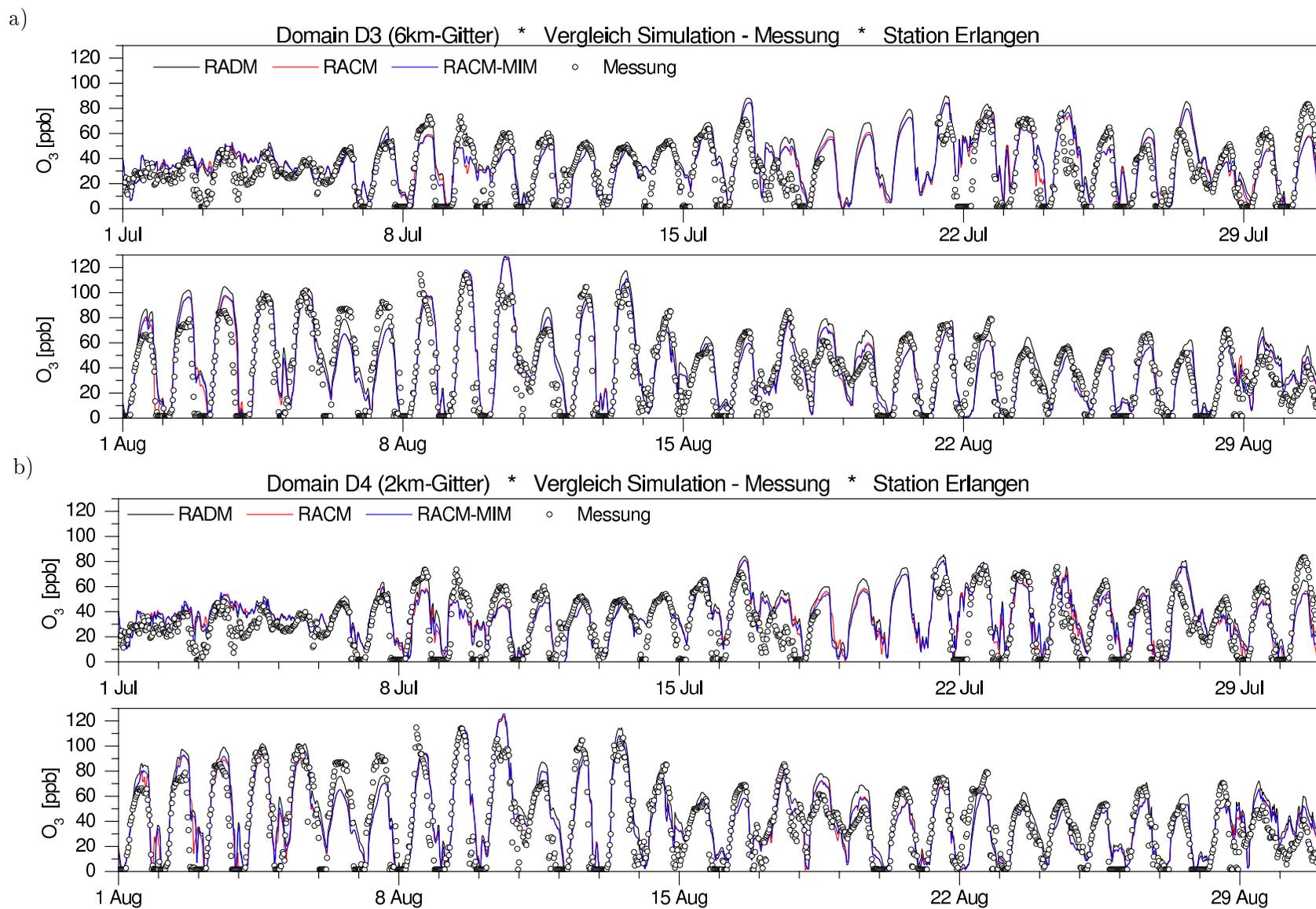


Abbildung 5.3: Vergleich von simulierten Ozon-Zeitreihen mit den Messungen an der Station Erlangen für a) Domain D3 mit 6 km und b) D4 mit 2 km Gitterzellengröße

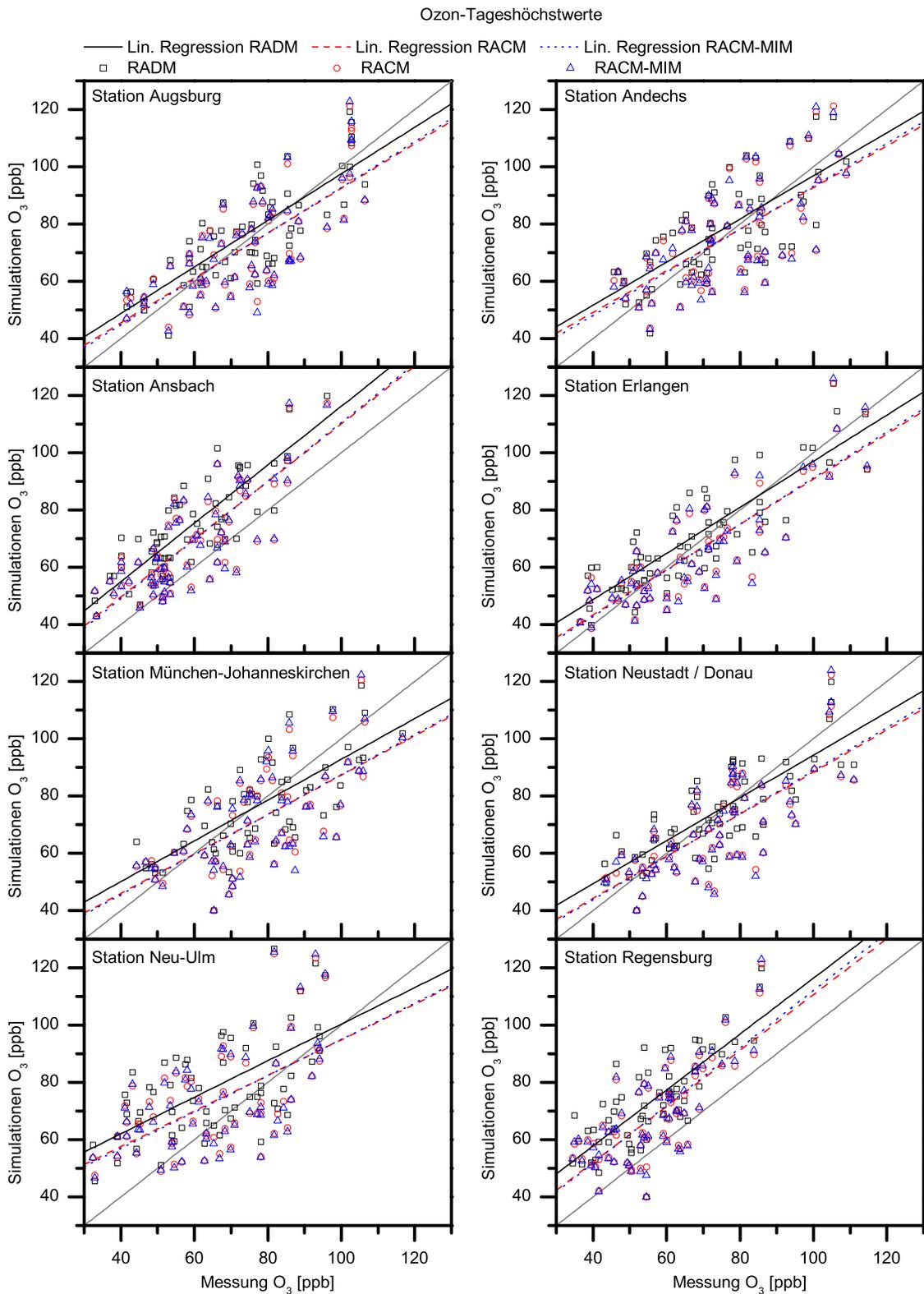


Abbildung 5.4: Vergleich der simulierten Ozon-Tagesmaximalwerte mit den gemessenen täglichen Ozon-Maximalwerten an den entsprechenden Stationen

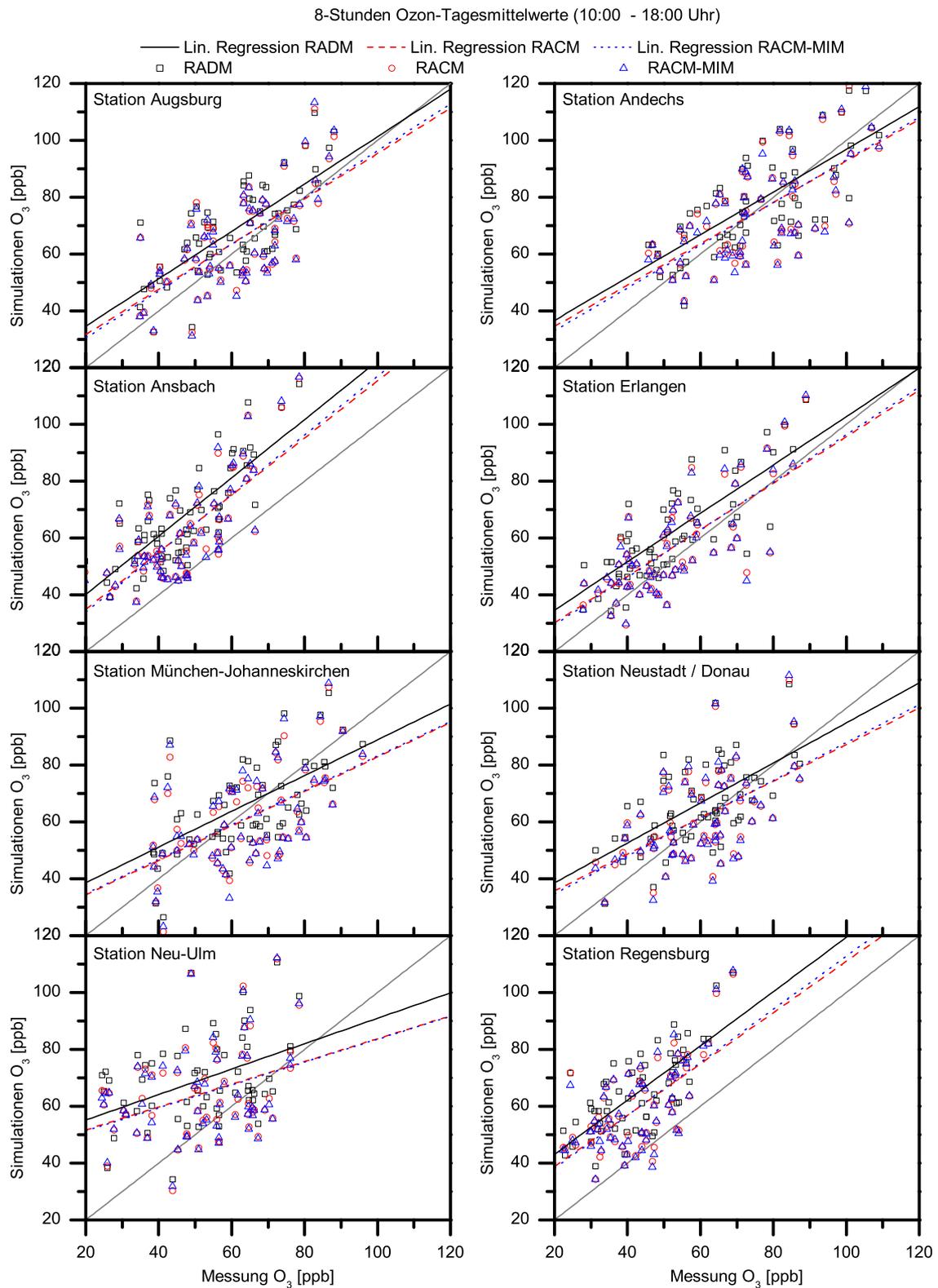


Abbildung 5.5: Vergleich der simulierten täglichen Ozon-8-Stundenmittelwerte mit den gemessenen täglichen Ozon-8-Stundenmittel an den entsprechenden Stationen

den Messungen übereinstimmen.

Weiterhin zeigen die Q-Q-Plots in welchen Bereichen der Verteilungen der Ozonkonzentrationen ein möglicher Bias auftritt. Für die Station Regensburg bildet sich der positive Bias von RADM ab ca. 28 ppb Ozon aus und erreicht bei Konzentrationen zwischen 40 und 50 ppb sein Maximum. Bezogen auf Q_{100} (absolutes Maximum der Zeitreihe) liefert RACM-MIM den höchsten Wert und RADM mit ca. 3 ppb weniger Ozon den geringsten.

An der Station Andechs sind die Unterschiede zwischen den drei Mechanismen durchgängig ausgebildet. Hier liefert RADM über nahezu die gesamte Verteilung mehr Ozon als RACM, welcher wiederum mehr Ozon als RACM-MIM liefert. Die Station Andechs liegt in einer sehr ländlich geprägten Region mit wesentlich geringeren antropogenen Emissionsquellen als an den restlichen Messstationen. Die Ozonkonzentrationen sind daher NO_x -limitiert, d.h. das ausreichende Angebot an biogenen Kohlenwasserstoffen (VOCs) reicht zur Ozonbildung alleine nicht aus. Erst zusammen mit dem notwendigen aber nur relativ geringfügig vorhandenen NO_x ergeben sich die erforderlichen Bedingungen zur Ozonbildung (Sillman u. a., 1990; Sillman, 1995; Sillman u. a., 1997). Unter diesen Bedingungen scheint sich die unterschiedliche Komplexität der drei Mechanismen durchgängig über den ganzen Bereich meteorologischer Randbedingungen auszuwirken.

Die Q-Q-Plots für die Stationen Augsburg, Ansbach, Erlangen und Neu-Ulm zeigen für geringere Ozonkonzentrationen eine deutliche Überschätzung durch die Simulationen. Dieser Effekt rührt daher, dass für nächtliche Verhältnisse keiner der Mechanismen in der Lage ist eine nahezu vollständige Titration von bodennahem O_3 durch antropogen emittiertes NO in NO_2 abzubilden (siehe Reaktionsgleichung 4.18). Dafür gibt es eine Vielzahl möglicher Gründe. Eine mögliche Erklärung liegt darin, dass das Modell nachts eine noch zu starke Durchmischung simuliert und somit die bodennahen Emissionen auf ein größeres Volumen verteilt, als dies in der Realität der Fall ist. Ebenfalls von wesentlicher Bedeutung sind Effekte durch lokale Emissionen die entweder nicht im Emissionskataster erfasst sind und somit in den Simulationen nicht berücksichtigt sind oder in räumlicher Nähe zur Messstation liegen und dort zu lokal begrenzten und von den Messungen erfassten Reaktionen führen, die in der Simulation auf der Gitterzellen-Skala nicht abgebildet werden können. In diesem Zusammenhang ist noch einmal darauf hinzuweisen, dass die meisten Stationen in urbanen Regionen relativ nah an starken antropogenen Emissionsquellen liegen (siehe Abb. 4.2). Die am weitesten abgelegenen Stationen Andechs und Neustadt an der Donau zeigen gleichzeitig zusammen mit der Station München-Johanneskirchen die besten Übereinstimmungen der Quantilen.

Die Q-Q-Plots in Abb. 5.6 bestätigen die Erkenntnisse aus der vorangegangenen Betrachtung der Ozon-Maxima und der 8-Stundenmittelwerte für Ozon. Die RADM-Simulation weisen vor allem für Ozonkonzentrationen über 30 ppb höhere Werte als RACM und RACM-MIM auf, die wiederum ein ähnliches Verhalten zeigen.

