

Dissertation zur Erlangung des Grades  
eines Doktors der Naturwissenschaften  
an der Fakultät für Geowissenschaften  
der Ruhr-Universität Bochum

## Fuzzy-Logic Filter für das Global Atmosphere Watch Programm

Entwicklung von datenbankgestützten Filterfunktionen  
zur Kennzeichnung der Luftmassen-Einflüsse  
in den Messreihen der Globalstation Zugspitze

eingereicht von

Ilka Kürbis  
Garmisch-Partenkirchen/ Bochum, 2002

Ilka Kürbis  
Riesserkopfstr. 38  
82467 Garmisch-Partenkirchen  
email: kuerbis@icara.de

Diese Arbeit ist 2002 mit dem Titel „Fuzzy-Logic Filter für das Global Atmosphere Watch Projekt - Entwicklung von datenbankgestützten Filterfunktionen zur Kennzeichnung der Luftmassen-Einflüsse in den Messreihen der Globalstation Zugspitze“ als Dissertation von der Fakultät für Geowissenschaften der Ruhr-Universität Bochum angenommen worden.

1. Gutachter: Prof. Dr. H. Fleer
2. Gutachter: PD Dr. A. Pflitsch
3. Gutachter: Prof. Dr. D. Richter

Tag der Einreichung: 23.10.2002  
Tag der Disputation: 20.01.2003

Informationen zu Bezug und Aktualisierung für das in der Arbeit entwickelte Software-Tool „Fuzzy-Logic Filter“ stehen unter der URL <http://www.icara.de/geo/gawfilt.htm>

## Inhaltsangabe

Das Messprogramm Global Atmosphere Watch der World Meteorological Organisation hat die kontinuierliche Erfassung des luftchemischen Hintergrundes für eine Früherkennung atmosphärischer und klimatischer Veränderungen zum Ziel. Für den europäischen Raum erfolgt diese Langzeitbeobachtung an der Globalstation Zugspitze, die trotz der exponierten Hochgebirgslage zeitweise Störungen durch lokale Effekte erfährt. In der Arbeit werden Filterregeln für die Messreihen der Zugspitze entwickelt, die eine Grundvoraussetzung für die repräsentative Beschreibung des atmosphärischen Hintergrundes sind. Die formulierten Filter basieren auf einer Messreihen-Analyse und berücksichtigen die bedeutenden Luftmassen-Einflüsse infolge Vertikaltransporten aus der Grundschicht und infolge stratosphärischer Intrusionen. Als Filterparameter werden luftchemische und meteorologische Messdaten, 3D-Rückwärtstrajektorien und Emissions-Inventare benutzt. Die methodische Umsetzung der Filterfunktionen erfolgt mit der Modellvorstellung der Fuzzy-Logic. Ergänzend wird das zugehörige datenbankgestützte Software-Tool Fuzzy-Logic Filter beschrieben.



## Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand zwischen 1999 und 2002 im Rahmen eines Forschungsprojektes mit Aufenthalt an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus auf der Zugspitze. Das Projekt wurde mit Mitteln des BMBF-Stipendienprogramms zur Förderung von Forschung und Entwicklung an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (UFS) gefördert, wofür ich mich bedanken möchte.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Fleer für die Annahme und Betreuung der Arbeit. An dem Entstehen der Arbeit haben viele Köpfe mitgeholfen. An dieser Stelle möchte ich mich bei allen Kolleginnen und Kollegen am Geographischen Institut der Ruhr-Universität Bochum und der beteiligten Institutionen für das entgegengebrachte Interesse an meinem Projekt, die zahlreichen Diskussionen wie auch für die zur Verfügung gestellten Daten bedanken.

Mein Dank gilt der Stationsleitung Herrn Dr. L. Ries vom Umweltbundesamt für die Anregung zu dem Thema, Herrn Dr. H.-E. Scheel vom Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Meteorologie und Klimaforschung - Atmosphärische Umweltforschung in Garmisch-Partenkirchen für seine stete Gesprächsbereitschaft insbesondere zu Fragen der Messtechnik sowie Herrn Dr. B. Wickert für die freundlicherweise zur Verfügung gestellten Daten zum Emissions-Inventar vom Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart.

Die zur Verfügung gestellten Trajektorien- und die Möglichkeit zur Diskussion meines Projektes im Rahmen der AG Filter des GAW-DACH Verbundes der Stationen Zugspitze/Hohenpeißenberg, Sonnblick und Jungfraujoch haben das Entstehen dieser Arbeit maßgeblich beeinflusst. Hiefür möchte ich mich bei Herrn Dr. W. Fricke vom Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg des Deutschen Wetterdienstes herzlich bedanken.

Der Aufenthalt im Schneefernerhaus mit Lage im peripheren Raum war zum Teil mit gewissen technischen Herausforderungen verbunden. Stellvertretend für die AG Klimaforschung des Geographischen Institutes möchte ich Herrn Dr. M. Bruse für die hierbei entgegengebrachte Unterstützung aus Bochum, die Diskussionen und das Korrekturlesen danken.



---

## Inhaltsverzeichnis

1	Motivation und Ansatz	1
2	Spurengase und Einflüsse auf ihre Variabilität	5
2.1	Atmosphärische Spurengase	6
2.2	Hydroxyl-Radikale, Verweil- und Durchmischungszeit	8
2.3	Standortspezifische Luftmassen-Einflüsse	10
2.3.1	Lokal induzierte Vertikaltransporte	11
2.3.2	Synoptisch bedingte Transportprozesse	14
2.3.3	Europäische Emissionssituation	18
2.3.4	Intrusionen	21
3	Analyse der Stations-Messreihen	25
3.1	Kohlenmonoxid	26
3.2	Methan	29
3.3	Kohlendioxid	32
3.4	Stickoxide	35
3.5	Ozon	42
3.6	Radionuklide	45
3.6.1	Natürliche Radioaktivität	47
3.6.2	Beryllium-7	51
4	Modellvorstellung und Beschreibung der Filter	55
4.1	Die Idee der Fuzzy-Logic	56
4.2	Filter-Regelwerk	59
4.2.1	Filter 1 - Einfluss infolge Vertikaltransporten	60
4.2.2	Filter 2 - Einfluss infolge Transportprozessen	61
4.2.3	Filter 3 - Einfluss infolge Intrusionen	61
4.3	Fuzzifizierung	62
4.3.1	Filterparameter Messgröße	62
4.3.2	Filterparameter Trajektorienverlauf	72
4.3.2.1	Kriterium Konzentrationsänderung	73
4.3.2.2	Kriterium Aufenthaltshöhe	82
4.3.2.3	Verknüpfung der Kriterien	88
4.4	Fuzzy-Inferenz	92
4.5	Defuzzifizierung	102
4.6	Übersicht	105