Die Q-Q-Plots zeigen aber im Gegensatz zu den bereits diskutierten Abbildungen die Lage der systematischen Abweichungen innerhalb der Verteilung der Ozonkonzentrationen. So zeigen sich im oberen Bereich der Verteilungen die deutlichsten systematischen Abweichungen zwischen den Mechanismen. Das Bias-Maximum in der Verteilung der Ozonkonzentrationen liegt z.B. an der Station Ansbach bei über 10 ppb mehr Ozon für RADM gegenüber RACM

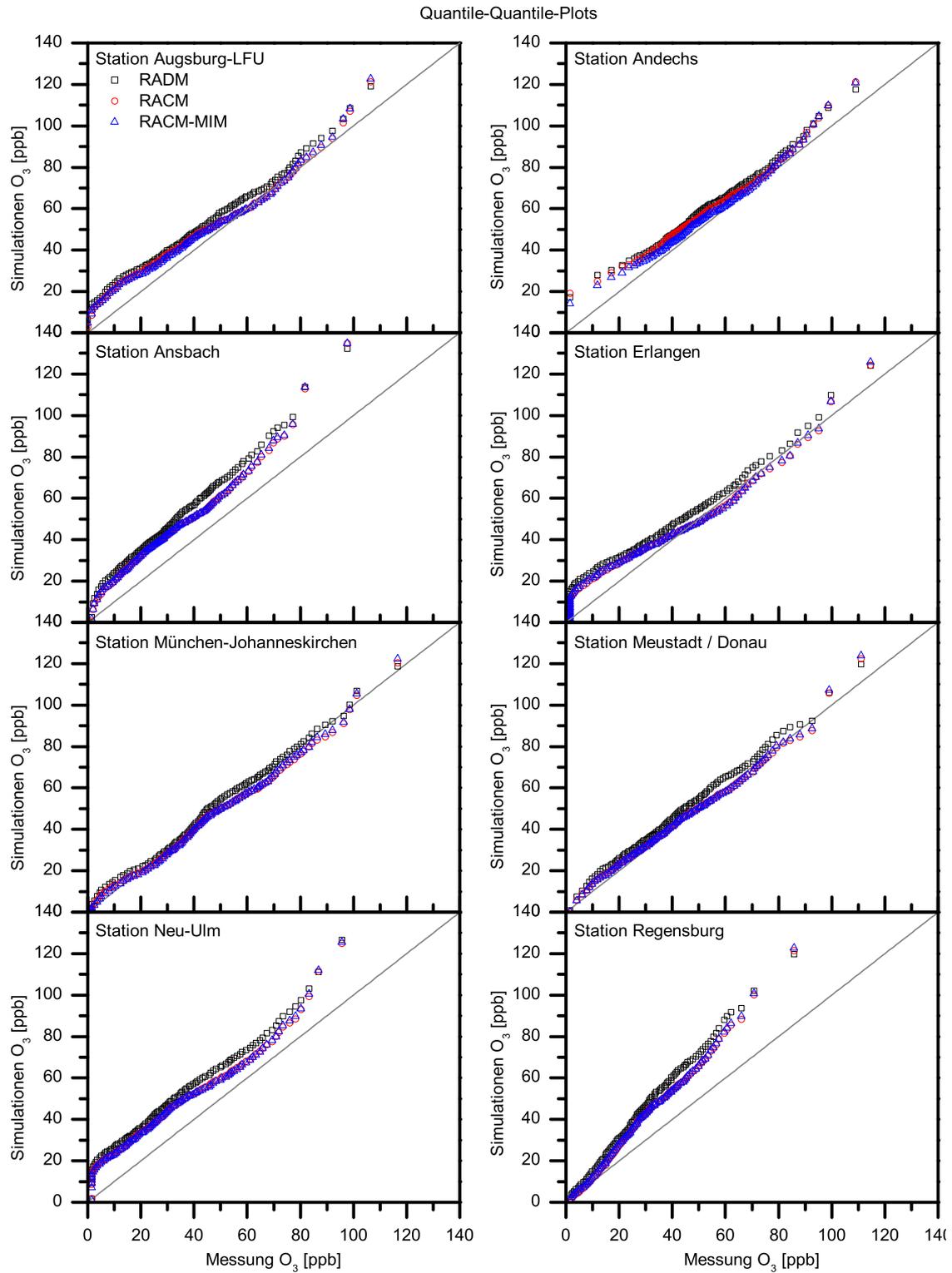


Abbildung 5.6: Quantile-Quantile-Plots zum Vergleich der simulierten Ozon-Verteilungen mit den Verteilungen der Ozon-Messungen an den 8 Messstationen

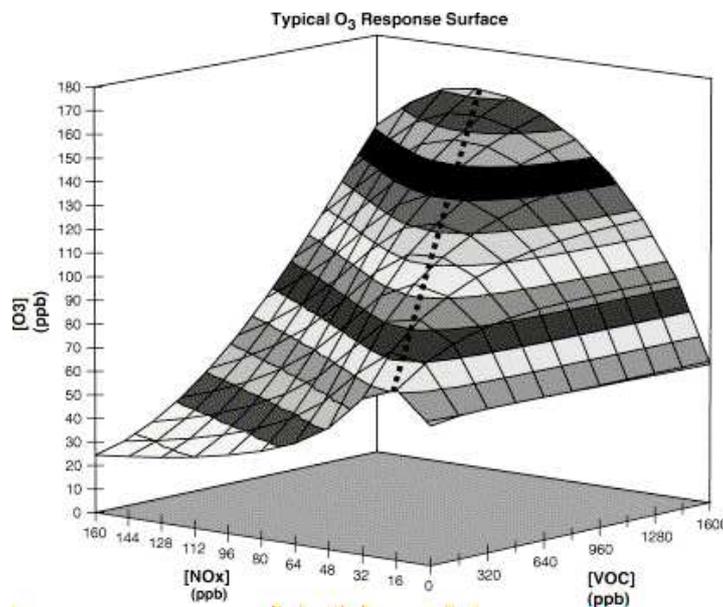


Abbildung 5.7: Flächendarstellung der Ozon-Isoplethe aus Arnold u. a. (2003).

und RACM-MIM. Die Q_{98} , Q_{99} , und Q_{100} (welche die absoluten Maximalwerte repräsentieren) liegen an allen Messstationen aber wieder sehr eng beieinander.

Generell zeigen die Q-Q-Plots, dass für die meisten Stationen die Ozonkonzentrationen überschätzt werden. Dies ist aber wie oben ausgeführt auch eine Folge der räumlichen Auflösung des Modells und gilt grundsätzlich unabhängig vom jeweiligen Chemiemechanismus. Für schnell reagierende Spurenstoffe wie NO sind aufgrund räumlich variierender Emissionen die Übereinstimmungen der Simulationen mit den Messungen schlechter als beim Ozon. Dies bestätigen auch Jimenez u. a. (2006) oder Arnold u. a. (2003) für andere CTMs. Neben photochemischer Prozesse aufgrund solarer Einstrahlung oder Titration von O_3 durch frisch emittierte kleinräumig variable NO -Schwaden und sich teils zeitlich sehr schnell ändernde Emissionsmuster z.B. durch den Verkehr tragen zur Fluktuation der täglichen O_3 und NO bzw. NO_x -Verteilungen auch atmosphärische Prozesse bei, wie z.B. advektiver Transport, turbulente Durchmischung, Aufbau und Zerfall der atmosphärischen Grenzschicht und Deposition.

Arnold u. a. (2003) schlagen als weiteres Kriterium das O_3/NO_x -Verhältnis zur Modellevaluierung vor. Dazu betrachten sie die Flächendarstellung der nichtlinearen Ozon-Isoplethen wie sie in Abb. 5.7 dargestellt ist. Hier ist vor allem die gepunktete Linie von Bedeutung. Arnold u. a. (2003) bezeichnen sie als *ridgeline*. Sie repräsentiert NO_x -VOC-Verhältnisse die zu maximalen Ozonkonzentrationen führen und sie trennt in der Darstellung NO_x -limitierte rechts der *ridgeline* von VOC-limitierten Ausgangsgemischen links. O_3/NO_x -Verhältnisse unterhalb von 15 kennzeichnen eine sehr starke Radikal-Limitierung und damit eine NO_x -gehemmte Situation. Dies deutet darauf hin, dass selbst hohe NO_x -Konzentrationen aufgrund von fehlenden flüchtigen Kohlenwasserstoffen als Reaktionspartner kaum mehr zur Ozonbildung beitragen können. Diese O_3/NO_x -Verhältnisse entsprechen daher Positionen links der Gratlinie. O_3/NO_x -Verhältnisse mit Werten über 46 beschreiben eine Position weit auf der rechten Seite der Gratlinie und kennzeichnen NO_x -limitierte und deshalb NO_x -sensitive Verhältnisse. Einem hohen Angebot von Kohlenwasserstoffen steht hier nur ein sehr limitiertes

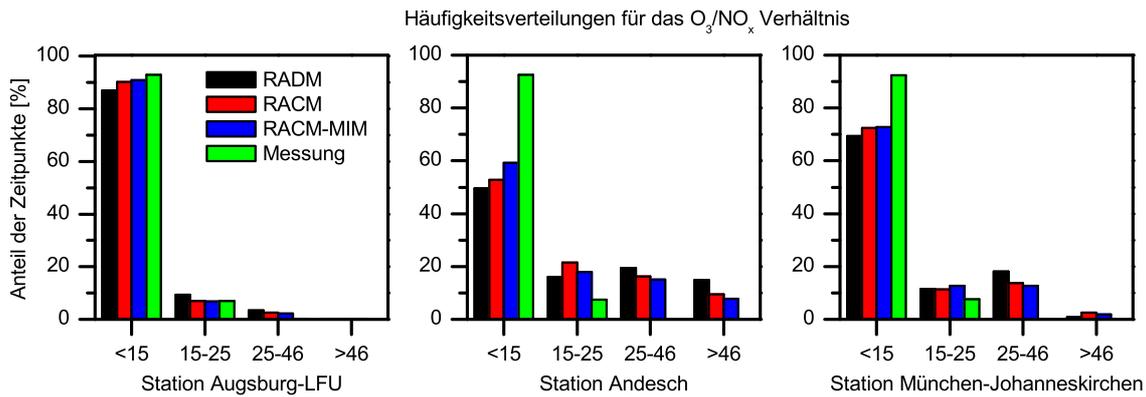


Abbildung 5.8: Histogramme der Häufigkeitsverteilung der vier Wertebereiche <15 , $15-25$, $25-46$ und >46 für die simulierten und gemessenen O_3/NO_x -Verhältnisse an den 3 Stationen nach Arnold u. a. (2003)

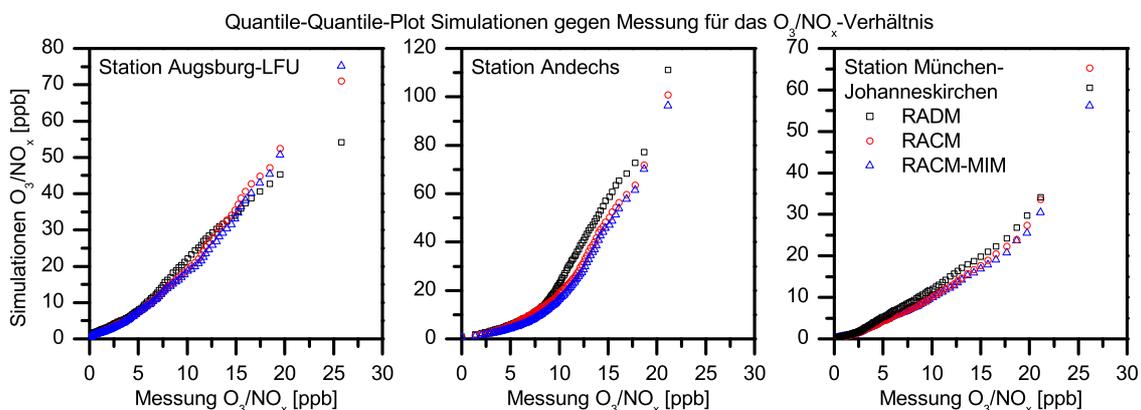


Abbildung 5.9: Q-Q-Plots für die simulierten und gemessenen O_3/NO_x -Verhältnisse an den 3 Stationen nach Arnold u. a. (2003)

Angebot an NO und NO_2 zur Ozonbildung zur Verfügung. Um zu untersuchen, inwieweit die Art der Limitierung der Ozonbildung von den Mechanismen wiedergegeben wird, sind simulierte und gemessene O_3/NO_x -Verhältnisse berechnet worden.

Die Berechnung erfolgt nur für die 3 Messstationen, an denen NO_x -Messungen verfügbar waren und für alle Zeitpunkte der 62-tägigen Zeitreihen (in 30-minütiger Auflösung). Abb. 5.8 zeigt die Ergebnisse in Histogrammen, eingeteilt in rechtsoffene Wertebereiche $[0,15)$, $[15,25)$, $[25,46)$ und $[46,\infty)$ wie von Arnold u. a. (2003) vorgeschlagen. Die Histogramme sind in Prozent angegeben, da die absolute Anzahl verfügbarer Messzeitpunkte aufgrund von Lücken in den Messdaten für die 3 Stationen nicht exakt übereinstimmt.

Die Ergebnisse weisen für RADM wesentlich häufiger Werte im NO_x -limitierten Bereich auf. Obwohl RADM einen ausgeprägten positiven Ozon-Bias gegenüber RACM und RACM-MIM aufweist, kann diese Verschiebung auch durch geringere NO_x -Konzentrationen erklärt werden. Für RACM und RACM-MIM zeigen sich keine grundsätzlichen Unterschiede in den Ergebnissen, lediglich an der ländlichen Station Andechs treten für die Wertebereiche bis 15 und 15 bis 24 (NO_x -limitierte Region) geringe Unterschiede auf. Interessant ist das häufige Vorkommen von NO_x -limitierten Situationen, das deutlich den ländlichen Charakter der Station zeigt.

Um die Unterschiede zwischen den Simulationen an den 3 Stationen deutlicher zu machen, sind Q-Q-Plots für das O_3/NO_x -Verhältnis in Abb. 5.9 dargestellt. Im Wertebereich der Simulation bis zu O_3/NO_x -Verhältnissen von 15 sind hier kaum Unterschiede erkennbar. Für mittlere Quotienten ist aber der bereits im Histogramm angedeutete Bias der RADM Simulation deutlich erkennbar. Im oberen Bereich verschwindet dieser allerdings wieder oder ändert sogar sein Vorzeichen wie in den Ergebnissen für die Station Augsburg.

Abschließend ist in Abb. 5.10 a) die räumliche Verteilung der O_3/NO_x -Verhältnisse gemittelt über 62 Tage (Mittelungszeitraum jeweils von 10:00 bis 18:00 Uhr Ortszeit) aufgetragen. Die hohen O_3/NO_x -Werte finden sich nur in den ländlichen Regionen die damit als NO_x -sensitiv erkennbar sind. In Regionen mit starken antropogenen Emissionen wie den Städten und entlang der Autobahnen finden sich geringe O_3/NO_x -Werte, die auf VOC -limitierte und somit VOC -sensitive Regionen hinweisen. In Abb. 5.10 b) ist der Bias von RADM bezüglich RACM (O_3/NO_x : RADM minus RACM) und in Abb. 5.10 c) bezüglich RACM-MIM (O_3/NO_x : RADM minus RACM-MIM) dargestellt. Es zeigen sich in beiden Fällen ausschließlich positive Differenzen, die in ländlichen Regionen wesentlich deutlicher ausgeprägt sind.

Die grafische Modellevaluierung hat gezeigt dass RADM einen deutlichen Modellbias gegenüber RACM und RACM-MIM aufweist. Außerdem konnte gezeigt werden, dass mit RACM und RACM-MIM wesentlich geringere Abweichungen zwischen Simulationsergebnissen und Messungen erzielt werden. Die grafische Modellevaluierung konnte aber kein eindeutiges Ergebnis bezüglich der Unterschiede zwischen RACM und RACM-MIM liefern, da sich beide Mechanismen sehr ähnlich verhalten. Daher wird mit Hilfe der statistischen Modellanalyse und -evaluierung im nächsten Abschnitt der Modellbias für RADM und der Unterschied zwischen RACM und RACM-MIM näher untersucht.

5.5.2 Statistische Modellevaluierung

Die Evaluierung in Abschnitt 5.5.1 zeigte bereits den Modellbias von RADM, konnte diesen allerdings nicht genau quantifizieren. Es konnte ebenfalls keine einheitliche Aussage abgeleitet werden, welcher Mechanismus die beobachteten Ozonkonzentrationen am genauesten wiedergibt. Diese Aussagen werden im Weiteren anhand der Analyse der statistischen Größen und Fehler abgeleitet.

Die US-EPA-450/4-91-1013 (1991) Richtlinie empfiehlt für eine Modellevaluierung eine Photosmogepisode von mindestens 3 Tagen. Es ist darauf zu achten, dass die Meteorologie in den Simulationen sehr exakt wiedergegeben wird, da diese eine wesentliche Voraussetzung für eine möglichst genaue Modellierung der photochemischen Prozesse darstellt. In dieser Arbeit wird eine ausreichend hohe Güte des regionalen Modells MCCM zur regionalen Luftschadstoff-Simulation vorausgesetzt. Diese wurde bereits durch etliche Publikationen untersucht (Grell u. a., 2000; Jazcilevich u. a., 2003; Suppan, 2001; Suppan und Schaedler, 2004). Daher soll hier nur kurz auf die meteorologische Modellierungsgüte für die Lufttemperatur eingegangen werden. Dabei wurden statistische Größen aus Tab. 4.2 zur Beurteilung herangezogen und das Ergebnis ist beispielhaft für die Station Augsburg in Tab. 5.6 dargestellt. Es zeigt sich eine etwas höhere Standardabweichung für die Messung bei nahezu übereinstimmenden Mittelwerten, was darauf hindeutet, dass die Messungen einen ausge-

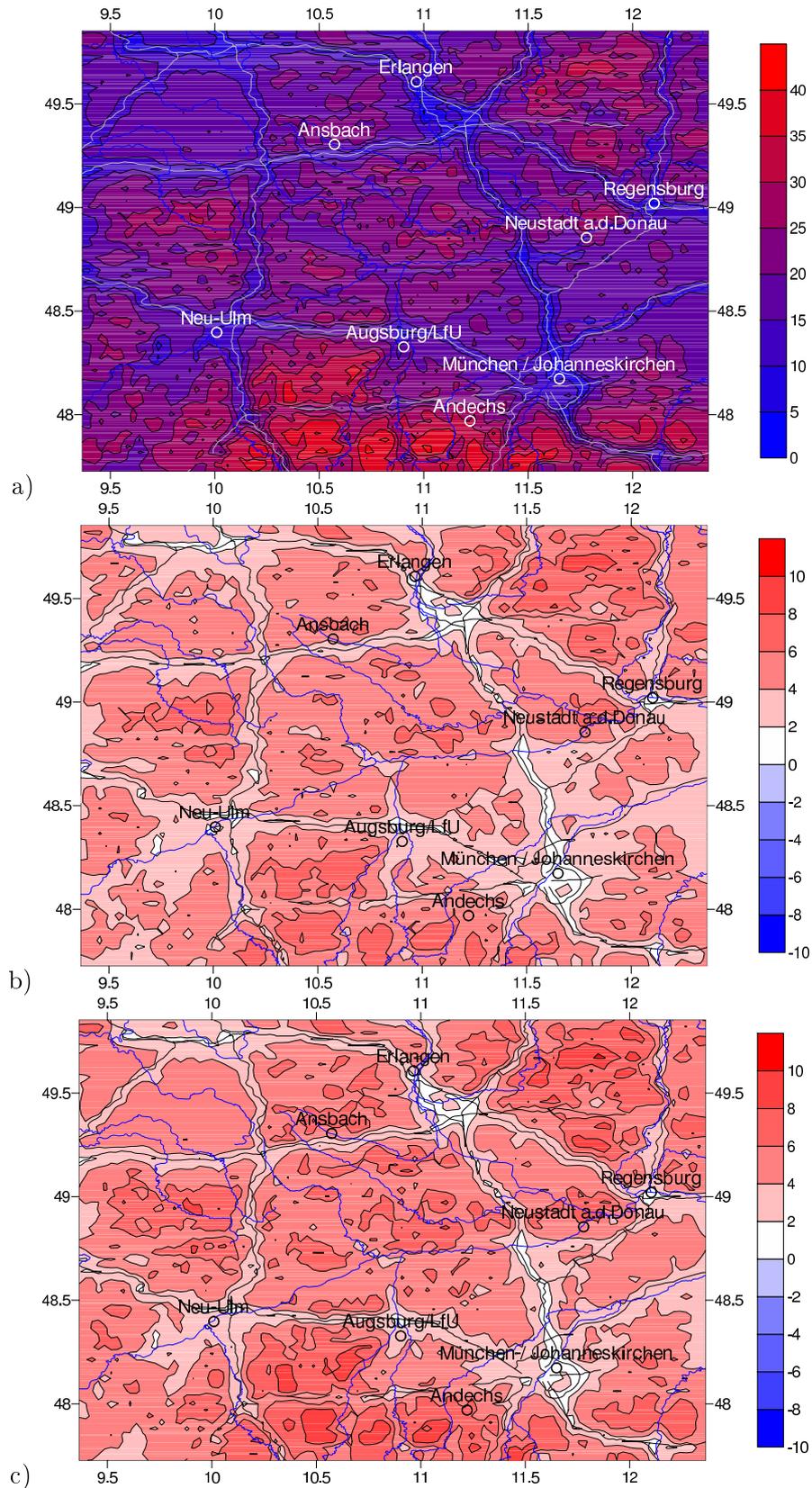


Abbildung 5.10: O_3/NO_x -Verhältnis (Mittelwerte über 62 Tage, jeweils 10:00-18:00 Uhr Ortszeit); a) RADM-Simulation, b) Differenzen zwischen der RADM und der RACM Simulation und c) Differenzen zwischen der RADM und der RACM-MIM Simulation