---

5	Datenbank-Tool mit Implementierung der Filterfunktionen	107
5.1	Datenbankkonzept	107
5.1.1	Database	109
5.1.2	Namenskonventionen	110
5.2	Menüstruktur des Software-Tools	111
5.2.1	Fuzzifizierung	111
5.2.2	Fuzzy-Inferenz	114
5.2.3	Defuzzifizierung	115
6	Filteranwendung und Auswertung	117
6.1	Kennzeichnung der Datensätze	117
6.1.1	Filter 1 - Einfluss infolge Vertikaltransporten	118
6.1.2	Filter 2 - Einfluss infolge Transportprozessen	124
6.1.3	Filter 3 - Einfluss infolge Intrusionen	131
6.1.4	Data-Flag für das Regelwerk	139
6.2	Bedeutung für die Repräsentanz der Messreihen	142
6.2.1	Kohlenmonoxid	143
6.2.2	Methan	147
6.2.3	Kohlendioxid	151
6.2.4	Ozon	155
7	Zusammenfassung und Schlussbemerkung	159
	Literaturverzeichnis	163

---

	Anhang	171
A.1	Erläuterung zu den Darstellungen im Anhang	173
A.1.1	Windrosen .....	173
A.1.2	Normierte mittlere Tagesgänge .....	173
A.1.3	Korrelationskoeffizienten .....	174
A.2	Kohlenmonoxid	175
A.3	Methan	181
A.4	Kohlendioxid	187
A.5	Stickoxide	193
A.5.1	NO .....	195
A.5.2	NO <sub>x</sub> .....	200
A.5.3	NO <sub>y</sub> .....	205
A.6	Ozon	211
A.7	Natürliche Radioaktivität	217
A.8	Beryllium-7	223
A.9	Meteorologische Größen	225
A.9.1	Temperatur .....	225
A.9.2	Relative Feuchte .....	227
	Curriculum Vitae	229
	Erklärung	231



---

## Tabellen

Tab. 2-1	Zusammensetzung der wasserdampf- und aerosolfreien Atmosphäre . . .	6
Tab. 2-2	Spurengasanalytik an der Station Zugspitze . . . . .	7
Tab. 2-3	Kenndaten der Emissions-Inventare COARSE2 und EMEP50 . . . . .	20
Tab. 3-1	Quellen und Senken für Kohlenmonoxid . . . . .	27
Tab. 3-2	Quellen und Senken für Methan . . . . .	30
Tab. 3-3	Globales Kohlendioxid-Budget . . . . .	33
Tab. 3-4	Globale Emissionen von Stickoxiden $\text{NO}_x$ in der Troposphäre . . . . .	36
Tab. 3-5	Konzentrationen von Stickoxiden $\text{NO}_x$ in Bodennähe . . . . .	37
Tab. 3-6	Einteilung der Natürlichen Radionuklide nach ihrem Ursprung . . . . .	46
Tab. 4-1	Grenzwerte für das Filterparameter-Kriterium Aufenthaltshöhe . . . . .	84
Tab. 4-2	Fuzzy-logische Verknüpfungs-Operatoren . . . . .	96
Tab. 6-1	Filter 1 - Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output . . . . .	119
Tab. 6-2	Filter 2 - Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output . . . . .	127
Tab. 6-3	Filter 3 - Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output . . . . .	133
Tab. 6-4	Regelwerk - Anzahl der Datensätze mit Data-Flag . . . . .	141
Tab. 6-5	Kohlenmonoxid Monatsmittel und Streuung mit Filterung . . . . .	143
Tab. 6-6	Methan Monatsmittel und Streuung mit Filterung . . . . .	148
Tab. 6-7	Kohlendioxid Monatsmittel und Streuung mit Filterung . . . . .	152
Tab. 6-8	Ozon Monatsmittel und Streuung mit Filterung . . . . .	156

## Anhang

Tab. A.2-1	Kohlenmonoxid Statistik	176
Tab. A.2-2	Kohlenmonoxid Perzentile	176
Tab. A.2-3	Kohlenmonoxid Korrelationen	178
Tab. A.3-1	Methan Statistik	182
Tab. A.3-2	Methan Perzentile	182
Tab. A.3-3	Methan Korrelationen	184
Tab. A.4-1	Kohlendioxid Statistik	188
Tab. A.4-2	Kohlendioxid Perzentile	188
Tab. A.4-3	Kohlendioxid Korrelationen	190
Tab. A.5-1	NO Statistik	195
Tab. A.5-2	NO Perzentile	196
Tab. A.5-3	NO Korrelationen	198
Tab. A.5-4	NO <sub>x</sub> Statistik	200
Tab. A.5-5	NO <sub>x</sub> Perzentile	201
Tab. A.5-6	NO <sub>x</sub> Korrelationen	203
Tab. A.5-7	NO <sub>y</sub> Statistik	205
Tab. A.5-8	NO <sub>y</sub> Perzentile	206
Tab. A.5-9	NO <sub>y</sub> Korrelationen	208
Tab. A.6-1	Ozon Statistik	212
Tab. A.6-2	Ozon Perzentile	212
Tab. A.6-3	Ozon Korrelationen	214
Tab. A.7-1	Nat.Radioaktivität Statistik	218
Tab. A.7-2	Nat.Radioaktivität Perzentile	218
Tab. A.7-3	Nat.Radioaktivität Korrelationen	220
Tab. A.8-1	Beryllium-7 Statistik	224
Tab. A.8-2	Beryllium-7 Perzentile	224
Tab. A.9-1	Temperatur Statistik	226
Tab. A.9-2	Temperatur Perzentile	226
Tab. A.9-3	Relative Feuchte Statistik	228
Tab. A.9-4	Relative Feuchte Perzentile	228