Tabelle 5.6: Station Augsburg LFU Domain D4: Statistik für die Lufttemperatur (boden-nahe Modellschicht) vom 01.07. - 31.08.03;

	MW	SD	Q_{50}	Q_{90}	Q_{95}	Q_{98}	Q_{99}
Simulation	21,14	5,93	20,00	33,60	35,70	36,20	36,20
Messung	21,08	6,44	20,89	29,55	31,87	32,94	33,55
Vergleich Simulation - Messung			r	MB	MNBE	MAGE	MNGE
			0,88	0,06	1,88	2,44	11,98

prägender Tagesgang der Lufttemperatur mit höheren Amplituden aufweisen. Dies wird auch durch andere statistische Fehlergrößen bestätigt. Die Ursache für die Abweichung liegt aber nicht in einer mangelhaften Modellgüte, sondern in den Unzulänglichkeiten beim Vergleich der Werte. Die Messung der Lufttemperatur erfolgt wie auch die der chemischen Spurenstoffe in ca. 4 m Höhe über dem Grund, während die simulierten Ergebnisse repräsentativ sind für Gitterzellen mit einer Höhe von ca. 40 Metern und einer sehr großen horizontalen Ausdehnung. Die Luftschicht in 4 Meter Höhe weist durch die Aufheizung des Untergrunds aufgrund der solaren Einstrahlung in der Regel einen höheren Tagesgang auf als dies für den *repräsentativen Wert* des gesamten Gitterzellenvolumen der Fall ist.

Die statistische Modellevaluierung für die Ozonkonzentrationen auf der Grundlage der oben genannten Richtlinie und der statistischen Evaluierungsgrößen aus Tab. 4.2 wurde für die simulierten Zeitreihen von mittleren Ozonkonzentrationen an allen 8 Messstationen für Domain D3 mit 6 Kilometer horizontaler Auflösung (Tab. 5.7) und für D4 mit 2 Kilometer Auflösung (Tab. 5.8) erstellt. Für das hochaufgelöste Domain D4 wurde die Statistik getrennt für die Tagesmaxima (Tab. 5.9) und für die täglichen 8-Stundenmittelwerte der Ozonkonzentrationen (Tab. 5.10) berechnet. Dabei wurden auch der Korrelationskoeffizient r , der Mittelwert MW, die Standardabweichung SD, sowie die Quantilen Q_{50} , Q_{90} , Q_{95} , Q_{98} und Q_{99} aufgelistet. Jimenez u. a. (2006) oder Hogrefe u. a. (2001) verwenden zur Modellevaluierung eine Mittelung über die Einzelstatistiken der Messstationen. Tab. 5.6 fasst die statistischen Größen aus Tab. 5.7 - 5.10 als entsprechende Mittelung über alle Messstationen zusammen. Die US-EPA-450/4-91-1013 (1991) Richtlinie setzt die Grenzen für eine akzeptable Modellgüte bei $\pm 5-15\%$ für den MNBE, $30-35\%$ für den MNGE, sowie $\pm 5-15\%$ für den NMB und $30-35\%$ für den NME. Diese Grenzen sind allerdings in der vorliegenden Analyse nur begrenzt anwendbar, da sie für eine typische Photosmogepisode (ca. 3 bis 8 Tage) gelten und die Statistiken nach der Richtlinie werden erst ab einem bestimmten Niveau (Cut-Off-Niveau) berechnet (z.B. für die Ozonkonzentrationen ab 40 oder 60 ppb), um Verzerrungen durch kleine Werte bei der Quotientenbildung zu verhindern, da diese Verzerrungen durch einzelne Werte das Fehlermaß dominieren können. Diese Niveaus schließen die niedrigeren Ozonkonzentrationen nachts aus der Statistikberechnung aus. Gerade hier zeigen sich aber deutliche Differenzen im Inter-Modellvergleich und im Vergleich zu den Messungen, weshalb hier für die Berechnung der statistischen Größen der gesamte kontinuierliche Zeitraum vom 1. Juli bis 31. August herangezogen wurde.

Ein Vergleich der statistischen Größen für die Ozonkonzentrationen laut Tab. 5.6 zeigt für

die 62 Tage-Episode für die gröbere Auflösung von 6 Kilometer in D3 eine bessere Übereinstimmung der Simulationen mit den Messergebnissen als für die feine Auflösung von 2 km in D4. Diese Erkenntnis gilt auch für die Korrelationskoeffizienten, Mittelwerte und die Quantilen, wie auch für die statistischen Fehlergrößen MB, MNBE, MFB, MAGE, MNGE, NME, NMB und RMSE.

Bei der Betrachtung der Tab. 5.6 zeigt sich der erwähnte Bias in allen sensitiven Größen. Die Mittelwerte für die kontinuierlichen Zeitreihen zeigen für RADM ca. 4 ppb mehr Ozon in D3 und in D4. Für die Tagesmaxima und 8-Stundenmittel in D4 sind es ca. 5 ppb mehr Ozon für RADM im direkten Vergleich zu RACM bzw. RACM-MIM. Der MB-Fehler bestätigt diese systematischen Abweichungen für die kontinuierlichen Zeitreihen von ca. 4 ppb sowie für die Tagesmaxima und 8-Stundenmittel von ca. 5 ppb mehr Ozon für RADM. Dies ist die erste zentrale Aussage der statistischen Modellanalyse.

Der Unterschied zwischen den Simulationen für RACM und RACM-MIM ist aufgrund ihrer Ähnlichkeit in den Reaktionspfaden sehr gering und liegt je nach statistischer Größe bei einem Drittel bis zu einem Hundertstel des absoluten Unterschieds zwischen RADM und RACM bzw. RACM-MIM. Tab. 5.6 zeigt für RACM-MIM im Vergleich zu RACM für die Mittelwerte der Zeitreihen der Ozonkonzentrationen sowie für die Q_{50} -Quantile geringere Werte. Die Unterschiede sind aber kleiner als 1 % der betrachteten Größe. Im Domain D4 zeigt der Bias bezüglich den Messungen ebenfalls weniger Ozon für RACM-MIM als RACM. Die Unterschiede betragen hier maximal 5% des Bias. Betrachtet man dagegen die Quantilen höherer Ordnung $Q_{90} - Q_{99}$ so zeigt RACM-MIM hier ca. 1 ppb mehr Ozon als RACM. Diese Unterschiede wurden bereits in den Diskussionen der Abb. 5.5 und 5.6 in der grafischen Modellevaluierung erkannt und konnten hier quantifiziert werden. Dies ist eine weitere zentrale Aussage der statistischen Modellanalyse.

Als letzte zentrale Aussage der statistischen Modellevaluierung bleibt die Antwort auf die Frage, welcher der 3 Mechanismen die realistischsten Ozonkonzentrationen liefert. Die grafische Modellevaluierung konnte hier lediglich bei den Quantilen ein eindeutiges Ergebnis liefern. Der direkte Vergleich mit den Beobachtungen an den Messstationen zeigt in Tab. 5.6 für RADM eine wesentlich schlechtere Übereinstimmung als für RACM und RACM-MIM. Selbst bei der Betrachtung der einzelnen Statistiken in Tab. 5.7 bis 5.10 bestätigt sich diese Aussage bis auf einzelne wenige Ausnahmen. Somit reduziert sich die Betrachtung auf RACM und RACM-MIM. Konzentriert man sich in Tab. 5.6 auf die Mittelwerte, so zeigen alle Simulationen eine Überschreitung der Mittelwerte der Messungen. Der Fehler ist dabei für RACM-MIM am geringsten. Dies gilt ebenfalls für den Median (die Q_{50} -Quantile) der Verteilungen der simulierten Ozonkonzentrationen und für den Bias MB. Die relativen Fehlergrößen in Tab. 5.6 bestätigen dies ebenso wie die detaillierte Betrachtung der einzelnen Statistiken in Tab. 5.7 bis 5.10 die einzelne Ausnahmen liefert. Bei höheren Ozonkonzentrationen zeigen die Quantilen höherer Ordnung $Q_{90} - Q_{99}$ dagegen bessere Übereinstimmungen für die RACM Simulation, wobei auch hier einzelne Ausnahmen in Tab. 5.7 bis 5.10 auftreten. Die Beantwortung der zentralen Frage nach den am realistischsten simulierten Ozonkonzentrationen durch die Mechanismen muss somit differenziert beantwortet werden. Für prognostizierte Ozonkonzentrationen bis ca. 80 ppb zeigt RACM-MIM die realistischsten Ergebnisse während für Konzentrationen über 80 ppb RACM-MIM diese leicht überschätzt und RACM die rea-

Tabelle 5.6: Mittelwerte über alle 8 Messstationen der statistischen Größen für die O_3 -Konzentrationen; vom 01.07.-31.08.03 (30 Minuten Auflösung); r: Korrelationskoeffizient, MD: Mittelwert, SD: Standardabweichung, Q : Quotilen;

Station	r	MW	SD	Q_{50}	Q_{90}	Q_{95}	Q_{98}	Q_{99}	MB	MNBE	MFB	MAGE	MNGE	NME	NMB	RMSE
Domain D3: Vergleich von Simulationen und Messdaten;																
RADM	0,788	45,48	43,60	43,60	80,09	90,69	99,89	109,78	4,43	61,62	9,88	12,78	84,15	34,45	14,03	16,72
RACM	0,768	41,67	40,59	40,59	74,51	84,71	95,34	107,04	0,77	44,83	0,64	12,51	75,08	33,15	4,22	16,15
RACM-MIM	0,764	41,67	40,54	40,54	75,04	85,70	96,77	108,86	0,77	45,59	0,31	12,72	76,29	33,64	4,23	16,48
Messung		40,86	38,75	38,75	71,66	80,27	89,37	93,89								
Domain D4: Vergleich von Simulationen und Messdaten;																
RADM	0,734	49,28	47,64	50,93	81,10	91,66	100,04	108,41	9,64	113,13	29,10	15,32	126,40	41,87	27,38	19,26
RACM	0,711	45,70	44,50	47,80	76,14	86,53	96,58	107,31	6,10	93,39	20,77	14,46	112,47	39,04	17,65	18,11
RACM-MIM	0,710	45,41	44,11	47,71	76,40	87,36	97,48	108,08	5,80	92,54	20,21	14,51	112,11	39,21	17,11	18,16
Messung		39,54	37,15	37,15	70,67	79,40	88,01	92,12								
Domain D4: Vergleich von simulierten und gemessenen täglichen Ozon-Maximalkonzentrationen;																
RADM	0,772	75,37	17,21	76,35	98,27	104,69	114,87	118,33	6,84	13,27	10,45	12,04	19,66	18,35	11,19	14,31
RACM	0,731	70,40	17,76	69,64	93,41	101,65	114,10	118,40	1,87	5,64	3,25	11,81	18,35	17,63	3,71	14,08
RACM-MIM	0,727	70,28	18,26	69,60	94,37	102,81	115,14	119,54	1,76	5,39	2,95	12,02	18,57	17,94	3,55	14,34
Messung		68,77	16,45	67,29	91,93	97,19	101,12	102,86								
Domain D4: Vergleich von simulierten und gemessenen täglichen 8-Stundenmittelwerte der Ozonkonzentrationen;																
RADM	0,702	70,17	16,26	71,00	92,72	99,14	106,81	109,91	10,23	25,04	18,22	14,30	30,29	26,89	21,09	16,96
RACM	0,649	65,28	16,77	65,09	87,89	95,50	105,67	109,77	5,34	16,04	10,57	13,33	26,89	24,16	12,25	15,93
RACM-MIM	0,649	65,14	17,19	64,84	89,09	96,49	106,67	110,91	5,21	15,66	10,24	13,44	26,90	24,34	12,03	16,09
Messung		60,10	14,67	59,61	79,73	84,21	87,37	89,35								

listeten Ergebnisse liefert.

Die Statistiken der täglichen Ozonmaxima und 8-Stundenmittelwerte liefern unverzerrte Fehlermaße, da keine Quotientenbildung bei kleinen Werten stattfindet. Die Fehlergrößen in Tab. 5.6 erfüllen die Grenzwerte der US-EPA-450/4-91-1013 (1991) Richtlinie für eine akzeptable Modellgüte ($\pm 5-15\%$ für den MNBE, 30-35% für den MNGE, sowie $\pm 5-15\%$ für den NMB und 30-35% für den NME). Die beschriebenen Grenzen gelten für eine typische Photosmogepisode von 3 bis 8 Tagen Dauer. Für die betrachtete Episodenlänge von 2 Monaten sind deutlich schlechtere Übereinstimmungen zu erwarten, sodass die hier gezeigten Statistiken als sehr gute Ergebnisse zu bewerten sind. Die Daten in Tab. 5.6 sind Mittelwerte über die Statistiken an allen 8 Messstationen. Die detaillierten Daten für die einzelnen Messstationen finden sich in Tab. 5.9 und 5.10.

Der Vollständigkeit halber sind in Tab. 5.11 statistischen Größen und Fehlermaße für die Zeitreihen der O_3/NO_x -Verhältnisse an den Stationen Andechs, Augsburg und München-Johanneskirchen (für die NO_x -Messdaten verfügbar sind) aufgelistet. Hier zeigen sich im Inter-Modellvergleich bessere Korrelationskoeffizienten für RADM, wobei Mittelwerte und Quantilen höhere O_3/NO_x -Verhältnisse für RADM als RACM bzw. RACM-MIM zeigen. Die Abweichungen von den Messungen sind für RADM ebenfalls deutlich größer. Die Ergebnisse der RADM-Simulation sind an den 3 Messstationen damit deutlich NO_x -limitierter als dies bei RACM und RACM-MIM der Fall ist.

RADM (Stockwell u. a., 1990), RACM (Stockwell u. a., 1997) und RACM-MIM (Geiger u. a., 2003) wurden entwickelt um Photooxidantien zu simulieren, wobei hier die höchste Priorität beim Ozon liegt (Pope, 2006). Diese Arbeit hat gezeigt, dass neue Mechanismen wie RACM-MIM die Ozonkonzentrationen in einem regionalen Modell deutlich realistischer prognostizieren. An dieser Stelle soll abschließend noch kurz erwähnt werden, dass die Mechanismen diese Modellierungsgüte bei weitem noch nicht für alle relevanten Spurenstoffe liefern. Der Boxmodellvergleich in Abschnitt 5.4.2 hat für Spurenstoffe wie *PAN*, NO_x oder *ONIT* deutliche größere Abweichungen als für die Ozon-Konzentrationen gezeigt. Die regionalen Simulationen mit den Mechanismen liefern z.B. für *PAN* Unterschiede in den Mittelwerten der Zeitreihe von bis zu 100%. *PAN* speichert NO_x und ist bei moderaten Temperaturen relativ stabil. Das NO_x kann somit über weite Strecken transportiert werden, bis es bei höheren Temperaturen wieder freigesetzt wird und dort lokal in die Photochemie eingreifen kann. Es konnte keine Literatur gefunden werden, die eine Evaluierung regionaler Modelle oder Simulationen mit den besprochenen Mechanismen mit *PAN*-Messungen beinhaltet. Eine weitere zusammengefasste Größe sind die organischen Stickstoffverbindungen *ONIT* (Stockwell u. a. 1990, Stockwell u. a. 1997 und Geiger u. a. 2003). Hier treten in den simulierten Mittelwerten Unterschiede im Inter-Modellvergleich von über 200 % auf. Die Auswirkungen dieser Unterschiede sind ebenfalls bisher in der Literatur nicht beschrieben. Für die betrachteten Spurenstoffe *PAN* oder *ONIT* liegen leider keine verfügbaren Messdaten vor, um die Mechanismen hier genauer zu evaluieren.

Tabelle 5.7: Statistik D3: Vergleich von Simulationen und Messdaten der O_3 -Konzentrationen vom 01.07.-31.08.03 in 30 Minuten Auflösung

Station		r	MW	SD	Q_{50}	Q_{90}	Q_{95}	Q_{98}	Q_{99}	MB	MNBE	MFB	MAGE	MNGE	NME	NMB	RMSE
Andechs	RADM	0,683	56,49	22,22	55,05	86,84	96,74	105,97	110,94	1,87	12,40	2,15	13,20	32,39	24,27	3,43	16,86
	RACM	0,648	52,87	20,43	51,79	80,95	90,61	102,50	105,92	-1,74	6,85	-3,82	13,78	33,64	25,33	-3,20	16,84
	RACM-MIM	0,646	53,03	22,19	51,53	83,38	94,15	105,65	111,28	-1,58	5,55	-5,01	14,24	33,33	26,18	-2,90	17,73
	Messung		54,62	19,50	52,44	61,74	89,46	95,12	98,71								
Ansbach	RADM	0,820	41,75	25,01	39,46	74,81	88,69	94,82	109,72	8,37	48,93	18,96	12,87	66,14	38,66	25,14	16,55
	RACM	0,805	37,49	23,62	36,50	68,02	82,64	90,59	109,01	4,12	30,75	6,16	11,02	55,73	33,10	12,38	14,54
	RACM-MIM	0,802	37,54	23,65	36,63	67,97	82,79	91,18	110,41	4,18	32,54	6,36	11,10	57,33	33,34	12,55	14,66
	Messung		33,31	19,40	30,85	60,67	69,92	77,12	81,75								
Augsburg	RADM	0,837	45,56	26,65	44,47	82,28	91,04	102,67	110,76	2,24	40,04	4,71	11,26	64,11	27,47	5,48	14,62
	RACM	0,816	41,70	25,55	41,97	77,10	83,99	98,91	108,28	-1,42	22,75	-5,47	11,85	56,05	28,90	-3,46	15,02
	RACM-MIM	0,811	41,89	25,60	41,84	77,40	84,55	99,97	110,14	-1,23	26,79	-4,97	12,01	60,05	29,31	-3,01	15,20
	Messung		42,79	24,81	40,62	77,12	84,73	96,14	98,71								
Erlangen	RADM	0,814	41,99	26,72	39,64	78,33	90,62	102,66	113,43	7,29	217,78	30,61	12,52	234,83	38,54	22,41	17,53
	RACM	0,806	37,77	25,09	36,10	71,52	85,23	95,88	107,93	3,29	172,16	19,26	11,81	197,15	36,30	10,13	16,14
	RACM-MIM	0,804	37,90	25,14	36,25	71,39	85,78	96,92	108,45	3,41	176,11	20,03	11,89	200,73	36,56	10,49	16,27
	Messung		34,22	26,71	31,88	70,28	84,32	95,12	99,74								
München- Johannes- kirchen	RADM	0,792	46,31	26,39	44,70	81,94	91,82	100,98	109,47	0,39	37,14	0,60	12,38	64,54	28,43	0,89	16,31
	RACM	0,775	43,14	24,85	42,45	77,44	85,87	96,73	105,98	-2,62	28,14	-6,19	13,05	62,35	29,95	-6,01	16,65
	RACM-MIM	0,762	42,93	25,38	42,18	78,28	86,98	97,15	107,71	-2,82	26,05	-8,10	13,40	61,87	30,78	-6,47	17,32
	Messung		45,72	25,15	43,70	80,21	89,38	98,48	101,29								
Neustadt	RADM	0,821	44,26	24,95	42,18	78,95	87,68	94,07	107,56	12,01	13,99	-8,10	10,65	39,88	26,08	2,86	14,07
	RACM	0,796	40,33	23,51	39,06	73,82	81,52	88,72	107,02	-2,56	4,67	-11,14	11,34	40,48	27,78	-6,28	14,57
	RACM-MIM	0,790	40,33	23,77	38,90	74,39	82,43	90,08	108,65	-2,57	4,37	-11,45	11,56	40,69	28,31	-6,29	14,86
	Messung		42,87	22,30	40,62	74,04	81,75	92,54	99,11								
Neu-Ulm	RADM	0,829	41,83	27,69	40,16	78,71	90,24	102,56	110,76	-1,14	1,77	-16,26	11,63	41,09	28,49	-2,80	15,12
	RACM	0,811	38,64	26,33	37,46	73,71	85,01	99,93	109,21	-4,17	-6,34	-25,65	12,23	41,91	29,96	-10,21	15,62
	RACM-MIM	0,808	38,28	26,44	37,35	73,72	85,39	101,35	109,83	-4,50	-6,61	-26,49	12,48	42,75	30,57	-11,03	15,90
	Messung		33,54	22,92	29,82	67,35	75,99	83,29	86,77								
Regensburg	RADM	0,710	45,64	23,92	43,14	78,86	88,67	95,39	105,64	15,27	120,92	42,10	17,75	130,17	63,69	54,79	22,70
	RACM	0,689	41,40	22,66	39,42	73,52	82,84	89,43	102,97	11,26	99,72	32,02	15,01	113,32	53,88	40,42	19,80
	RACM-MIM	0,687	41,42	22,82	39,64	73,77	83,56	91,85	104,43	11,28	99,91	32,07	15,07	113,56	54,09	40,48	19,93
	Messung		28,99	17,23	27,25	53,47	59,13	66,08	70,83								

Tabelle 5.8: Statistik D4: Vergleich von Simulationen und Messdaten der O_3 -Konzentrationen vom 01.07.-31.08.03

Station		r	MW	SD	Q_{50}	Q_{90}	Q_{95}	Q_{98}	Q_{99}	MB	MNBE	MFB	MAGE	MNGE	NME	NMB	RMSE
Andechs	RADM	0,675	60,12	18,16	60,63	86,95	95,05	104,58	108,87	7,06	27,76	14,491	13,30	37,56	24,46	12,98	16,77
	RACM	0,618	58,15	17,96	58,20	84,63	93,43	103,81	109,77	5,44	25,36	11,721	14,00	38,79	25,74	10,01	17,27
	RACM-MIM	0,631	54,62	18,77	56,08	84,85	93,22	104,70	109,80	3,48	20,21	7,868	13,66	36,45	25,12	6,40	16,79
	Messung		54,62	19,50	52,44	61,74	89,46	95,12	98,71								
Ansbach	RADM	0,817	49,82	22,35	46,85	79,25	92,49	99,40	113,80	16,49	105,98	27,51	17,49	109,05	52,54	49,55	20,97
	RACM	0,804	45,29	21,44	43,03	73,05	86,90	95,61	112,89	11,96	83,36	21,35	14,06	89,48	42,25	35,95	17,62
	RACM-MIM	0,797	45,36	21,54	43,23	73,19	87,87	95,84	113,82	12,03	85,52	21,44	14,23	91,76	42,75	36,15	17,86
	Messung		33,31	19,40	30,85	60,67	69,92	77,12	81,75								
Augsburg	RADM	0,814	51,33	22,41	49,00	81,64	91,49	103,29	108,52	8,31	91,82	15,69	13,24	101,36	30,97	19,44	16,47
	RACM	0,777	48,30	21,74	47,16	77,82	86,30	101,35	107,05	5,30	80,76	11,31	13,29	96,08	31,08	12,40	16,38
	RACM-MIM	0,789	47,85	22,10	46,46	78,21	87,26	103,34	108,28	4,85	76,07	10,73	12,99	91,69	30,38	11,34	15,87
	Messung		42,79	24,81	40,62	77,12	84,73	96,14	98,71								
Erlangen	RADM	0,810	41,95	24,82	40,26	74,83	85,52	98,59	109,67	7,45	241,40	15,88	12,75	101,36	39,17	22,90	17,38
	RACM	0,804	37,75	23,48	36,99	68,31	79,59	92,55	106,46	3,44	187,29	8,79	12,02	96,08	36,93	10,59	16,03
	RACM-MIM	0,801	37,88	23,49	37,04	68,30	80,17	93,54	106,68	3,63	195,71	9,67	12,13	91,69	37,27	11,16	16,16
	Messung		34,22	26,71	31,88	70,28	84,32	95,12	99,74								
München- Johannes- kirchen	RADM	0,769	47,98	24,88	47,93	81,14	90,43	100,24	106,82	2,24	54,39	2,18	13,65	78,20	29,88	4,91	17,12
	RACM	0,759	44,62	23,80	44,77	76,41	84,62	97,87	104,67	-1,10	42,70	-3,82	13,84	73,73	30,32	-2,42	17,07
	RACM-MIM	0,742	44,55	24,30	44,44	77,08	85,91	97,96	105,45	-1,17	40,76	-4,58	14,38	72,93	31,50	-2,56	17,79
	Messung		45,72	25,15	43,70	80,21	89,38	98,48	101,29								
Neustadt	RADM	0,799	47,97	21,95	46,20	78,42	87,40	92,41	105,88	5,09	35,29	7,84	11,44	49,14	26,72	11,88	14,91
	RACM	0,773	43,94	21,01	42,11	72,90	81,67	87,66	105,65	1,07	23,09	1,46	11,50	45,13	26,85	2,49	14,67
	RACM-MIM	0,770	43,91	21,21	42,03	73,14	82,13	88,74	107,27	1,03	23,44	1,22	11,57	45,68	27,00	2,42	14,82
	Messung		42,87	22,30	40,62	74,04	81,75	92,54	99,11								
Neu-Ulm	RADM	0,731	49,65	23,46	46,96	81,57	91,90	103,15	111,17	16,10	200,00	51,97	18,90	206,88	56,40	48,04	23,43
	RACM	0,706	45,89	22,63	43,87	76,02	86,57	99,34	111,35	12,34	178,50	44,28	17,13	189,52	51,12	36,82	21,37
	RACM-MIM	0,701	45,65	22,80	43,66	76,12	87,56	100,49	112,08	12,10	172,30	43,57	17,24	184,13	51,46	36,12	21,41
	Messung		33,54	22,92	29,82	67,35	75,99	83,29	86,77								
Regensburg	RADM	0,686	43,71	24,94	43,23	76,57	88,08	93,61	102,23	14,21	104,80	35,05	18,74	121,70	64,73	49,08	22,83
	RACM	0,667	39,64	23,73	39,80	70,91	81,74	88,36	100,45	10,18	86,42	23,71	16,43	109,85	56,73	35,17	20,21
	RACM-MIM	0,667	39,77	23,81	39,82	71,25	82,34	89,79	101,04	10,32	86,27	24,32	16,43	108,92	56,75	35,63	20,31
	Messung		29,15	17,24	27,25	53,68	59,64	66,26	70,92								

Tabelle 5.9: Statistik D4: Grundlage Zeitreihen der Tagesmaxima der O_3 -Konzentrationen vom 01.07.-31.08.03

Station		r	MW	SD	Q_{50}	Q_{90}	Q_{95}	Q_{98}	Q_{99}	MB	MNBE	MFB	MAGE	MNGE	NME	NMB	RMSE
Andechs	RADM	0,727	78,55	16,80	76,99	103,12	108,86	115,92	117,49	2,84	5,19	3,76	10,36	14,23	13,68	3,74	12,44
	RACM	0,666	75,12	17,75	69,95	101,66	107,42	117,32	119,99	-0,59	0,66	-1,04	12,14	16,28	16,04	-0,78	13,85
	RACM-MIM	0,673	74,87	18,16	69,88	103,40	108,60	117,32	119,72	-0,85	0,20	-1,51	12,17	16,28	16,07	-1,11	13,94
	Messung		75,71	16,26	72,49	98,71	101,29	106,63	107,76								
Ansbach	RADM	0,851	74,83	17,92	70,64	96,36	101,47	118,91	124,83	15,38	27,60	14,70	15,48	27,75	26,04	25,86	17,98
	RACM	0,809	69,25	18,60	63,44	90,81	97,29	117,11	124,37	9,80	17,96	9,53	11,99	21,22	20,17	16,48	14,61
	RACM-MIM	0,810	69,00	18,88	62,99	90,91	98,13	117,12	124,30	9,55	17,43	9,22	11,87	20,90	19,98	16,05	14,55
	Messung		59,45	14,94	56,04	81,75	85,35	94,09	96,76								
Augsburg	RADM	0,798	76,45	17,13	74,45	100,38	108,32	114,53	116,99	2,41	4,62	2,03	9,39	13,39	12,68	3,25	10,95
	RACM	0,745	72,15	17,66	67,91	95,57	107,39	113,33	116,61	-1,88	-1,19	-2,10	10,68	14,73	14,43	-2,54	12,37
	RACM-MIM	0,742	72,05	18,11	67,54	96,10	109,21	114,60	118,61	-1,98	-1,41	-2,30	10,81	14,85	14,60	-2,67	12,64
	Messung		74,04	16,81	75,58	100,77	102,83	102,83	104,27								
Erlangen	RADM	0,860	70,81	18,69	67,19	98,05	103,56	114,36	118,62	3,20	6,93	3,40	8,13	13,16	12,68	4,98	10,46
	RACM	0,837	65,08	18,84	59,21	92,68	96,91	113,49	118,65	-2,25	-1,46	-2,22	8,77	13,42	13,68	-3,51	11,00
	RACM-MIM	0,833	64,98	19,29	58,52	93,50	97,82	114,74	120,11	-2,35	-1,71	-2,43	9,01	13,69	14,05	-3,65	11,24
	Messung		67,45	19,95	65,30	97,94	105,55	113,06	114,36								
München- Johannes- kirchen	RADM	0,720	76,51	16,82	76,12	97,10	108,53	110,02	113,63	-0,59	0,74	-0,74	10,48	13,95	13,60	-0,76	12,34
	RACM	0,671	71,66	17,41	67,67	93,57	103,20	107,08	112,61	-5,53	-5,78	-5,62	12,58	16,30	16,32	-7,17	14,69
	RACM-MIM	0,658	71,60	18,07	66,96	95,63	105,49	109,07	114,68	-5,60	-5,93	-5,83	13,02	16,78	16,89	-7,26	15,23
	Messung		77,81	16,35	75,58	99,74	105,40	106,32	110,54								
Neustadt	RADM	0,798	74,12	16,17	71,50	92,17	93,01	111,62	115,59	1,097	3,03	1,05	8,53	12,13	11,70	1,50	10,39
	RACM	0,748	68,73	16,86	65,24	86,83	89,43	110,71	115,71	-4,465	-4,83	-4,55	10,06	13,53	13,79	-6,12	12,58
	RACM-MIM	0,739	68,68	17,51	64,87	87,54	90,30	112,10	117,20	-4,436	-4,86	-4,67	10,40	14,00	14,26	-6,08	12,96
	Messung		73,47	16,68	73,01	95,12	104,88	106,94	108,89								
Neu-Ulm	RADM	0,643	78,00	18,19	75,75	99,18	111,77	120,71	123,55	13,02	25,08	19,54	16,02	28,83	24,67	20,05	19,86
	RACM	0,612	73,23	18,60	69,19	92,79	111,97	122,01	123,98	8,16	17,32	12,90	15,09	26,37	23,24	12,56	17,80
	RACM-MIM	0,607	72,88	19,14	68,82	93,70	113,20	123,36	125,05	7,85	16,72	12,32	15,27	26,46	23,51	12,09	17,98
	Messung		65,89	17,83	65,30	88,95	93,57	94,09	94,70								
Regensburg	RADM	0,780	73,73	15,97	72,05	94,09	94,92	111,30	115,98	17,41	32,96	26,87	17,88	33,84	31,75	30,91	20,04
	RACM	0,761	68,01	16,37	62,78	87,63	89,68	109,12	115,26	11,69	22,45	18,54	13,13	24,92	23,30	20,75	15,74
	RACM-MIM	0,757	68,19	16,94	63,74	88,96	91,03	110,42	116,67	11,87	22,67	18,63	13,57	25,60	24,10	21,08	16,16
	Messung		56,32	12,76	55,01	72,49	78,66	85,04	85,55								

Tabelle 5.10: Statistik D4: Grundlage Zeitreihen der täglichen 8-Stundenmittelwerte (10 - 18 Uhr Ortszeit) der der O_3 -Konzentrationen vom 01.07. - 31.08.03