## Abbildungen

Abb. 2-1	Registrierte Windverhältnisse an der Station Zugspitze . . . . .	12
Abb. 2-2	Windverhältnisse an der Talstation Garmisch . . . . .	13
Abb. 2-3	Luftmassen Einzugsgebiet mit zeitlicher Differenzierung . . . . .	16
Abb. 2-4	Luftmassen-Einzugsgebiet mit vertikaler Differenzierung . . . . .	17
Abb. 2-5	Emissions-Inventare EMEP50- und COARSE2-Grid . . . . .	19
Abb. 2-6	Relative Feuchte Boxplots . . . . .	23
Abb. 3-1	Kohlenmonoxid Zeitreihe der Halbstundenwerte . . . . .	28
Abb. 3-2	Kohlenmonoxid Boxplots . . . . .	28
Abb. 3-3	Methan Zeitreihe der Halbstundenwerte . . . . .	31
Abb. 3-4	Methan Boxplots . . . . .	31
Abb. 3-5	Methan Korrelationskoeffizienten mit CO . . . . .	32
Abb. 3-6	Kohlendioxid Zeitreihe der Halbstundenwerte . . . . .	34
Abb. 3-7	Kohlendioxid Boxplots . . . . .	34
Abb. 3-8	Kohlendioxid Korrelationskoeffizienten mit CO, CH <sub>4</sub> und NO <sub>y</sub> . . . . .	35
Abb. 3-9	Stickoxide Zeitreihe der Halbstundenwerte . . . . .	39
Abb. 3-10	Stickoxide Boxplots . . . . .	40
Abb. 3-11	NO <sub>y</sub> Korrelationskoeffizienten mit NO <sub>x</sub> , O <sub>3</sub> , CO und Nat.Radioakt. . . . .	41
Abb. 3-12	Ozon Zeitreihe der Halbstundenwerte . . . . .	44
Abb. 3-13	Ozon Boxplots . . . . .	44
Abb. 3-14	Nat.Radioaktivität Zeitreihe der Halbstundenwerte . . . . .	48
Abb. 3-15	Nat.Radioaktivität Boxplots . . . . .	49
Abb. 3-16	Nat.Radioaktivität Mittlere Tagesgänge, Sommermonate . . . . .	49
Abb. 3-17	Nat.Radioaktivität Spurengaswindrose . . . . .	50
Abb. 3-18	Nat.Radioaktivität Korrelationskoeffizienten mit CO und NO <sub>y</sub> . . . . .	50
Abb. 3-19	Beryllium-7 Zeitreihe der Tagesmittelwerte . . . . .	52
Abb. 3-20	Beryllium-7 Boxplots . . . . .	53
Abb. 4-1	Strukturschema eines Fuzzy-Logic-Prozesses . . . . .	57
Abb. 4-2	Grenzwerte für den Filterparameter Messgröße . . . . .	65
Abb. 4-3	Fuzzy-Sets für den Filterparameter Messgröße . . . . .	67
Abb. 4-4	Fuzzifizierung für den Filterparameter Messgröße . . . . .	71
Abb. 4-5	Fuzzy-Sets für das Kriterium Konzentrationsänderung . . . . .	79
Abb. 4-6	Fuzzifizierung für das Kriterium Konzentrationsänderung . . . . .	82
Abb. 4-7	Fuzzy-Sets für das Kriterium Aufenthaltshöhe . . . . .	85
Abb. 4-8	Fuzzifizierung für das Kriterium Aufenthaltshöhe . . . . .	88
Abb. 4-9	Fuzzy-logische Verknüpfungs-Operatoren . . . . .	97
Abb. 4-10	Übersicht für den abzubildenden Fuzzy-Logic-Prozess . . . . .	105
Abb. 5-1	Konzept der datenbankgestützten Realisierung . . . . .	108
Abb. 5-2	Menüstruktur zur Fuzzifizierung der Größe A Messgröße . . . . .	112
Abb. 5-3	Menüstruktur zur Fuzzifizierung der Größe B Trajektorienverlauf . . . . .	114
Abb. 5-4	Menüstruktur zur Fuzzy-Inferenz . . . . .	115
Abb. 5-5	Tabellenstruktur der Ergebnistabelle calc_DataFlag . . . . .	116
Abb. 5-6	Menüstruktur zur Defuzzifizierung . . . . .	116
Abb. 6-1	Filter 1 - Fuzzy-Inputs und -Output . . . . .	118
Abb. 6-2	Filter 1 - Anteil der Datensätze mit Fuzzy-Output . . . . .	120

---

Abb. 6-3	Filter 1 - Tagezeitliche Abhängigkeit eines Data-Flag . . . . .	122
Abb. 6-4	Filter 1 - Fuzzy-Inputs und -Output, Fallbeispiel Februar . . . . .	123
Abb. 6-5	Filter 1 - Fuzzy-Inputs und -Output, Fallbeispiel Oktober . . . . .	124
Abb. 6-6	Filter 2 - Fuzzy-Inputs und -Output . . . . .	125
Abb. 6-7	Filter 2 - Anteil der Datensätze mit Fuzzy-Output . . . . .	128
Abb. 6-8	Filter 2 - Fuzzy-Inputs und -Output, Fallbeispiel Oktober . . . . .	129
Abb. 6-9	Filter 2 - Trajektorienverlauf, Fallbeispiel Oktober . . . . .	130
Abb. 6-10	Filter 3 - Fuzzy-Inputs und -Output . . . . .	131
Abb. 6-11	Filter 3 - Anteil der Datensätze mit Fuzzy-Output . . . . .	135
Abb. 6-12	Filter 3 - Anzahl der Kalendertage mit Fuzzy-Output . . . . .	136
Abb. 6-13	Filter 3 - Fuzzy-Inputs und -Output, Fallbeispiel Oktober . . . . .	137
Abb. 6-14	Kohlenmonoxid Mittelwert-Abweichung für die Filterung . . . . .	145
Abb. 6-15	Kohlenmonoxid Zeitreihe mit Filterung . . . . .	146
Abb. 6-16	Methan Mittelwert-Abweichung für die Filterung . . . . .	149
Abb. 6-17	Methan Zeitreihe mit Filterung . . . . .	150
Abb. 6-18	Kohlendioxid Mittelwert-Abweichung für die Filterung . . . . .	153
Abb. 6-19	Kohlendioxid Zeitreihe mit Filterung . . . . .	154
Abb. 6-20	Ozon Mittelwert-Abweichung für die Filterung . . . . .	157
Abb. 6-21	Ozon Zeitreihe mit Filterung . . . . .	158