Station		r	MW	SD	Q_{50}	Q_{90}	Q_{95}	Q_{98}	Q_{99}	MB	MNBE	MFB	MAGE	MNGE	NME	NMB	RMSE
Andechs	RADM	0,727	78,55	16,80	76,99	103,12	108,86	115,92	117,49	2,84	5,19	3,76	10,36	14,23	13,69	3,74	12,44
	RACM	0,666	75,12	17,75	69,95	101,66	107,42	117,32	119,99	-0,59	0,66	-1,04	12,15	16,28	16,04	-0,79	13,85
	RACM-MIM	0,673	74,87	18,16	69,88	103,40	108,60	117,32	119,72	-0,85	0,12	-1,51	12,17	16,28	16,08	-1,12	13,94
	Messung		75,71	16,26	72,49	98,71	101,29	106,63	107,76								
Ansbach	RADM	0,780	67,82	16,41	63,33	90,54	96,50	107,39	110,31	20,86	48,57	22,87	20,86	48,57	44,41	44,41	23,21
	RACM	0,748	62,03	16,77	56,20	85,15	89,82	105,33	109,99	15,07	35,75	17,31	15,37	36,27	32,72	32,08	18,68
	RACM-MIM	0,751	61,97	17,22	55,97	86,13	91,88	107,04	111,49	15,01	35,35	17,15	15,30	35,89	32,59	31,96	18,77
	Messung		46,96	12,48	45,88	64,15	66,11	72,26	75,63								
Augsburg	RADM	0,734	68,97	15,61	68,81	87,65	97,43	102,04	105,71	7,77	14,56	7,42	10,65	19,27	17,39	12,70	13,27
	RACM	0,675	64,53	16,22	61,59	83,72	93,53	100,78	105,27	3,33	7,19	2,72	10,68	18,70	17,45	5,44	12,64
	RACM-MIM	0,679	64,44	16,67	62,02	83,38	94,26	102,75	107,50	3,24	6,93	2,52	10,83	18,84	17,69	5,30	12,80
	Messung		61,20	13,75	63,27	78,63	82,99	86,19	87,31								
Erlangen	RADM	0,789	61,95	16,89	59,12	88,46	92,18	99,53	103,66	9,37	22,15	10,75	11,05	24,72	22,31	18,91	14,07
	RACM	0,746	56,46	17,18	51,11	83,30	86,05	98,28	103,50	4,15	11,67	4,66	9,60	21,05	19,38	8,38	12,17
	RACM-MIM	0,749	56,32	17,48	50,76	84,10	86,85	99,45	104,78	4,02	11,22	4,44	9,66	20,93	19,51	8,11	12,19
	Messung		52,10	15,66	50,34	74,41	80,41	85,06	86,90								
München-Johanneskirchen	RADM	0,599	66,21	16,00	64,01	87,44	92,53	98,02	101,00	2,39	6,49	1,77	11,25	19,57	17,69	3,75	14,01
	RACM	0,562	61,01	16,44	57,30	82,81	90,26	94,71	100,16	-2,84	-1,97	-4,25	12,63	20,93	19,85	-4,46	14,94
	RACM-MIM	0,534	61,46	17,25	54,95	83,91	91,78	96,95	101,77	-2,45	-1,32	-4,07	13,31	22,05	20,91	-3,85	15,76
	Messung		64,40	14,84	64,48	84,38	86,62	89,93	92,69								
Neustadt	RADM	0,624	66,68	14,97	64,20	83,52	87,05	100,36	104,50	6,76	13,49	6,57	10,53	19,33	17,63	11,32	13,78
	RACM	0,550	61,61	15,44	59,54	77,81	82,55	99,29	104,24	1,59	4,81	0,91	11,35	19,83	19,00	2,66	13,50
	RACM-MIM	0,549	61,45	16,04	58,75	79,49	83,13	100,29	105,55	1,47	4,49	0,61	11,55	20,05	19,33	2,47	13,83
	Messung		60,16	12,67	61,00	74,82	84,29	85,80	86,39								
Neu-Ulm	RADM	0,445	69,01	16,19	65,64	89,21	98,82	105,50	108,35	18,17	48,31	32,49	19,68	50,82	38,77	35,79	24,59
	RACM	0,386	64,18	16,73	60,89	82,25	95,59	105,84	108,78	13,25	38,12	24,93	17,87	45,61	35,20	26,18	22,15
	RACM-MIM	0,386	63,84	16,81	60,56	84,26	96,12	105,33	108,76	12,98	37,42	24,51	17,81	45,21	35,08	25,56	22,02
	Messung		51,66	15,65	52,65	69,05	72,52	76,14	77,08								
Regensburg	RADM	0,733	64,41	14,91	62,04	83,64	85,76	99,69	104,30	22,05	57,26	42,06	22,05	57,26	52,05	52,05	24,24
	RACM	0,679	59,00	15,21	55,71	78,09	82,09	96,23	102,43	16,63	44,25	33,11	17,03	45,06	40,21	39,27	20,01
	RACM-MIM	0,685	58,99	15,62	54,78	78,44	81,96	97,88	103,71	16,62	43,97	32,98	17,23	45,21	40,67	39,24	20,11
	Messung		42,36	11,46	43,34	56,19	60,82	63,92	66,22								

Tabelle 5.11: Statistik D4: O_3/NO_x -Verhältnis vom 01.07.-31.08.03; alle Größen in ppb.

	r	MW	SD	Q_{50}	Q_{90}	Q_{95}	Q_{98}	Q_{99}	MB	MNBE	MAGE	MNGE
Andechs												
RADM	0,60	22,83	19,45	15,20	52,90	63,59	72,68	77,22	13,9	158,50	15,1	172,56
RACM	0,56	19,55	16,38	14,26	45,28	54,28	63,51	71,77	10,6	129,04	11,9	145,05
RACM-M.	0,56	17,39	15,95	11,87	42,60	51,41	61,39	70,08	8,4	97,83	10,5	122,09
Messung		8,96	3,90	8,72	14,23	15,80	17,76	18,68				
Augsburg												
RADM	0,793	12,21	12,24	6,42	32,54	37,43	42,64	45,31	6,63	295,46	7,21	305,24
RACM	0,700	11,68	13,04	6,05	32,69	40,64	47,16	52,49	6,10	253,44	7,31	274,59
RACM-M.	0,711	11,10	12,42	5,84	30,38	38,13	45,47	50,74	5,51	217,38	6,75	238,97
Messung		5,81	5,23	4,25	14,08	15,97	18,47	19,52				
München-Johanneskirchen												
RADM	0,60	6,78	7,70	4,10	17,04	22,27	29,67	34,13	1,18	95,29	3,88	141,25
RACM	0,59	5,84	7,09	3,27	14,61	20,41	27,40	33,63	0,24	65,86	3,65	122,37
RACM-M.	0,58	5,66	6,68	3,31	14,19	19,07	25,55	30,48	0,06	63,64	3,62	121,67
Messung		5,69	5,16	4,16	13,08	16,57	19,75	21,15				

5.6 Zusammenfassung und Bewertung

Der Inter-Modellvergleich der drei Chemiemechanismen anhand von regionalen Luftchemiesimulationen hat einen deutlichen systematischen Bias zu höheren Ozonkonzentrationen für den RADM-Mechanismus im direkten Vergleich mit dem RACM- bzw. RACM-MIM-Mechanismus gezeigt. Diesen Bias verdeutlichen sowohl die kontinuierlichen Zeitreihen der Ozonkonzentrationen an den Messstationen für Domain D3 und D4, wie auch die Scatter-Plots für die täglichen Ozonmaxima und 8-Stundenmittelwerte. Bei den Scatter-Plots konnte der Bias vor allem durch die Regressionsgeraden verdeutlicht werden. Eine detailliertere Aussage bezüglich der Abweichung lieferten auch die Quantile-Quantile-Plots an allen 8 Messstationen. Diese zeigten vor allem in den Quantilen mit mittlerem bis höherem Rang (also den Bereichen der O_3 -Verteilung mit mittleren bis hohen O_3 -Konzentrationen) deutlich höhere Werte für RADM als bei den Simulationen mit RACM bzw. RACM-MIM. Die Quantile-Scatter-Plots lieferten somit nicht nur eine Aussage über die Abweichungen in der Verteilung der Ozonkonzentrationen, sondern auch über den Wertebereich in dem diese Abweichungen stattfinden. Der Bias der mit dem RADM-Mechanismus simulierten O_3 -Konzentrationen gegenüber RACM bzw. RACM-MIM ist die erste Aussage der Modellanalyse. Für den Inter-Modellvergleich und die Evaluierung mit den Beobachtungen wurden eine Reihe statistischer Größen bereitgestellt. Diese lieferten im Mittel für den RADM-Mechanismus eine systematische Abweichung in den Simulationen von ca. 4 ppb mehr Ozon im Vergleich zu RACM und RACM-MIM und quantifizieren damit die erste Aussage dieses Abschnitts.

Die Unterschiede der simulierten O_3 -Konzentrationen zwischen RACM und RACM-MIM waren sehr gering. Sie unterscheiden sich in der graphischen Modellevaluierung vor allem bei hohen O_3 -Konzentrationen. Die Quantile-Plots zeigten für RACM und RACM-MIM sehr ähnliche Verteilungen im unteren und mittleren Bereich der Quantilen, während der RACM-MIM Mechanismus für die Quantilen mit höherem Rang deutlich höhere O_3 -Konzentrationen lieferte. Dies ist die zweite Aussage der Modellanalyse. Der Unterschied zwischen RACM und

Tabelle 5.12: Statistik D4: NO_x , PAN und ONIT vom 01.07.-31.08.03; alle Größen in ppb.

	Andechs		Ansbach		Augsburg		Erlangen	
	MW	SD	MW	SD	MW	SD	MW	SD
<i>NO_x</i>								
RADM	4,91	3,64	11,23	8,89	9,19	7,56	21,63	22,00
RACM	6,07	4,40	13,18	9,53	10,44	8,00	23,74	22,11
RACM-M.	6,12	4,35	13,27	9,49	10,62	8,10	23,72	22,20
<i>PAN</i>								
RADM	1,19	0,40	0,96	0,35	1,07	0,50	0,92	0,35
RACM	0,68	0,24	0,51	0,21	0,55	0,23	0,50	0,20
RACM-M.	0,66	0,23	0,49	0,20	0,53	0,22	0,48	0,20
<i>ONIT</i>								
RADM	0.26	0.17	0.21	0.11	0.25	0.15	0.24	0.14
RACM	0.92	0.67	0.75	0.55	0.86	0.67	0.83	0.63
RACM-M.	0.45	0.34	0.37	0.26	0.41	0.31	0.45	0.37
	M-Johanneskirchen		Neustadt		Neu-Ulm		Regensburg	
	MW	SD	MW	SD	MW	SD	MW	SD
<i>NO_x</i>								
RADM	17,37	14,35	11,42	9,16	15,05	11,44	19,13	15,69
RACM	18,85	15,11	13,07	9,43	16,57	11,63	21,12	16,31
RACM-M.	18,90	14,89	13,34	9,70	16,89	11,99	21,09	16,10
<i>PAN</i>								
RADM	1,04	0,36	0,95	0,32	1,08	0,38	0,94	0,32
RACM	0,59	0,25	0,52	0,20	0,58	0,22	0,52	0,20
RACM-M.	0,58	0,24	0,51	0,19	0,55	0,21	0,50	0,20
<i>ONIT</i>								
RADM	0.27	0.19	0.22	0.13	0.24	0.13	0.23	0.14
RACM	0.84	0.70	0.79	0.58	0.86	0.64	0.75	0.58
RACM-M.	0.44	0.38	0.42	0.33	0.36	0.23	0.42	0.35

RACM-MIM beträgt für den Mittelwert der Zeitreihe der O_3 -Konzentrationen und für die Quantilen ca. 1 %. Somit konnte auch die zweite zentrale Aussage quantifiziert werden.

Die graphische Modellevaluierung zeigte für den RACM bzw. den RACM-MIM-Mechanismus bessere Übereinstimmungen der Simulationsergebnisse mit den Beobachtungen als für den RADM-Mechanismus. Dies verdeutlichten vor allem die Scatter-Plots der 8-Stundenmittelwerte und der Quantilen. Die statistischen Fehlergrößen bezüglich den Beobachtungen an den Messstationen zeigten für den RACM-MIM-Chemiemechanismus die geringsten Abweichungen und somit die besten Übereinstimmungen. Die Fehlergrößen waren im direkten Vergleich zum RACM-Mechanismus nur minimal geringer. Dies ist die dritte Aussage der Modellanalyse.

Als weitere Größe zur Evaluierung der Mechanismen wurde das O_3/NO_x -Verhältnis betrachtet. Hier zeigten Histogramm und Scatter-Plots an 3 Messstationen (NO_x -Messdaten waren nur an 3 Stationen verfügbar) für RADM einen deutlichen Trend zu höheren Werten. Dies bedeutet, dass RADM einen Trend zu mehr NO_x -limitierten Situationen zeigt, als dies bei den Simulationen mit RACM oder RACM-MIM der Fall war. Die höheren Werte im

O_3/NO_x -Verhältnis sind nicht nur auf höhere Ozonkonzentrationen zurückzuführen, sondern auch auf geringere NO_x -Konzentrationen. Dies zeigte sich z.B. in den wesentlich höheren PAN -Konzentrationen für den RADM-Mechanismus. Diese Verschiebung lässt sich damit erklären, dass sich PAN als Reservoir für NO_x verhält und dieses bei niedrigen Temperaturen stabil bindet, was zu geringeren NO_x -Konzentrationen und damit auch zu höheren O_3/NO_x -Verhältnissen führt.

Die sehr ländlich gelegene Station Andechs zeigte hier für das O_3/NO_x -Verhältnis eine sehr starke Überschätzung durch die Simulationen im Vergleich zur Messung. Hier zeigten sich vor allem Effekte der räumlichen Auflösung der regionalen Modellierung. Die hohen simulierten O_3/NO_x -Verhältnisse im Vergleich zur Messung in dieser Region resultierten aus geringen lokalen NO -Emissionen für die entsprechende Modellgitterzelle. Während die Messung aufgrund lokaler Effekte noch wesentlich höhere NO_x -Konzentrationen erfassen konnte, waren diese jedoch für die räumliche Auflösung der regionalen Modellierung nicht repräsentativ sondern lediglich punktuell lokal. Die urbane Messstation München-Johanneskirchen zeigte hingegen für das O_3/NO_x -Verhältnis eine wesentlich bessere Übereinstimmung mit der Messung. Hier repräsentierten die ebenfalls punktuellen Messungen die Werte der Simulationen für die räumliche Auflösung der regionalen Modellierung.

Der Inter-Modellvergleich hat für die regionale Ozonvorhersagegüte gezeigt, dass der RADM-Mechanismus schlechtere Ergebnisse liefert und durch den RACM- oder dem RACM-MIM-Mechanismus abgelöst werden muß. Eine Zunahme der Rechenzeit für die Berechnung der chemischen Umwandlung bei regionalen Simulationen von 10 - 20% (abhängig von der Anzahl der Gitterpunkten, Zeitschrittweiten etc.) beim Wechsel vom RADM- zum RACM-Mechanismus liefert wesentlich realistischere Ozonkonzentrationen. Der RACM-MIM-Mechanismus erfordert im Vergleich zum RACM-Mechanismus in einer regionalen Simulation mit MCCM nochmals ca. 10 - 15 % mehr Rechenleistung zur Integration des Gesamtsystems.

6 Diskussion und Ausblick

Das letzte Kapitel dieser Arbeit soll die Ideen, Umsetzungen und Ergebnisse, wie sie in den vorhergehenden Kapiteln beschrieben wurden, zusammenfassen, diskutieren und einen Ausblick auf mögliche zukünftige Arbeiten präsentieren.

6.1 Vertikale Feuchteadvektion in MM5/MCCM

In Kapitel 3 wurde ein neues Integrations- und Advektionsverfahren für die Feuchteadvektion in MM5 vorgestellt. Bei der Entwicklung des Verfahrens musste darauf geachtet werden, dass sich das Verfahren konsistent in das numerische Integrationsschema in MM5 integrieren lässt. Bei der simultanen Integration aller in MM5 gekoppelten Erhaltungsgleichungen (Impuls, Energie und Partialmassen, sowie der Zustandsgleichungen für ein Fluid) wird kein Time-Splitting Verfahren verwendet, sondern die einzelnen Beiträge aus allen gekoppelten physikalischen Prozessen werden als Teiländerungsraten berechnet und für die Integration des Gesamtsystems zur Verfügung gestellt. Durch nichtlineare Limitierungen wird dabei Stabilität sichergestellt. Aufgrund der sehr starken Abhängigkeit der physikalischen Module untereinander, musste bei der Verfahrensentwicklung auf eine entsprechend konsistente Formulierung des neuen Integrations- und Advektionsverfahrens auf drei Zeitniveaus geachtet werden. Als Nebenbedingungen für die Verfahrensentwicklung kamen im Hinblick auf den Einsatz der modifizierten MM5-Version für regionale Klimasimulationen (Simulationszeiträume von 10 - 100 Jahren) eine möglichst hohe numerische Effizienz und die Einschränkungen durch die in MM5 benutzten Parallelisierungswerkzeuge hinzu, die den Einsatz von Diskretisierungsschemata höherer Ordnung beschränken (Michalakes 2000a, b).

Die deutliche Verbesserung der advektiven Transporteigenschaften des neuen numerischen Verfahrens wurde anhand von eindimensionalen Advektionstests gezeigt. Das Verfahren reduzierte die zuvor erwähnten Defizite des in MM5 verwendeten Leapfrog-Verfahrens mit dem Asselin Zeitfilter deutlich. Es konnte gezeigt werden, dass durch den gewählten Ansatz die Bildung von numerisch erzeugten Wellen in der numerischen Lösung wesentlich stärker unterbunden wird, als dies beim original MM5-Verfahren der Fall ist.

Eine Evaluierung der MM5-Simulationen mit DWD-Niederschlagsbeobachtungen bestätigte, dass das neue Verfahren zu deutlichen Verbesserungen in der Niederschlagsvorhersage führt. Es ergab sich vor allem im Luv- und Lee-Bereich der Mittelgebirge eine deutliche Verbesserung der simulierten Niederschläge. Hier setzt die Kondensation in der Anströmung durch das modifizierte Verfahren in MM5 deutlich früher ein als mit dem original MM5, was zu realistischeren Niederschlägen führt. Entsprechend erhalten die Gebiete im Lee-Bereich geringere Niederschläge. Die vorhandenen DWD-Niederschlagsbeobachtungen bestätigten dies.

Die mit dem modifizierten MM5 erzielten Niederschlagsverteilungen haben im Vergleich

zum original MM5 bessere Übereinstimmungen mit den Ergebnissen einer Studie gezeigt, in der mehrere regionale Klimamodelle anhand von flächenbezogenen Niederschlagsbeobachtungen evaluiert wurden. Es wird aufgrund der gezeigten Ergebnisse erwartet, dass das modifizierte MM5 in regionalen Klimasimulationen realistischere Niederschlagsverteilungen produzieren wird. Damit wurde ein wesentlicher Beitrag dazu geleistet, die Genauigkeit zukünftiger regionaler Klimasimulationen zu verbessern.

Die Evaluierung von räumlich und zeitlich hochaufgelösten Simulationen der Wasserdampfverteilung mit Vertikalprofilen aus LIDAR-Beobachtungen an den Stationen Lindenberg, Leipzig und Ziegendorf führte nicht zu dem gewünschten Erfolg. Die Untersuchung hat gezeigt, dass die verfügbare MM5-Modellinitialisierung für eine derartige Untersuchung nicht geeignet ist. Trotz der Verwendung der Radiosondendaten über die MM5-FDDA-Option konnten in den Simulationen die beobachteten Feuchteverteilungen nicht ausreichend exakt wiedergegeben werden.

Der Intermodellvergleich der MM5-Simulationen diagnostiziert für das modifizierte MM5 eine um ca. 50-75 Meter tiefer liegende nächtliche Grenzschichthöhe. Der am Boden verdunstende Wasserdampf verteilt sich somit auf ein geringeres Volumen und führt in der Grenzschicht zu feuchteren Verhältnissen, da der vertikale Austausch über die Grenzschicht hinaus gering ist. Dieses Phänomen zeigte sich systematisch für alle in MM5 zur Verfügung stehenden Grenzschichtparameterisierungen.

Die Untersuchung hat ein mögliches Vorgehen für eine dreidimensionale Evaluierung von MM5-Simulationen gezeigt. Für einen Vergleich von simulierten Wasserdampfverteilungen mit Lidar-Beobachtungen sind allerdings wesentlich genauere Modellinitialisierungen erforderlich. Denkbar wären z.B. zusätzliche Radiosondenaufstiege an den Stationen vor dem Beobachtungszeitraum. Mit diesen zusätzlichen Informationen zur Modellinitialisierung sollte MM5 in der Lage sein, die meteorologische Situation möglichst exakt zu erfassen und wiederzugeben. Aufgrund der sehr beschränkten Datenlage bezüglich geeigneter und verfügbarer Lidar-Messungen, war eine solche Initialisierung nicht möglich.

In der Literatur konnte bisher keine vergleichbare dreidimensionale Evaluierung von MM5-Simulationen gefunden werden. Die meisten Modellevaluierungen beschränken sich auf einen Vergleich von Simulationsergebnissen mit Beobachtungen am Boden. Einzelne Arbeiten zu Evaluierungen von Simulationen mit Beobachtungen aus Radiosondenaufstiegen oder Flugzeugmessungen sind zwar vorhanden, die Messungen repräsentieren aber lediglich räumliche und zeitliche Punktmessungen im Modellgebiet. In der dreidimensionalen Modellevaluierung regionaler Meteorologiemodelle besteht somit noch erheblicher Bedarf, die vorhandenen Wissensdefizite bezüglich der Genauigkeit der regionalen Simulationen zu befriedigen.

6.2 Advektion chemischer Spurenstoffe

Im Kapitel 4 der vorliegenden Arbeit wurde anhand von O_3 -Konzentrationen gezeigt, dass sich durch die Implementierung zweier alternativer Advektionsverfahren in MCCM dessen Eigenschaften zur Simulation von chemischen Spurenstoffen wesentlich verbessert haben.

Dabei wurde zuerst anhand eines numerischen Advektionsexperiments verdeutlicht, dass die verschiedenen numerischen Advektionsverfahren eine große Quelle für Ungenauigkeiten

bei der Simulation von Spurenstoffverteilungen sind. Für den numerischen Advektionstest im MCCM wurden mehrere Verfahren aus der Literatur ausgewählt, eine dreidimensionale Version für die MCCM-Modellgleichungen in Pseudoflussform und für das MCCM-Modellgitter entwickelt und als optionales Verfahren in MCCM implementiert. Anschließend wurde der Advektionstest basierend auf den MCCM-Modellgleichungen und -Modellgitter durchgeführt. Das numerische Experiment zeigt für das MPDATA-Referenzverfahren starke numerische Diffusion sowie einen positiven Phasenfehler und für die beiden alternativen Advektionsverfahren BOTTM und BOTTP deutlich Gradienten erhaltendere Eigenschaften. Damit bestätigte sich bereits die erste Vermutung, dass die unterschiedlichen Advektionsverfahren in regionalen Simulationen deutliche qualitativ Unterschiede in den transportierten Größen erzeugen werden.

Dass diese Unterschiede nicht vernachlässigbar sind, wurde anhand detaillierter Betrachtungen von simulierten *CO*-Abluftfahnen in unmittelbarer Nähe zur Emissionsquelle bestätigt. Die Advektionsverfahren BOTTM und BOTTP produzierten in den Simulationen deutlicher ausgeprägte Abluftfahnen mit wesentlich höheren *CO*-Konzentrationen. In der Referenzsimulation mit dem wesentlich diffusiveren MPDATA-Verfahren waren die Abluftfahnen kaum erkennbar und resultierten in wesentlich geringeren *CO*-Konzentrationen. Die lokalen Unterschiede in den *CO*-Konzentrationen lagen bei über 100%. Es wurde bei dieser Untersuchung ebenfalls gezeigt, dass das positiv definite Bott-Advektionsverfahren BOTTP bei der Simulation der sehr starken lokalen Gradienten an den Emissionsquellen durch ein Überspringen erhebliche numerische Fehler induzierte. Bei quasi-inerten Spurenstoffen wie *CO* haben solche Fehler keine gravierenden Auswirkungen auf die Gesamtsimulation. Handelt es sich bei den Emissionen aber um sehr schnell reagierende Spurenstoffe wie *NO*, so erfolgt durch die nichtlineare Luftchemie eine sehr schnelle chemische Umwandlung und die numerisch induzierten Fehler beeinflussen das lokale photostationäre Gleichgewicht. Die numerisch verstärkten lokalen Spurenstoffgradienten können vor allem bei der Verwendung des QSSA-Lösers als numerisches Integrationsverfahren durch nichtlineare Rückkopplungen im Modell zu numerischen Stabilitätsproblemen führen, wenn die Integrationszeitschritte sehr progressiv gewählt wurden.

In den Verteilungen von reaktiven Emittenten, z.B. bei den *NO*-Konzentrationen, wurden durch die verschiedenen Advektionsverfahren in den regionalen Simulationen im Mittel über den Simulationszeitraum im Domain D3 und D4 Unterschiede von bis zu 100% erzeugt. Die Ursachen für diese Unterschiede liegen an unterschiedlichen lokalen Spurenstoffverteilungen in der Nähe der Emissionsquellen. Diese Unterschiede pflanzen sich z.B. durch die Nestung auf die Unter-Domains entsprechend fort. In den Simulationen für Domain D2 haben die lokalen *NO_x*-Abluftfahnen von Barcelona, Paris und London, die alle in Domain D1 in unmittelbarer Nähe zum D2 lagen, die Randbedingungen für Domain D2 sehr stark beeinflusst. Für Domain D3 haben ähnliche Effekte in den lokalen *NO_x*-Abluftfahnen an den Domainrändern (Emissionsquellen entlang des Rheins im Westen und in Tschechien im Osten) die Unterschiede noch verstärkt und zu den gezeigten unterschiedlichen Spurenstoffverteilungen, vor allem für die *NO*-Konzentrationen geführt. Diese wirkten sich durch eine stärkere *O₃*-Titration erheblich auf die Verteilung von sekundären Luftschadstoffen wie *O₃* aus.

Es konnte gezeigt werden, dass die Sensitivität der simulierten *O₃*-Konzentrationen be-

züglich der numerischen Advektionsverfahren bei der größeren Auflösung von 6 km deutlich stärker war, als bei der feinen Auflösung von 2 km. In den 3 Simulationen mit der feinsten Auflösung waren die Unterschiede in den simulierten O_3 -Konzentrationen wesentlich geringer, trotz deutlich höheren urbanen NO -Konzentrationen in den Simulationen mit den Bott-Verfahren. In dieser Auflösung sind offenbar andere Prozesse dominant und beeinflussen die O_3 -Konzentrationen weit wesentlicher, als es die Unterschiede in den Advektionsverfahren vermögen.

Den hochaufgelösten MCCM-Simulationen mit den Bott-Advektionsverfahren bestätigen die statistischen Größen und Fehlermaße deutlich bessere Übereinstimmungen mit den Beobachtungen als für das Referenzverfahren. Vor allem das positiv definite Bott-Advektionsverfahren, welches sich durch seine Eigenschaft auszeichnet, starke Gradienten beim advektiven Transport sehr gut zu erhalten, produzierte hier die beste Übereinstimmung, bzw. die geringsten Abweichungen mit den Beobachtungen.

Aufgrund der Tatsache, dass nur sehr wenige, mit dem MCCM vergleichbare Modelle existieren, sind in der Literatur nur einzelne Arbeiten über Advektionsverfahren für Luftchemiemodelle veröffentlicht. Die meisten Publikationen behandeln aber globale Chemiemodelle mit einer spektralen Diskretisierung. Lediglich Chock u. a. (2005) und Percell und Byun (2006) zeigen jeweils eine Implementierung eines Lagrangschen Transportverfahrens in die offline Chemietransportmodelle CMAQ und CAMX. Chock u. a. (2005) zeigen dabei mit dem CAMX-Modell im Vergleich zu dieser Arbeit wesentlich größere Unterschiede in den simulierten bodennahen CO - und O_3 -Konzentrationen aufgrund von unterschiedlichen numerischen Advektionsverfahren.

Aufgrund der Datenlage konnten lediglich bodennahe punktuelle Beobachtungen aus dem Beobachtungsnetz des bayerischen Landesamtes für Umwelt zur Evaluierung der Simulationen verwendet werden. Wünschenswert wäre aber eine dreidimensionale Evaluierung der Simulationsergebnisse z.B. mit Spurenstoff-Beobachtungen von Lidarsystemen, Radiosondenbeobachtungen und auch Messungen von Messtürmen über einen ähnlich langen Zeitraum wie in dieser Untersuchung. Entsprechende geeignete Datensätze sind entweder nicht bekannt oder nicht verfügbar. Dreidimensionale Messungen wie z.B. aus der BerliOZ Kampagne sind aufgrund des kurzen Beobachtungszeitraums von unter 48 Stunden nur bedingt eine Alternative, ebensowenig wie Flugzeugmessungen. Bei letzteren ist der Fehler durch die vertikale Interpolation auf dem Modellgitter bereits in der Größenordnung der durch diese Studie gezeigten Unterschiede. Wünschenswert wären für die Modellierung repräsentative Langzeitmessungen einer Vielzahl chemischer Spurenstoffe z.B. auf Fernsehtürmen, Windräder oder hohen Gebäuden verteilt rund um große Städte wie z.B. München oder Berlin. Die aus diesen Messungen resultierenden Datensätze würden für eine dreidimensionale Modellevaluierung die ideale Datengrundlage schaffen, anstatt auf die Daten zur lokalen Luftschadstoffüberwachung zurückgreifen zu müssen. Letztere sind, wie in dieser Arbeit diskutiert, nur begrenzt zum Vergleich mit regionalen Simulationen geeignet.

Eine dreidimensionale Modellevaluierung der chemischen Spurenstoffverteilungen ist aus vielerlei Hinsicht wünschenswert und notwendig. Vor allem in Hinblick auf die Modellierung von sekundärem Aerosol in der Troposphäre haben die in dieser Untersuchung gezeigten Unterschiede in den dreidimensionalen Spurenstoffverteilungen deutliche Auswirkungen sowohl

auf die Aerosol-Bildungsraten als auch auf die resultierenden Konzentrationen. Die Veränderung im sekundären Aerosol beeinflusst wiederum ganz wesentlich die optischen Eigenschaften des Gesamtaerosols und damit den terrestrischen Strahlungshaushalt, der wiederum die Photochemie antreibt.

6.3 Vergleich von Mechanismen für die troposphärische Luftchemie

Die Evaluierung der drei Chemiemechanismen im regionalen Modell MCCM hat für den RADM-Mechanismus im direkten Vergleich mit dem RACM- bzw. RACM-MIM-Mechanismus Bias hervorgebracht. RADM produziert in den Simulationen um ca. 4 ppb höhere bodennahe Ozonkonzentrationen. Durch eine detaillierte Betrachtung der simulierten O_3 -Verteilungen an den 8 Messstationen zeigen die Quantilen mit mittlerem bis höherem Rang deutlich höhere Ozonkonzentrationen für RADM als bei den beiden anderen Mechanismen, während letztere sehr ähnliche Verteilungen im unteren und mittleren Bereich der Verteilung produzieren. Der Unterschied zwischen RACM und RACM-MIM beträgt für den Mittelwert der Zeitreihen der Ozonkonzentrationen und für die Quantilen maximal 1 %. RACM-MIM zeigt für die Quantilen mit höherem Rang (also für die hohen Konzentrationen in der Verteilung) deutlich höhere Ozonkonzentrationen als RACM.

RACM, bzw. der RACM-MIM-Mechanismus produzieren bessere Übereinstimmungen der Simulationsergebnisse mit den Beobachtungen, vor allem für die betrachteten täglichen 8-Stundenmittelwerte der O_3 -Konzentrationen.

Das O_3/NO_x -Verhältnis zeigt in den Simulationen für RADM einen deutlichen Trend zu höheren Werten, also einen Trend zu mehr NO_x -limitierten Situationen, als dies bei den Simulationen mit RACM oder RACM-MIM der Fall ist. Die höheren Werte im O_3/NO_x -Verhältnis sind nicht nur auf höhere Ozonkonzentrationen zurückzuführen, sondern auch auf geringere NO_x -Konzentrationen.

Der Inter-Modellvergleich hat für die regionale Ozonvorhersagegüte gezeigt, dass der RADM-Mechanismus wesentlich schlechtere Ergebnisse liefert und durch den RACM- oder dem RACM-MIM-Mechanismus abgelöst werden sollte. Eine Zunahme der Rechenzeit für die numerische Integration bei regionalen Simulationen von 10 - 25% beim Wechsel vom RADM-zum RACM-Mechanismus liefert wesentlich realistischere Ozonkonzentrationen und sollte somit kein Hindernis darstellen. Der RACM-MIM-Mechanismus erfordert nochmals ca. 10 % mehr Rechenleistung zur Integration des Gesamtsystems, als der RACM-Mechanismus. Hier müssen die geringfügig besseren Ergebnisse mit einem wesentlich größeren Rechenaufwand erbracht werden.

Für die dreidimensionale Modellevaluierung gelten auch hier die bereits in Abschnitt 6.2 diskutierten Punkte.

Darüberhinaus hat der Inter-Modellvergleich der drei Chemiemechanismen in MCCM neben den wissenschaftlichen Erkenntnissen über die regionale Ozon-Modellierungsgüte auch einen völlig neuen Weg beschrieben, um in der Zukunft weitere Chemiemechanismen in MCCM oder andere regionale Modelle zu integrieren. Es wurde für die gezeigte Untersuchung in MCCM eine Schnittstelle geschaffen und darüber hinaus eine Vorgehensweise beschrieben,

die es in der Zukunft ermöglicht, einfach und effizient jeden beliebigen Gasphasenchemiemechanismus in MCCM zu implementieren. Damit wurde das regionale Modell MCCM entscheidend weiterentwickelt und vorbereitet, um auch in der Zukunft neue Herausforderungen im Bereich der regionalen Luftchemiemodellierung bearbeiten zu können. Hier sind vor allem gekoppelte regionale Luftchemie-Klimasimulationen zu nennen. Hierzu sind z.B. vereinfachte Chemiemechanismen notwendig, um solche Simulationen selbst mit den modernsten Hochleistungsrechnern noch in endlicher Zeit durchführen zu können, da regionale Chemie-Klima-Simulationen bis zu 500% mehr Rechenleistung erfordern als regionale Klimasimulationen.

Für die Klimamodellierung sind weitere Aspekte der Klimaänderung von besonderem Interesse, wie z.B. die Auswirkungen durch die von der Klimaänderung hervorgebrachten Veränderungen in der Atmosphäre auf die chemischen Eigenschaften und Zusammensetzung der troposphärischen Luft. Zu erwähnen sind hier vor allem die Veränderungen im Strahlungshaushalt durch die klimabedingten Änderungen in den optischen Eigenschaften der Atmosphäre (z.B. durch Wasserdampf, Aerosole und chemische Spurenstoffe), Veränderungen in den biogenen Kohlenwasserstoffemissionen durch klimabedingte Veränderungen in der Biosphäre und deren Auswirkungen auf die troposphärische Chemie, wie z.B. auf das Ozonbildungspotential.

Literaturverzeichnis

ANTHES, R.A. ; HSIE, E. Y. ; KUO, Y. H.: Description of the Penn State/ NCAR Mesoscale Model Version 4 (MM4) / National Center for Atmospheric Research. 1987. – Techn. Note NCAR/TN-282+STR, 66 pp.