## Anhang

Abb. A.2-1 Kohlenmonoxid Zeitreihe der Halbstundenwerte	175
Abb. A.2-2 Kohlenmonoxid Boxplots	175
Abb. A.2-3 Kohlenmonoxid Spurengaswindrose	175
Abb. A.2-4 Kohlenmonoxid Mittlere Tagesgänge	177
Abb. A.2-5 Kohlenmonoxid Grafik der Korrelationskoeffizienten	179
Abb. A.3-1 Methan Zeitreihe der Halbstundenwerte	181
Abb. A.3-2 Methan Boxplots	181
Abb. A.3-3 Methan Spurengaswindrose	181
Abb. A.3-4 Methan Mittlere Tagesgänge	183
Abb. A.3-5 Methan Grafik der Korrelationskoeffizienten	185
Abb. A.4-1 Kohlendioxid Zeitreihe der Halbstundenwerte	187
Abb. A.4-2 Kohlendioxid Boxplots	187
Abb. A.4-3 Kohlendioxid Spurengaswindrose	187
Abb. A.4-4 Kohlendioxid Mittlere Tagesgänge	189
Abb. A.4-5 Kohlendioxid Grafik der Korrelationskoeffizienten	191
Abb. A.5-1 Stickoxide Zeitreihe der Halbstundenwerte	193
Abb. A.5-2 Stickoxide Boxplots	194
Abb. A.5-3 NO Spurengaswindrose	195
Abb. A.5-4 NO Mittlere Tagesgänge	197
Abb. A.5-5 NO Grafik der Korrelationskoeffizienten	199
Abb. A.5-6 NO <sub>x</sub> Spurengaswindrose	200
Abb. A.5-7 NO <sub>x</sub> Mittlere Tagesgänge	202
Abb. A.5-8 NO <sub>x</sub> Grafik der Korrelationskoeffizienten	204
Abb. A.5-9 NO <sub>y</sub> Spurengaswindrose	205
Abb. A.5-10 NO <sub>y</sub> Mittlere Tagesgänge	207
Abb. A.5-11 NO <sub>y</sub> Grafik der Korrelationskoeffizienten	209
Abb. A.6-1 Ozon Zeitreihe der Halbstundenwerte	211
Abb. A.6-2 Ozon Boxplots	211
Abb. A.6-3 Ozon Spurengaswindrose	211
Abb. A.6-4 Ozon Mittlere Tagesgänge	213
Abb. A.6-5 Ozon Grafik der Korrelationskoeffizienten	215
Abb. A.7-1 Nat.Radioaktivität Zeitreihe der Halbstundenwerte	217
Abb. A.7-2 Nat.Radioaktivität Boxplots	217
Abb. A.7-3 Nat.Radioaktivität Spurengaswindrose	217
Abb. A.7-4 Nat.Radioaktivität Mittlere Tagesgänge	219
Abb. A.7-5 Nat.Radioaktivität Grafik der Korrelationskoeffizienten	221
Abb. A.8-1 Beryllium-7 Zeitreihe der Tagesmittelwerte	223
Abb. A.8-2 Beryllium-7 Boxplots	223
Abb. A.9-1 Temperatur Zeitreihe der Halbstundenwerte	225
Abb. A.9-2 Temperatur Boxplots	225
Abb. A.9-3 Relative Feuchte Zeitreihe der Halbstundenwerte	227
Abb. A.9-4 Relative Feuchte Boxplots	227



## 1 Motivation und Ansatz

Der Aufbau meteorologischer Beobachtungsstationen auf Berggipfeln wurde erstmalig 1873 auf dem 1. Meteorologen-Kongress in Wien beschlossen, eine weitere Konkretisierung mit der Einrichtung eines Netzwerkes von Stationen im Gebirge erfolgte 1879 auf dem 2. Meteorologen-Kongress in Rom. Daraufhin wurden zu den bestehenden Stationen Mt. Washington (New England, USA), Pike's Peak (Colorado, USA) und Hohenpeißenberg (Bayern, D) weitere meteorologische Bergstationen eingerichtet, was auch zur Eröffnung der Hochstation auf der Zugspitze am 19. Juli 1900 führte. Die anfangs formulierte wissenschaftliche Forschungsaufgabe der Hochstation Zugspitze wurde 1964 als Wetterstation für synoptische Meldungen neu definiert [DWD, 2000-B].

Der Beginn von atmosphärenchemischen Untersuchungen an der Zugspitze erfolgte in den 80er Jahren mit der Entwicklung eines Lidargerätes zur Erfassung des vertikalen stratosphärischen Ozonprofils. Zur weiteren Unterstützung der Atmosphärenforschung und als Beitrag zum weltweiten Messnetz des „Global Atmosphere Watch“ Programms wurde 1998 das am Südhang der Zugspitze liegende Schneefernerhaus als Umweltforschungsstation eröffnet. Heute übernimmt der Standort Zugspitze die Aufgabe der Globalstation für den europäischen Raum.