ARNOLD, J.R. ; DENNIS, R.L. ; TONNESEN, G.S.: Diagnostic evaluation of numerical air quality models with specialized ambient observations: testing the Community Multiscale Air Quality modeling system (CMAQ) at selected SOS 95 ground sites. In: *Atmospheric Environment* 37 (2003), Nr. 9, S. 1185–1198

ASSELIN, R.: Frequency filter for time integrations. In: *Monthly Weather Review* 100 (1971), S. 487–490

BOTT, A.: A positive definite advection scheme obtained by nonlinear renormalization of the advective fluxes. In: *Monthly Weather Review* 120 (1989), S. 1006–1015

BOTT, A.: Reply. In: *Monthly Weather Review* 120 (1989), S. 2633–2536

BOTT, A.: Monotone flux limitation in the area-preserving flux-form advection algorithm. In: *Monthly Weather Review* 120 (1992), S. 2592–2602

BOTT, A.: *personal communication*. 2003

CARMICHAEL, G.R. ; PETERS, L. ; KITADA, T.: A second generation model for regional-scale transport chemistry deposition. In: *Atmospheric Environment* 20 (1986), S. 173–188

CHANG, J.S. ; BINKOWSKI, F.S. ; SEAMAN, N.L. ; MCHENRY, J.N. ; SAMSON, P.J. ; STOCKWELL, W.R. ; WALCEK, C.J. ; MADRONICH, S. ; MIDDLETON, P.B. ; PLEIM, J.E. ; LANSFORD, H.H.: The regional acid deposition model and engineering model. State-of-Science/Technology / National Acid Precipitation Assessment Program, Washington D.C. 1989 (Report 4). – Forschungsbericht

CHOCK, D. P. ; WHALEN, M. J. ; WINKLER, S. L. ; SUN, P.: Implementing the trajectory-grid transport algorithm in an air quality model. In: *Atmos. Environ.* 39 (2005)

CHOCK, D.P.: A comparison of numerical methods for solving the advection equation-II. In: *Atmospheric environment* 19 (1985), S. 571–586

CHOCK, D.P.: A comparison of numerical methods for solving the advection equation-III. In: *Atmospheric environment* 25A9 (1991), S. 853–871

CHOCK, D.P. ; DUNKER, A.M.: A comparison of numerical methods for solving the advection equation. In: *Atmospheric environment* 17 (1983), S. 11–24

- CHORIN, A. ; MARSDEN, J.: *A Mathematical Introduction to Fluid Dynamics*. Springer, 2000 (Springer Texts in Applied Mathematics)
- COURANT, R. ; FRIEDRICH, K.O. ; LEVI, H.: Über die Partiellen Differenzgleichungen der Mathematischen Physik. In: *Mathematische Annalen* 100 (1928), S. 32–74
- COURANT, R. ; HILBERT, D.: *Methods of Mathematical Physics*. Interscience New York, 1953
- CROWLEY, W.P.: Numerical advection experiments. In: *Monthly Weather Review* 96 (1968), S. 1–11
- DADUB, D. ; SEINFELD, J.H.: Numerical advection schemes used in Air Quality models - sequential and parallel implementation. In: *Atmospheric environment* 28 (1994), S. 3369–3385
- DEUFLHARD, P.: Recent progress in extrapolation methods for ordinary differential equations. In: *SIAM Review* 27 (1985), S. 505–535
- DUDHIA, J.: A nonhydrostatic version of the Penn State-NCAR mesoscale model: Validation tests and simulation of an Atlantic cyclone and cold front. In: *Monthly Weather Review* 121 (1993), S. 1493–1513
- DUDHIA, J.: PSU/NCAR Mesoscale Modeling System Tutorial Class Notes and User's Guide: MM5 Modeling System Version 3 / NCAR. 2000. – Forschungsbericht
- FRIEDRICH, R. ; WICKERT, B. ; BLANK, P. ; EMEIS, S. ; ENGEWALD, W. ; HASSEL, D. ; HOFFMANN, H. ; MICHAEL, H. ; OBERMEIER, A. ; SCHÄFER, K. ; SCHMITZ, T. ; SEDLMAIER, A. ; STOCKHAUSE, M. ; THELOKE, J. ; WEBER, F.-J.: Development of Emission Models and Improvement of Emission Data for Germany. In: *Journal of Atmospheric Chemistry* 42 (2002), Nr. Number 1 / May, S. 179–206
- FRIEDRICH, R. ; WICKERT, B. ; SCHWARZ, U. ; REIS, S.: Methodology and Models to Calculate Multiscale High Resolution Emission Data for Germany and Europe / EUROTRAC Int. Sci, Secr. Munich, Germany. 1999 (GENEMIS Annual Report). – Forschungsbericht
- GEIGER, H. ; BARNES, I. ; BJAN, T. ; BENTER, T. ; SPLITTER, M.: The tropospheric degradation of isoprene: an updated module for the regional atmospheric chemistry mechanism. In: *Atmospheric Environment* 37 (2003), S. 1503–1519
- GRELL, G. ; DUDHIA, J. ; STAUFFER, D.: A Description of the Fifth-Generation Penn State/NCAR Mesoscale Model (MM5). In: *NCAR/TN-398+STR, NCAR Technical Note* (1994)
- GRELL, G. ; STOCKWELL, S. Emeis W. ; SCHOENEMEYER, T. ; FORKEL, R. ; MICHALAKES, J. ; KNOCH, R. ; SEIDL, W.: Application of a multiscale, coupled MM5/Chemistry Model to the complex terrain of the VOTALP Valley Campaign. In: *Atmospheric Environment* 34 (2000), S. 1435–1453

GRIEBEL, M. ; DORNSEIFER, T. ; NEUNHOEFER, T.: *Numerische Simulation in der Strömungsmechanik*. Vieweg Verlag, 1995

HAIRER, E. ; WANNER, G.: *Springer Series in Computational Mathematics*. Bd. 2: *Solving Ordinary Differential Equations II: Stiff and Differential-Algebraic Problems*. 2. Springer, 2000

HERTEL, O. ; BERKOWICZ, R. ; CHRISTENSEN, J.: Test of two numerical schemes for the use in atmospheric Transport-Chemistry Models. In: *Atmospheric Environment* 16 (1993), S. 2591–2611

HESSTVEDT, O. ; HOV, O. ; ISAACSEN, I.: Quasi-steady-state-approximation in air pollution modelling: comparison to two numerical schemes for oxidant prediction. In: *International Journal of Chemistry Kinetics* 10 (1978), S. 971–994

HOGREFE, C. ; RAO, S. T. ; KASIBHATLA, P. ; HAO, W. ; SISTLA, G. ; MATHUR, R. ; MCHENRY, J.: Evaluating the Performance of Regional-Scale Photochemical Modeling Systems: Part II - Ozone predictions. In: *Atmos. Env.* 35 (2001)

JACOBSON, Mark: *Fundamentals of Atmospheric Modelling*. Cambridge University Press, 1999

JAY, L.O. ; SANDU, A. ; POTRA, F.A. ; CARMICHAEL, G.R.: Improved Quasi-steady-state-approximation Methods for atmospheric chemistry integration. In: *SIAM Journal Scientific Computing* 18 (1997), Nr. 1, S. 182–202

JAZCILEVICH, A.D. ; GARCIA, A.R. ; RUIZ-SUAREZ, L.G.: A study of air flow patterns affecting pollutant concentrations in the Central Region of Mexico. In: *Atmospheric Environment* 37 (2003)

JENKIN, M. ; M., Saunders S. ; PILLING, M. J.: The Tropospheric Degradation of volatile organic compounds: A protocol for mechanism development. In: *Atmos. Environ.* 31 (1997)

JIMENEZ, P. ; BALDASANO, J. M. ; DADUB, D.: Comparison of photochemical mechanisms for air quality modeling. In: *Atmospheric Environment* 37 (2003), Nr. 30, S. 4179–4194

JIMENEZ, P. ; JORBA, O. ; PARRA, R. ; BALDASANO, J. M.: Evaluation of MM5-EMICAT2000-CMAQ performance and sensitivity in complex terrain: High-resolution application to the northeastern Iberian Peninsula. In: *Atmospheric Environment* 40 (2006)

KEE, R.J. ; RUPLEY, F.M. ; MILLER, J.A.: CHEMKINII: A Fortran package for the analysis of gas phase chemical kinetics / Sandia National Laboratory. Livermore, CA, 1989. – Forschungsbericht

KOTLARSKI, S. ; BLOCK, A. ; BOEHM, U. ; JACOB, D. ; KEULER, K. ; KNOCH, R. ; RECHID, D. ; WALTER, A.: Regional climate model simulations as input for hydrological applications: evaluation of uncertainties. In: *Advances in Geosciences* 5 (2005)

KUHN, M. ; BUILTJES, P.J.H. ; POPPE, D. ; SIMPSON, D. ; STOCKWELL, W.R. ; ANDERSSON-SKOLD, Y. ; BAART, A. ; DAS, M. ; FIEDLER, F. ; HOV, Ø. ; KIRCHNER, F. ; MAKAR, P.A. ; MILFORD, J.B. ; ROEMER, M.G.M. ; RUHNKE, R. ; STRAND, A. ; VOGEL, B. ; VOGEL, H.: Intercomparison of the gas-phase chemistry in several chemistry and transport models. In: *Atmospheric Environment* 32 (1998), Nr. 4, S. 693–709

LAUNCH-CAMPAIGN: *Lindenberg campaign for assessment of humidity and cloud profiling systems and its impact on high-resolution modelling.* <http://www.dwd.de/de/FundE/Observator/MOL/LAUNCH2.htm>. 2005

LI, Y. ; CHANG, J.S.: A Mass-Conservative, Positive-Definite, and Efficient Eulerian Advection Scheme in Spherical Geometry and on a Nonuniform grid system. In: *Journal of Applied Meteorology* 35 (1996), S. 1897–1913

MICHALAKES, J.: RSL: A Parallel Runtime System Library for Regional Atmospheric Models with Nesting, in Structured Adaptive Mesh Refinement (SAMR) Grid Methods. In: *IMA Volumes in Mathematics and Its Applications* 117 (2000)

MICHALAKES, J.: The Same-Source Parallel MM5. In: *J. Sci. Programming* 8 (2000)

MM5-HOMEPAGE: <http://www.mmm.ucar.edu/mm5>. 2004

NCEP-DS-DATASET-353/4: *NCEP DSS353.4 Dataset: NCEP ADP Global Upper Air Observation Subset.* <http://dss.ucar.edu/datasets/ds353.4/>. 2005

NCEP-DS-DATASET-82/1: *NCEP DSS083.2 Dataset: NCEP GDAS (Global Data Assimilation System) Analyses on 2.5 x 2.5 degree grids covering the entire globe every twelve hours.* <http://dss.ucar.edu/datasets/ds082.1/>. 2003

NCEP-DS-DATASET-83/2: *NCEP DSS083.2 Dataset: Global Tropospheric Analyses on 1.0 x 1.0 degree grids covering the entire globe every six hours.* <http://dss.ucar.edu/datasets/ds083.2/>. 2005

NOWAK, U.: A short user's guide to LARKIN / onrad-Zuse Zentrum für Informationstechnik. Berlin, 1982. – Forschungsbericht

ORESQUES, N. ; SHRADER-FRECHETTE, K. ; BELITZ, K.: Verification, Validation, and Confirmation of Numerical Models in the Earth Sciences. In: *Science* 263 (1994), February, S. 641–646

PERCELL, Peter B. ; BYUN, Daewon W.: AN IMPLEMENTATION OF THE TRAJECTORY-GRID ADVECTION ALGORITHM IN CMAQ. In: *Community Modeling and Analysis System*, <http://www.cmascenter.org/> (2006)

PEYRET, R. ; TAYLOR, D.T.: *Computational Methods in Fluid Flow.* Springer Verlag, 1983 (Springer Series in Computational Physics)

PIELKE, Roger: *Mesoscale Meteorological Modelling.* Academic Press, 2002

POESCHL, U. ; KUHLMANN, R. von ; POISSON, N. ; CRUTZEN, P.: Development and inter-comparison of condensed isoprene oxidation mechanisms for global atmospheric modeling. In: *Journal of Atmospheric Chemistry* 40 (2000), S. 29–52

POPPE, D. ; AUMONT, B. ; ERVENS, B. ; GEIGER, H. ; HERRMANN, H. ; RÖTH, E.-P. ; SEIDL, W. ; STOCKWELL, W.R. ; VOGEL, B. ; WAGNER, S. ; WEISE, D.: Scenarios for Modeling Multiphase Tropospheric Chemistry. In: *Journal of Atmospheric Chemistry* 40 (2001), S. 77–86

POPPE, Dirk: *Prof. Dr. Dirk Poppe, Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre, Forschungszentrum Jülich*. personal communication. 2006

QUARTERIONI, A. ; VALLI, A.: *Numerical Approximation of Partial Differential Equations*. Springer Berlin Heidelberg, 1994 (Springer Series in Computational Mathematics)

ROOD, R.B.: Numerical advection algorithms and their role in atmospheric transport and chemistry models. In: *Review of Geophysics* 24 (1987), S. 71–100

ROSENBROCK, H. H.: Some general implicit processes for the numerical solution of differential equations. In: *J. Computer* 5 (1962)

SANDU, A. ; DAESCU, D. ; CARMICHAEL, G.R.: Direct and Adjoint Sensitivity Analysis of Chemical Kinetic Systems with KPP: I – Theory and Software Tools. In: *Atmospheric Environment* 37 (2003), S. 5083–5096

SANDU, A. ; VERWER, J.G. ; BLOM, J.G. ; SPEE, E. ; CARMICHAEL, G.R. ; POTRA, F.A.: Benchmarking stiff ODE solvers for atmospheric chemistry problems II: Rosenbrock Solvers. In: *1997* 31 (1997), Nr. 20, S. 3459–3472

SANDU, A. ; VERWER, J.G. ; LOON, M. van ; CARMICHAEL, G.R. ; POTRA, F.A. ; SEINFELD, D. Dabdub J.: Benchmarking stiff ODE solvers for atmospheric chemistry problems I: Implicit versus explicit. In: *Atmospheric Environment* 31 (1996), S. 3151–3166

SAUNDERS, S. M. ; JENKIN, M. E. ; DERWENT, R. G. ; PILLING, M. J.: Development of a Master Chemical Mechanism for Use in Tropospheric Chemistry Models. In: *EUROTRAC Newsletter* 18 (1997)

SCHAER, C. ; TORRILHON, M.: *Vorlesungsskript: Numerische Methoden in der Umweltphysik, ETH Zürich*. 2003

SEEFELD, S. ; STOCKWELL, W.R.: SBOX. In: *Atmos. Environ.* 33 (1999), S. 2941

SHAOCAI, Y. ; EDER, B. ; DENNIS, R. ; CHU, S.-H. ; SCHWARTZ, S.E.: New unbiased symmetric metrics for evaluation of air quality models. In: *Atmospheric Science Letters* 7 (2006), Nr. 1, S. 26–34

SILLMAN, S.: The use of NO_y, H₂O₂, and HNO₃ as indicators for ozone-NO_x-hydrocarbon sensitivity in urban locations. In: *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 100 (1995), S. 14175–14188

SILLMAN, S. ; HE, D. ; CARDELINO, C. ; IMHOFF, R.E.: The Use of Photochemical Indicators to Evaluate Ozone-NO_x-Hydrocarbon Sensitivity: Case Studies from Atlanta, New York, and Los Angeles. In: *Journal of Air and Waste Management Association* 47 (1997)

SILLMAN, S. ; LOGAN, J. ; WOPSY, S.: The Sensitivity of Ozone to Nitrogen Oxides and Hydrocarbons in Regional Ozone Episodes. In: *Journal of Geophysical REsearch* 95 (1990), Nr. D2, S. 1837–1851

SMOLARKIEWICZ, P.K.: The multi-dimensional Crowley advection scheme. In: *Monthly Weather Review* 110 (1982), Nr. 1968-1983

SMOLARKIEWICZ, P.K.: A simple positive definite advection scheme with small implicit diffusion. In: *Monthly Weather Review* 11 (1983), S. 479–486

SMOLARKIEWICZ, P.K.: A fully multidimensional positive definite advection transport algorithm with small implicit diffusion. In: *Journal of Computational Physics* 54 (1984), S. 25–362

SMOLARKIEWICZ, P.K. ; CLARK, T. L.: The multidimensional positive definite advection transport algorithm: further developments and applications. In: *Journal of Computational Physics* 67 (1986), S. 396–438

SMOLARKIEWICZ, P.K. ; GRABOWSKI, W.W.: The multidimensional positive definite advection transport algorithm: Nonoscillatory option. In: *Journal of Computational Physics* 86 (1990), S. 355–375

STOCKWELL, W.R. ; KIRCHNER, F. ; KUHN, M. ; SEEFELD, S.: A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. In: *Journal of Geophysical Research* 102 (1997), S. 847–879

STOCKWELL, W.R. ; MIDDLETON, P. ; CHANG, J.S.: The Second Generation Regional Acid Deposition Model - Chemical Mechanism for Regional Air Quality Modeling. In: *Journal of Geophysical Research* 95 (1990), S. 16343–16367

STRAND, Asbjorn ; HOV, Qystein: A Two-Dimensional Zonally Averaged Transport Model Including Convective Motions and a New Strategy for the Numerical Solution. In: *Journal of Geophysical Research* 98 (1993), S. 9023–9037

SUPPAN, P. ; SCHAEGLER, G.: The impact of highway emissions on ozone and nitrogen oxide levels during specific meteorological conditions. In: *Science of the Total Environment* 334 (2004)

SUPPAN, Peter: Untersuchung zur Wechselwirkung Stadt-Umland im Raum Augsburg - Abschlussbericht / Fraunhofer Institut für Atmosphärische Umweltforschung (IFU). Garmisch-Partenkirchen, 2001. – Forschungsbericht

THILMES, Stefan: *Bewertung von Transportalgorithmen fuer mesoskalige Modelle*. Department of Geophysics and Meteorology, Universität Köln, Diplomarbeit, 1994

THOMAS, J.W.: *Numerical Partial Differential Equations*. Springer New York, 1995 (Texts in Applied Mathematics 22)

TREMBACK, C.J. ; POWELL, J. ; COTTON, W.R. ; PIELKE, R.: The forward-in-time upstream advection scheme: Extension to higher orders. In: *Monthly Weather Review* 115 (1987), S. 540–555

US-EPA-450/4-91-1013: Guideline for regulatory application of the urban airshed model / U.S. Environmental Protection Agency (EPA), Office of Air Quality Planning and Standards,. 1991 (EPA-450/4-91-1013). – Forschungsbericht

US-EPA-454R98002: GUIDELINE ON OZONE MONITORING SITE SELECTION / U.S. Environmental Protection Agency (EPA), InfoDepartment of Commerce, National Technical Information Service. 1998 (EPA-454R98002). – Forschungsbericht

WITTERUNGSREPORT-10/2005: Witterungsreport express Oktober 2005 / Deutscher Wetterdienst, Offenbach. 2005 (ISSN 1436-6789, D 48847). – Forschungsbericht