Das „Global Atmosphere Watch“ (GAW) Programm wurde 1989 als luftchemisch-meteorologisches Messprogramm der „World Meteorological Organisation“ (WMO) begründet. Aufgabe von GAW ist die kontinuierliche Erfassung des luftchemischen Hintergrundes für eine Früherkennung atmosphärischer und klimatischer Veränderungen [WMO, 1993]. Die kontinuierliche Langzeitbeobachtung auf einem einheitlichen und hohen Qualitätsniveau erfolgt in einem weltweiten Messnetz mit etwa 300 Regionalstationen und derzeit 22 Globalstationen. Mit dem Ziel, die atmosphärische Hintergrundbelastung zu erfassen, besteht für Globalstationen die Forderung nach einer Messung, die für ein großes Umfeld weitestgehend repräsentativ ist und nicht durch lokale Effekte gestört wird.

Globalstationen befinden sich meist in isolierter Lage und weiterer Entfernung zu Emissionsquellen. In Abhängigkeit von meteorologischen Bedingungen unterliegen jedoch auch Globalstationen bestimmten stationsspezifischen Einflüssen von Luftmassen aus unterschiedlichen Gebieten und Höhen und sind daher nicht von vornherein im Sinne der GAW-Aufgabe für ein großes Gebiet repräsentativ. Die Messungen an der Globalstation Mauna Loa (3397 m ü.NN, Hawaii, USA) sind beispielsweise aufgrund der lokalen Zirkulationsmechanismen nur innerhalb eines bestimmten Zeitfensters repräsentativ [BODHAINE, 1983]. Dennoch eignen sich Hochgebirgsstationen, wie die der Zugspitze, für die Messung des atmosphärischen Hintergrundes, wenn ihre stationsspezifischen Einflüsse berücksichtigt werden. Für die Ausweisung repräsentativa-

tiver Messungen im Sinne der GAW-Aufgabe ist eine vorherige Filterung für die Kennzeichnung von Luftmassen-Einfluss in den Messreihen erforderlich. Hierbei weist der Standort der Zugspitze aufgrund seiner topographischen Lage im Alpenraum und der differenzierten europäischen Emissionsituation eine insgesamt komplexere Struktur auf als beispielsweise die Station Mauna Loa.

Der Alpenraum mit seinen orographisch bedingten vielfältigen Zirkulationsmechanismen ist Gegenstand zahlreicher Untersuchungen, für die insbesondere die großen Forschungsprojekte ALPEX, MAP und VOTALP mit ihren Fallstudien zu nennen sind. Das „ALPine EXperiment“ (ALPEX) zählt zu den ersten groß angelegten meteorologischen Feldexperimenten mit dem Ziel, die Gebirgsströmung der Alpen zu vermessen. Beispielsweise wurden hierbei die Bedingungen für die Bildung des kalten Fallwindes Bora bestimmt. Das „Mesoscale Alpine Programme“ (MAP) ist ein konzentriert angelegtes Messexperiment im ganzen Alpenraum und hat die Verbesserung des Verständnisses der atmosphärischen und hydrologischen Prozesse über orographisch stark gegliedertem Gelände zum Ziel [BOUGEAULT, 2001]. Hier ist zum Beispiel die Untersuchung von Südföhn im alpinen Rheintal von [BAUMANN ET AL., 2001] zu nennen. Der Schwerpunkt des Projektes „Vertical Ozone Transports in the ALPs“ (VOTALP I, VOTALP II) liegt in der Untersuchung der dynamischen und chemischen Prozesse bezüglich der Ozonkonzentrationen in den Alpen, zu dessen Zielen und Forschungsergebnissen [WOTAWA, KROMB-KOLB, 2000] eine Übersicht gibt. Der im Vergleich zum Flachland verstärkte ausgeprägte Trend der Ozonkonzentrationen an Bergstationen ist unter anderem mit grundlegenden Messungen an den ausgewählten Hochgebirgsstationen Jungfraujoch, Sonnblick, Zugspitze und Mt. Cimone untersucht worden. Hierzu zählen Fallstudien zu Episoden von Ozonkonzentrationen während Föhnereignissen [SEIBERT ET AL., 2000] und im Zusammenhang mit stratosphärischen Intrusionen [BONASONI ET AL., 2000].

Vor dem Hintergrund von GAW ist die Beobachtung und Ausweisung weiterer Spurengas-Messreihen hinsichtlich langjähriger Trends notwendig und zielt allgemein auf die Fragestellung der Repräsentanz von Messungen an Hochgebirgsstationen. Die Filterung luftchemischer Messreihen im Alpenraum zur Charakterisierung ihrer Repräsentanz ist eine gemeinsame Forschungsaktivität der DACH-AG (Deutschland, Österreich, Schweiz). Zu den beteiligten Stationen zählen das Jungfraujoch, der Sonnblick und die Zugspitze sowie der Hohenpeißenberg. Erste Ergebnisse sind für die Stationen Sonnblick und Jungfraujoch mit sogenannten prozessorientierten und luftchemischen Filtern sowie für die Station Hohenpeißenberg mit einem datenorientierten Filter in [DWD, 2000-A] dargestellt. Für die Zugspitze mit der bedeutenden Aufgabe einer Globalstation fehlt bislang ein stationsspezifischer Filter, der folgend erarbeitet werden soll.

Während rein luftchemische Filter allein aus den Messgrößen einen Luftmassen-Einfluss erkennen sollen, liegt der Schwerpunkt der bisherigen Arbeiten auf prozessorientierten Filtern, die auf dem Erkennen meteorologischer Prozesse anhand von meteorologischen Daten oder Trajektorien basieren [FORRER, 1999], [KAISER, 1999]. Datenorientierte Filter hingegen verwenden statistische Streuungsmaße der luftchemischen Messgrößen für die Kennzeichnung ihrer Repräsentanz [DWD, 2000-A, Seite 40 ff]. Diesen Filtern gemeinsam ist die zugrunde gelegte Methodik, nach der ein Filterparameter in das formulierte Set von Filterbedingungen nach harten Kriterien zugeordnet wird. Ob eine Filterbedingung von einem Filterparameter erfüllt wird oder nicht, erfolgt nach dem Ja/Nein-Prinzip. Diese binäre Klassifizierung der Filterkriterien ist methodisch betrachtet jedoch beschränkt. Zudem sind auch die harten

---

Kriterien inhaltlich zu hinterfragen, da die Festlegung eines Schwellenwertes für die in unterschiedlicher Dimension auftretenden meteorologischen Vorgänge kritisch ist und zum Teil nur unzureichend erfolgen kann. Darüber hinaus basiert mit der vordergründig prozessorientierten Formulierung die angestrebte Identifizierung eines Luftmassen-Einflusses auf den einzelnen Steuergrößen des meteorologischen Vorgangs, die aber über die verfügbaren punktuellen Größen an der Station nur schwer erfassbar sind. Die Kennzeichnung von Luftmassen-Einfluss ist aber keine prognostische Aufgabe, sondern wird mit Filterung der Messreihen a posteriori durchgeführt. Eine Rückführung auf die einzelnen den Prozess bestimmenden Faktoren, wie meteorologische Elemente oder Kenngrößen, würde vom methodischen Ansatz her einem Umweg entsprechen.

Wird hingegen ein Luftmassen-Einfluss selbst als der zu modellierende Prozess interpretiert, so kann diese Fragestellung mit der Methodik der Fuzzy-Logic abgebildet werden. Die Idee der Fuzzy-Logic als eine Erweiterung der Binärlogik basiert auf einer mehrwertigen Logik, die insbesondere für die Modellierung komplexer Prozesse eingesetzt wird. Fuzzy-Logic gibt dabei den methodischen Rahmen für die Aufstellung der linguistisch formulierten Filterregeln und ermöglicht eine unscharfe Informationsverarbeitung unter Anwendung einer eindeutigen mathematischen Beschreibung. Hierbei wird der zu beschreibende Prozess über wenige sogenannte Abstrakte Größen abgebildet, die als zusammengefasste Steuergrößen fungieren.

Die vorliegende Arbeit hat die Entwicklung von Filterfunktionen zur Kennzeichnung der Luftmassen-Einflüsse in den Messreihen zum Inhalt. Entsprechend den Anforderungen des „Global Atmosphere Watch“ Programms an die Globalstation Zugspitze zielt die Filterung auf eine Erhöhung der Repräsentanz der Messreihen. Der verwendete methodische Rahmen der Fuzzy-Logic ist dabei eine Modellvorstellung, die für die Filterung von Messreihen neu ist und einen Luftmassen-Einfluss als abzubildenden Prozess interpretiert. Darüber hinaus wird ein inhaltlicher Filteransatz vorgestellt, mit dem eine Verbindung zwischen sogenannten Trajektorien und der Europäischen Emissionssituation berücksichtigt wird. Rückwärtstrajektorien ermöglichen die Rückverfolgung der an die Station herantransportierten Luftmassen, so dass unter Einbezug eines Emissions-Inventars eine Bewertung von Luftmassen-Einfluss aus der Grundschicht um eine damit verbundene mögliche Konzentrationsaufnahme erweitert wird. Mit der Implementierung der entwickelten Filterfunktionen in eine Datenbank wird zusätzlich ein Software-Tool zur Verfügung gestellt, das eine Filteranwendung für den operationellen Einsatz ermöglicht.

Die Arbeit gliedert sich streng nach dem methodischen Ablaufschema eines Fuzzy-Logic-Prozesses. Grundlage im Sinne einer Wissensbasis für die Entwicklung von Filterfunktionen sind Kapitel 2 mit der Beschreibung der Einflussfaktoren auf die Variabilität atmosphärischer Spurengas-Konzentrationen und Kapitel 3 mit der Analyse der Messreihen an der Station, was eine notwendige Voraussetzung für die Aufstellung der Filterregeln sowie für die Verwendung bestimmter Spurengase als sogenannte Tracer ist. In Kapitel 4 erfolgt die Beschreibung der Filter mit der verwendeten Modellvorstellung der Fuzzy-Logic. Nach der linguistischen Formulierung der Filterregeln sind für den formulierten Prozess eines Luftmassen-Einflusses an der Station die drei methodischen Teilprozesse mit Fuzzifizierung, Fuzzy-Inferenz und Defuzzifizierung durchzuführen und mathematisch über Filterfunktionen zu beschreiben. Die Implementierung der Filterfunktionen als datenbankgestütztes Soft-

ware-Tool wird in Kapitel 5 vorgestellt. Die Beschreibung der entwickelten Menüstruktur dient hierbei als Anleitung für die Durchführung einer Filteranwendung mit dem entwickelten Software-Tool „Fuzzy-Logic Filter“. Anschließend wird die Auswertung einer Filteranwendung in Kapitel 6 am Beispiel eines Jahresdatensatzes mit den zu kennzeichnenden Datensätzen für Luftmassen-Einfluss sowie der Bedeutung für ausgewählte Spurengase diskutiert. Die Arbeit schließt mit der Zusammenfassung und Schlussbemerkung in Kapitel 7.

Im Anhang wird eine systematische Messreihen-Übersicht für die Station Zugspitze gegeben, die eine Auflistung und Abbildung statistischer Maße sowie Auswertungen enthält.

## 2 Spurengase und Einflüsse auf ihre Variabilität

Für den Strahlungs- und Energiehaushalt der Atmosphäre und damit auch für das Klima sind die Spurenstoffe mit einem Anteil von weniger als 0,1 Volumenprozent an der luftchemischen Zusammensetzung der Atmosphäre entscheidend. Die Ausbreitung und Verteilung von Spurenstoffen ist von der atmosphärischen Verweilzeit jedes Spurenstoffes abhängig. Eine hohe zeitliche und räumliche Variabilität der Konzentrationen tritt für Spurenstoffe mit niedrigen atmosphärischen Verweilzeiten auf und ist die direkte Folge der inhomogen verteilten Quellen mit deren zeitlich variierender Emission. Eine besondere Rolle in der Atmosphärenchemie übernimmt das Hydroxyl-Radikal, das für Spurengase mit niedrigen Oxidationsstufen ein wichtiges Oxidationsmittel ist und in der Reaktion eine notwendige Voraussetzung für einen Abbau durch atmosphärische Auswaschung mit dem Niederschlag darstellt. Neben diesen grundlegenden chemischen Mechanismen beeinflussen dynamische Prozesse die Verteilung der Spurengase. Die Lage des Mess-Standortes Zugspitze als hochalpine Station im europäischen Raum ist lokal betrachtet als quellfern zu bezeichnen. Mit einer Stationshöhe auf dem Niveau der unteren freien Troposphäre handelt es sich an der Station um bereits durchmischte Luftmassen. Die Variabilität der Spurengas-Konzentrationen wird im Vergleich zu bodennahen Luftschichten weniger stark von der Position der Emissionsquellen beeinflusst.