Abbildungsverzeichnis

2.1	Datenfluss des MM5-Modellsystems, Quelle: Dudhia (2000)	4
2.2	Modellorographie und Nestung der Modellgebiete: D1 (54 km Auflösung), D2 (18 km Auflösung), D3 (6 km Auflösung) und D4 (2 km Auflösung)	5
2.3	a) Skizze für bodenfolgende Koordinaten mit σ -Schichten; b) Horizontale Gitterstruktur mit Nest: An den Punkten sind die Horizontalgeschwindigkeiten u und v , an den Kreuzen alle restlichen Größen definiert; c) Gitterzelle mit (Arakawa-B) Gitter für die skalaren Größen (z.B. T , q , p) und die Geschwindigkeitskomponenten u , v und σ	6
3.1	Nestung für das Simulationsgebiet mit Domain D1 und D2	19
3.2	Orografie Domain D2 und Lage der DWD-Niederschlagsmessstationen (graue Kreise, siehe Tab. 3.2) und der Lidar-Messstationen (rote Kreise, siehe Tab. 3.3)	20
3.3	Numerischer eindimensionaler Advektionstest für ein äquidistantes Gitter mit a) 32 und b) 128 Gitterzellen, sowie für ein nicht-äquidistantes Gitter mit c) 32 und d) 128 Gitterzellen; Der Abstand der Gitterpunkte für das nicht-äquidistante Gitter ist in e) für 32 und in f) 128 Gitterzellen gegen die X-Achse dargestellt.	22
3.4	Niederschlagsverteilung für Oktober 2005: a) Simulation mit MM5 V3.6 und b) Differenzen der simulierten Niederschlagsverteilungen (original MM5 minus modifiziertes MM5)	27
3.5	a) Niederschlagsverteilung 01. - 04. Oktober 2005 und b) Differenz der simulierten Niederschlagsverteilungen (original MM5 minus modifiziertes MM5) Domain D2	28
3.6	Lidar-Beobachtung Lindenberg: Vertikalprofil (von ca. 800 - 10 000 m über Grund) des Wasserdampfmischungsverhältnisses [g/kg] vom 26.10. 19:23 - 27.10.05 4:03 Uhr	31
3.7	Standort Lindenberg: a) MM5-Simulation (original MM5) für die Vertikalverteilung des Wasserdampfmischungsverhältnisses [g/kg] und b) Differenz des Wasserdampfmischungsverhältnis (original minus modifiziertes MM5) vom 26.10. 19:15 - 27.10.05 4:00 Uhr	32
3.8	Vertikale Verteilung der Wasserdampfmischungsverhältnisse [g/kg] gegen die Beobachtungszeit [Minuten] der MM5 Simulationen und vom RAMAN-Lidar an der Lidar-Station Lindenberg; Vertikale Verteilung des Wasserdampfmischungsverhältnis vom Boden (0 m) bis auf 10 000 m über Grund; Beobachtungszeitraum: 26.10. 19:23 - 27.10.05 04:40 Uhr	33

3.9	Wie Abb. 3.8 aber für die Differenzen der Wasserdampfmischungsverhältnisse [g/kg] an der Lidar-Station Lindenberg	34
3.10	Lidar-Beobachtung Standort Leipzig: Vertikalprofil (von ca. 200 - 10 000m über Grund) des Wasserdampfmischungsverhältnis [g/kg] vom 26.10. 17:45 - 27.10.05 5:15 Uhr	34
3.11	Wie Abb. 3.7 an der Lidar-Station Leipzig (vom 26.10.05 17:45 bis 27.10.06 04:45 Uhr)	35
3.12	Wie Abb. 3.8 an der Lidar-Station Leipzig (vom 26.10.05 17:45 bis 27.10.06 04:45 Uhr)	35
3.13	Wie Abb. 3.9 an der Lidar-Station Leipzig (vom 26.10.05 17:45 bis 27.10.06 04:45 Uhr)	36
3.14	Lidar-Beobachtung Ziegendorf: Vertikalprofil (von ca. 200 - 8 250m über Grund) des Wasserdampfmischungsverhältnisses [g/kg] vom 26.10. 18:15 - 27.10.05 4:45 Uhr	37
3.15	Wie Abb. 3.7 an der Lidar-Station Ziegendorf (26.10.05 18:00 - 27.10.05 5:00 Uhr)	37
3.16	Wie Abb. 3.8 an der Lidar-Station Ziegendorf (vom 26.10.05 18:45 - 27.10.05 4:45 Uhr)	38
3.17	Wie Abb. 3.9 an der Lidar-Station Ziegendorf (vom 26.10.05 18:45 - 27.10.05 4:45 Uhr)	39
4.1	Horizontalschnitte durch a) das Anfangsprofil und durch b) die analytische Lösung nach 36 Stunden. Das horizontale Geschwindigkeitsvektorfeld wurde zur Darstellung ausgedünnt.	48
4.2	Interpolierte räumliche Verteilung der mittleren täglichen <i>NO</i> -Emission in <i>kg/km²/h</i> im Domain D4 mit der Lage der LfU-Messstationen.	49
4.3	Referenzsimulation mit MPDATA: a) Volumenansicht des quaderförmigen Anfangsprofils mit dem Wert 3,0 zusammen mit dem Vertikalschnitt des Geschwindigkeitsfeldes; b) transportiertes Profil nach 36 Stunden	54
4.4	MCCM-Advektionstest: a) analytische Lösung; Horizontaler Schnitt der Differenzen zwischen analytischer und numerischer Lösung: a) MPDATA, b) BOTTM und c) BOTTP4	55
4.5	Linke Spalte: Vertikalschnitt durch die Mitte des numerisch transportierten Profils; Rechte Spalte: Vertikalschnitt des Profils der Differenzen zwischen analytischer und numerischer Lösung; Dargestellt sind die Gitterzellen von 45 - 65 in x-Richtung und von 1-25 in vertikaler Richtung (MCCM-Orientierung von oben nach unten).	56
4.6	Momentaufnahme (30.07.03, 4:30 Uhr) für die Region Augsburg mit a) der bodennahen <i>CO</i> -Verteilung mit einer deutlichen <i>CO</i> -Abluftfahne und dem bodennahen Windfeld; b) <i>CO</i> -Abluffahne der BOTTM-Simulation und c) der BOTTP-Simulation; d) Differenz MCCM-MPDATA minus MCCM-BOTTM; e) Differenz MCCM-MPDATA minus MCCM-BOTTP	59

4.7	a) Oszillationen bei einem numerischen Advektionstest mit dem BOTTP-Verfahren; b) Momentaufnahme (30. Juli 2003, 4:30 Uhr) für die Region Sulzbach-Rosenberg im Domain D4 der bodennahen CO -Verteilung einer Abluffahne aus industriell emittiertem CO (Stahlverhüttung) und dem bodennahen Windfeld; Numerische Instabilitäten durch Oszillationen an starken Gradienten . . .	60
4.8	Domain D3: Zeitreihen der O_3 -Konzentrationen [ppb] an den Messstationen .	62
4.9	Domain D4: Zeitreihen der O_3 -Konzentrationen [ppb] an den Messstationen .	63
4.10	Domain D3: Quantilen-Scatterplots für bodennahes Ozon [ppb] an den Messstationen	65
4.11	Domain D3: Zeitreihen für die Konzentrationen von O_3 , NO , NO_2 , NO_x und für das O_3/NO_x -Verhältnis an der Messstation Augsburg-LfU	66
4.12	Domain D3: Zeitreihen für die Konzentrationen von O_3 , NO , NO_2 , NO_x und für das O_3/NO_x -Verhältnis an der Messstation München-Johanneskirchen . .	66
4.13	Domain D3: Verteilung der NO -, NO_2 -, O_3 - und CO -Konzentrationen als Mittelung über die jeweilige Modellschicht und die Simulationszeit, alle Konzentrationen in [ppb]	67
4.14	Wie Abb. 4.13 nur für Domain D4	69
4.15	Domain D4: Zeitreihen für O_3 , NO , NO_2 , und NO_x -Konzentrationen sowie für das O_3/NO_x -Verhältnis an den Messstationen Augsburg-LfU und München-Johanneskirchen	70
4.16	Domain D4: Quantilen-Scatterplots der bodennahen Ozonkonzentrationen [ppb] an den Messstationen	71
5.1	Zeitreihen (über 120 Stunden, Start 12 Uhr mittags) für ausgewählte Spurenstoffe für den Testfall URBAN für den Gasphasenmechanismus RADM: Vergleich zwischen dem MCCM-QSSA und dem impliziten Integrationsverfahren ROS4 nach Hairer und Wanner (2000).	90
5.2	Vergleich der Gasphasenmechanismen RADM, RACM und RACM-MIM für den Testfall URBAN (über 120 Stunden, Start 12 Uhr mittags). Alle Mechanismen wurden einheitlich mit dem ROS4-Löser (Hairer und Wanner, 2000) integriert.	92
5.3	Vergleich von simulierten Ozon-Zeitreihen mit den Messungen an der Station Erlangen für a) Domain D3 mit 6 km und b) D4 mit 2 km Gitterzellengröße . . .	95
5.4	Vergleich der simulierten Ozon-Tagesmaximalwerte mit den gemessenen täglichen Ozon-Maximalwerten an den entsprechenden Stationen	96
5.5	Vergleich der simulierten täglichen Ozon-8-Stundenmittelwerte mit den gemessenen täglichen Ozon-8-Stundenmittel an den entsprechenden Stationen . . .	97
5.6	Quantile-Quantile-Plots zum Vergleich der simulierten Ozon-Verteilungen mit den Verteilungen der Ozon-Messungen an den 8 Messstationen	99
5.7	Flächendarstellung der Ozon-Isoplethe aus Arnold u. a. (2003).	100
5.8	Histogramme der Häufigkeitsverteilung der vier Wertebereiche <15 , $15-25$, $25-46$ und >46 für die simulierten und gemessenen O_3/NO_x -Verhältnisse and den 3 Stationen nach Arnold u. a. (2003)	101

5.9	Q-Q-Plots für die simulierten und gemessenen O_3/NO_x -Verhältnisse an den 3 Stationen nach Arnold u. a. (2003)	101
5.10	O_3/NO_x -Verhältnis (Mittelwerte über 62 Tage, jeweils 10:00-18:00 Uhr Ortszeit); a) RADM-Simulation, b) Differenzen zwischen der RADM und der RACM Simulation und c) Differenzen zwischen der RADM und der RACM-MIM Simulation	103

Tabellenverzeichnis

3.1	Domain-Konfiguration für die MM5-Simulationen mit der	20
3.2	Lage der DWD Niederschlagsmessstationen zur Modellevaluierung	20
3.3	Spezifikationen der Lidar-Messsysteme und -Positionen, Datenquelle: Dr. Dirk Engelbart, DWD Observatorium Lindenberg	21
3.4	Bewertung des eindimensionalen Advektionstest: MDR, AAE, Maximum und Minimum für das Leapfrog, Leapfrog mit Asselin-Zeitfilter, Upstream und das kombinierte Leapfrog-Upstream-Verfahren	24
3.5	Niederschlagssummen [mm] für Oktober 2005: DWD-Beobachtungen und Ergebnisse der MM5-Simulationen (original MM5 V3.6 und modifiziertes MM5 V3.6) für Domain D2	26
3.6	Niederschlagssummen (wie Tab. 3.5) zwischen dem 1. und 4. Oktober 2005	29
4.1	Simulationsparameter zum Modellvergleich	49
4.2	Statistische Maßzahlen zur Bestimmung der Güte eines regionalen Modells durch Vergleich von Simulation und Beobachtung	51
4.3	Dreidimensionaler Advektionstest in MCCM: MDR und AAE für die Simulationen mit MPDATA, BOTTP und BOTTM mit Anfangsprofil von 3,0 und Hintergrundwert von 1,0	57
4.4	Dreidimensionaler Advektionstest mit Anfangsprofil von 2,0 und Hintergrundwert von 0,01: MDR und AAE für MPDATA, BOTTP und BOTTM	57
4.5	Statistik D3: O_3 -Konzentrationen vom 29.07. - 07.08.03; r: Korrelationskoeffizient, MD: Mittelwert, SD: Standardabweichung, Q: Quotilen;	64
4.6	Statistik D4: O_3 -Konzentrationen vom 29.07. - 07.08.03;	73
4.7	Statistik D4: O_3 -Maximalkonzentrationen vom 29.07. - 07.08.03;	74
4.8	Statistik D4: 8-Stundenmittelwerte der O_3 -Konzentrationen vom 29.07. - 07.08.03;	75
5.1	Meteorologische Parameter für das Szenario "Urban" aus Poppe u. a. (2001)	88
5.2	Anfangsbedingungen für das Szenario Urban. Anfangskonzentrationen [ppm] wurden den RADM-Klassen zugeteilt.	88
5.3	Nach RADM-Klassen (Chang u. a., 1989; Stockwell u. a., 1990) aufsummierte Emissionen für das Szenario Urban. Gesamtemission siehe Tabelle 5.4.	88
5.4	Gesamtemissionen für das Szenario Urban	89
5.5	Rechenzeit in Sekunden für den Testfall URBAN für die Mechanismen RADM, RACM und RACM-MIM für die entsprechenden numerischen Integrationsverfahren. Die Rechenzeit wurde als Mittelwert aus zehn Programmläufen ermittelt.	89

5.6	Station Augsburg LFU Domain D4: Statistik für die Lufttemperatur (boden- nahe Modellschicht) vom 01.07. - 31.08.03;	104
5.6	Mittelwerte über alle 8 Messstationen der statistischen Größen für die O_3 - Konzentrationen; vom 01.07.-31.08.03 (30 Minuten Auflösung); r: Korrelati- onskoeffizient, MD: Mittelwert, SD: Standardabweichung, Q : Quotilen;	106
5.7	Statistik D3: Vergleich von Simulationen und Messdaten der O_3 -Konzentrationen vom 01.07.-31.08.03 in 30 Minuten Auflösung	108
5.8	Statistik D4: Vergleich von Simulationen und Messdaten der O_3 -Konzentrationen vom 01.07.-31.08.03	109
5.9	Statistik D4: Grundlage Zeitreihen der Tagesmaxima der O_3 -Konzentrationen vom 01.07.-31.08.03	110
5.10	Statistik D4: Grundlage Zeitreihen der täglichen 8-Stundenmittelwerte (10 - 18 Uhr Ortszeit) der der O_3 -Konzentrationen vom 01.07. - 31.08.03	111
5.11	Statistik D4: O_3/NO_x -Verhältnis vom 01.07.-31.08.03; alle Größen in ppb. . .	112
5.12	Statistik D4: NO_x , PAN und $ONIT$ vom 01.07.-31.08.03; alle Größen in ppb.	113

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich und meine Doktorarbeit am Institut für Meteorologie und Klimaforschung begleitet haben:

Herrn Prof. Dr. Wolfgang Seiler, Leiter des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung in Garmisch-Partenkirchen, danke ich für die Bereitstellung eines Arbeitsplatzes, die Unterstützung während der Doktorarbeit und die Betreuung der Arbeit. Ich bedanke mich ebenfalls für die Übernahme des Erstgutachtens.

Prof. Dr. Ronald W. Hoppe danke ich für die wissenschaftliche Betreuung der Arbeit an der Universität Augsburg und die Übernahme des Zweitgutachtens.

Herrn Dr. Dirk Engelbart vom DWD Observatorium Lindenberg danke ich für die Bereitstellung der 3 Lidar-Datensätze der LAUNCH-Campaign zur Modellvalidierung.

Weiterhin möchte ich mich bei allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Institut für Meteorologie und Klimaforschung in Garmisch bedanken, die in zahlreichen Diskussionen zum Gelingen dieser Arbeit mit beigetragen haben.

Einen großen Dank gilt meiner lieben Frau Aline und meinem Sohn Emilian, die mich während meiner Arbeit tatkräftig unterstützt und die Entbehrungen mit Geduld ertragen haben.

Lebenslauf

Persönliche Daten:

Name Edwin Haas
Geboren 30.07.1971
Geburtsort Pfullendorf / Baden
Familienstand verheiratet, 1 Kind

Hochschulausbildung:

1992 - 1995 Fachhochschule für Technik Stuttgart, Studiengang Technische
Mathematik (FH) Abschluß: Diplom Mathematiker (FH)
1995 - 2000 Universität Kaiserslautern, Studiengang Technomathematik
Abschluß: Diplom Technomathematiker bei Neunzert und Struckmeier,
Nebenfächer Theoretische Physik und Informatik

Auslandsaufenthalte:

1994 Praxissemester im Ausland bei Industrial Research Ltd., Wellington,
Neuseeland (10 Monate): Optimierung und Mehrkörpersimulation für
ein Getriebeantrieb
Stipendium der Carl-Duisberg Gesellschaft, Bonn
1996 - 1997 Technische Universität & Sintef Trondheim, Norwegen (2 Seme-
ster): „Flow in Porous Media“, ODE- & PDE-Modellierung, MPI-
Parallelisierungen
Stipendium des European Consortium for Mathematics in Industry

Praktische Tätigkeiten:

1988 - 1990 Berufsausbildung zum Datenverarbeitung Kaufmann
1997 Forschungsprojekt bei TecMath AG, Kaiserslautern
Modellierung von Schweißnähten in großen FEM-Schalenmodellen für
die Betriebsfestigkeitsanalyse von Fahrzeugkarosserien mit Ansys

- 1998 - 1999 Assistent am Joseph-v.-Egle Institut für Bauphysik der Fachhochschule für Technik
Forschungsprojekt: Mathematische Modellierung und numerische Simulation von natürlicher Konvektion in Gebäuden
Betreuung von Diplomarbeiten aus dem Bereich Mathematik, Bauphysik und Bauakustik, FEM-Auftragsberechnungen mit Ansys
- 2001 - 2007 Doktorand und wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Garmisch-Partenkirchen
Forschungsarbeiten im Bereich numerischer Strömungssimulation reaktiver Mehrphasenströmungen und Modellkopplung