Nach einer einführenden Darstellung der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre und der am Mess-Standort verfügbaren Spurengasanalytik werden die entscheidenden Einflussgrößen hinsichtlich der raumzeitlichen Verteilung und Ausbreitung von Spurengasen beschrieben. Hierzu zählen das für die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre bedeutende Hydroxyl-Radikal, die atmosphärische Verweilzeit der Spurengase sowie deren Durchmischungszeit. Neben photochemischen Prozessen sind für die Spurengas-Konzentrationen am Mess-Standort insbesondere dynamische Prozesse mit Vertikaltransporten von Bedeutung, die einen Einfluss über herantransportierte Luftmassen beinhalten können. Anschließend folgt die Darstellung der Luftmassen-Einflüsse am Standort mit Beschreibung der Stationscharakteristik und der dynamisch bedingten Vertikaltransporte aus der Grundsicht sowie von Vertikalbewegungen infolge stratosphärischer Intrusionen. Die Darstellung beinhaltet die Erläuterung der Windverhältnisse, die aus der Orographie resultierenden lokalen Vertikaltransporte, die synoptisch bedingten Transportprozesse mit Beschreibung des Luftmassen-Einzugsgebietes über Rückwärtstrajektorien sowie die mit einem Einfluss aus der Grundsicht eng verbundene Emissionssituation im europäischen Raum.

## 2.1 Atmosphärische Spurengase

Die chemische Zusammensetzung der wasserdampffreien Atmosphäre besteht zu 99,9% aus Stickstoff und Sauerstoff sowie den chemisch nicht aktiven Edelgasen. Die Konzentrationen dieser Luftbestandteile sind aufgrund der hohen Lebensdauer von Millionen Jahren zeitlich unverändert. Eine Entmischung der räumlich homogenen Zusammensetzung tritt erst durch gaskinetische Effekte in einer Höhe ab 80 km auf. Bei den übrigen Bestandteilen handelt es sich um Spurenstoffe, die unterschiedlich starken zeitlichen und räumlichen Schwankungen unterworfen sind und eine vergleichsweise kurze atmosphärische Verweilzeit in der Größenordnung von Stunden bis Jahren besitzen (vgl. Tab. 2-1).

Neben Aerosolpartikeln und der variablen Konzentration von Wasserdampf mit 4 Volumenprozent der Luftzusammensetzung zählen zu den übrigen Spurengasen vor allem Kohlendioxid sowie Methan, Ozon, Stickoxide, Distickstoffoxid, Kohlenmonoxid und Ammoniak. Insgesamt haben diese übrigen Spurengase einen Anteil an der aerosol- und wasserdampffreien Atmosphäre von weniger als 0,1 Volumenprozent. Zusammen mit Aerosolpartikeln und Wasserdampf sind es jedoch gerade diese Spurengase, die aufgrund ihrer absorbierenden und streuenden Wirkung für den Strahlungs- und Energiehaushalt der Atmosphäre und damit auch für das Klima von entscheidender Bedeutung sind [ROEDEL, 2000, Seite 12 ff, 351 ff].

Tab. 2-1 Zusammensetzung der wasserdampf- und aerosolfreien Atmosphäre

Eine ausführliche Liste der variablen Bestandteile gibt [EMEIS, 2000, Seite 4].  
Die Einheit  $10^{-4}$  Volumen-% entspricht der Bezeichnung parts per million [ppmv].  
Alle Angaben nach [ROEDEL, 2000, Seite 13] und [SEINFELD, PANDIS, 1998].

	Bestandteile	Konzentration	Atmosphärische Verweilzeit
Permanente	Stickstoff (N <sub>2</sub> )	78,09 Volumen-%	zeitlich nahezu unverändert
	Sauerstoff (O <sub>2</sub> )	20,95 Volumen-%	
	Argon (Ar)	0,93 Volumen-%	
	Neon (Ne)	18,2 x 10 <sup>-4</sup> Volumen-%	
	Helium (He)	5,24 x 10 <sup>-4</sup> Volumen-%	
	Krypton (Kr)	1,14 x 10 <sup>-4</sup> Volumen-%	
	Xenon (Xe)	0,09 x 10 <sup>-4</sup> Volumen-%	
Variable	Kohlendioxid (CO <sub>2</sub> )	355 ppmv	50-120 Jahre
	Methan (CH <sub>4</sub> )	1,7 ppmv	10-16 Jahre
	Ozon (O <sub>3</sub> )	0,05 bis 5 ppmv	1-3 Monate bodennah: wenige Tage
	Stickoxide (NO, NO <sub>x</sub> , NO <sub>y</sub> )	0,01 bis 50 ppmv	Stunden, 1 Tag, bis 40 Tage
	Distickstoffoxid (N <sub>2</sub> O)	0,3 ppmv	100-200 Jahre
	Kohlenmonoxid (CO)	0,1 ppmv	30-90 Tage
	Ammoniak (NH <sub>3</sub> )	0,001 bis 0,020 ppmv	bis 10 Tage

Die methodische Erfassung zur Analyse von Spurengasen beinhaltet die Entnahme einer Luftprobe mit anschließendem analytischen Vorgang, der auf der Ausnutzung der spezifischen physikalischen oder chemischen Eigenschaften des jeweiligen nachzuweisenden Spurengases basiert. Bei den kontinuierlich arbeitenden Messgeräten wird der zeitliche Verlauf der Messgrößen mit den auftretenden Spitzenwerten erfasst und automatisch Halbstunden-Mittelwerte als kleinste Bezugseinheit gebildet. Die diskontinuierlich messenden Verfahren, wie für das Radionuklid Beryllium-7, ermitteln hingegen nur einen Mittelwert für den Zeitraum der Probenahme.

Das Messprogramm im Gipfellabor der Zugspitze umfasst für den verfügbaren Messzeitraum 1995-1997 die Spurengase Kohlenmonoxid, Methan, Kohlendioxid, Stickoxide, Ozon sowie die Radionuklide der Natürlichen Radioaktivität und Beryllium-7 (vgl. Tab. 2-2). Das Radionuklid Beryllium-7 wird als 24 Stundenmittel erfasst, die Konzentrationen der anderen Messgrößen sind als Halbstunden-Mittelwerte verfügbar. Daneben werden die meteorologischen Messgrößen Luftdruck, Windrichtung und -geschwindigkeit, Temperatur, Taupunkt, Relative Feuchte, Sonnenscheindauer, Sichtweite sowie Globale, Diffuse und Direkte Strahlung ermittelt.

Tab. 2-2 Spurengasanalytik an der Station Zugspitze

Verfügbare Messgrößen mit Stand von 1997, wobei das operationelle Messprogramm der Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus sukzessiv ausgebaut wird.

Messgröße	Messverfahren	Messgerät	Genauigkeit
CO	NDIR (Nicht Disperse Infrarot)-Absorptionsspektroskopie mit vorgeschalteter Gasfilterkorrelation (GFC)	TEI Model 48 S 'Gas Filter Correlation CO-Analyser'	$\pm 5$ ppbv
CO <sub>2</sub>	NDIR (Nicht Disperse Infrarot)-Absorptionsspektroskopie	Hartmann & Braun 'Uras 4'	$\pm 0,3$ ppmv
CH <sub>4</sub>	Gaschromatographie mit Flammenionisationsdetektor (GC/FID)	Carlo Erba, Divisioneapparechi Scientifici (Dani) GC	$\pm 5$ ppbv
NO, NO <sub>y</sub>	Chemolumineszenzverfahren	TEI Model 42 C 'NO-NO <sub>2</sub> -NO <sub>x</sub> Trace Level Analyser'	$\pm 0,4$ ppbv
NO, NO <sub>2</sub>	Chemolumineszenzverfahren	Eco Physics CLD 770 AL ppt 'Chemiluminescence NO Analyser'	$\pm 0,05$ ppbv
Ozon	UV-Absorption	TEI Model 49 C 'U.V. Photometric O3 Analyser'	$\pm 1$ ppbv
Natürliche Radioaktivität	Quasikontinuierliche Schrittfiltertechnik, Messung der Alpha-Betastrahlung	FHT 7000	$\pm 0,01$ Bq/m <sup>3</sup>
Beryllium-7	Gamma-Spektrometrie ohne Filterpräparation	Probensammler: Digital, Schweiz; Detektor: EG & G Ortec 'Reinst-Germanium-Detektor GWL 160240-S'	$\pm 0,08$ mBq/m <sup>3</sup>
TEI: Thermo Environmental Industries			

Bei den Messungen handelt es sich um standardisierte Messverfahren, die im Rahmen des „Global Atmosphere Watch“ einer Qualitätssicherung unterliegen. Eine Übersicht der Spurengasanalytik gibt Tab. 2-2 mit Angabe der Messverfahren, des eingesetzten Gerätes sowie der zugehörigen Messgenauigkeit, die zu der Auflösung des Gerätes auch die Grenzen der Kalibrierung beinhaltet. Eine grundlegende Beschreibung der aufgeführten Messverfahren ist beispielsweise in [BAUMBACH, 1992, Seite 160 ff] zu finden.

## 2.2 Hydroxyl-Radikale, Verweil- und Durchmischungszeit

Die Spurenstoffe natürlicher sowie anthropogener Quellen werden in das unterste atmosphärische Stockwerk der Troposphäre abgegeben, in der sich auch das Wettergeschehen abspielt. In diesem Bereich erfolgt für den Großteil der Substanzen die Verteilung und die luftchemischen Umwandlungen bzw. Abbaureaktionen. Die meisten in der Atmosphäre ablaufenden chemischen Reaktionen werden durch die Sonnenstrahlung in Gang gesetzt oder beschleunigt, wobei für die einzelnen Reaktionen unterschiedliche Wellenlängenbereiche wirksam sind.

Eine hohe Zahl von Spurengasen ist aufgrund ihrer niedrigen Oxidationsstufe instabil und wird in der Atmosphäre durch chemische Reaktionsprozesse, teilweise über eine Vielzahl von Zwischenprodukten, umgewandelt. Bei der Oxidation werden schlecht wasserlösliche Stoffe wie Methan oder Kohlenmonoxid in relativ gut wasserlösliche Produkte umgewandelt, was eine notwendige Voraussetzung für die Auswaschung durch den Niederschlag ist. Dieser sogenannte chemische Reinigungsmechanismus der Atmosphäre wird in der Troposphäre im wesentlichen durch das Hydroxyl-Radikal als Oxidationsmittel bestimmt, da es trotz eines niedrigen Mischungsverhältnisses von etwa 1 bis  $10 \times 10^{-14}$  mit einer Vielzahl von chemischen Verbindungen reagiert und zu deren Abbau beiträgt.

In diesem Zusammenhang ist das troposphärische Ozon mit seinem Anteil von ca. 10% an dem gesamten atmosphärischen Ozon relevant, da die Ozon-Photolyse durch solare Strahlung bei Wellenlängen kleiner 310 nm zur Produktion von angeregten Sauerstoffatomen und zum Hydroxyl-Radikal führt. Die zentrale Rolle des OH-Radikals besteht darin, dass diese Radikale durch Reaktion mit Spurengasen deren Lebensdauer und Konzentration kontrollieren und damit auch bestimmen, inwieweit sich die Spurengase durch Transporte in der Atmosphäre ausbreiten können.

Aufgrund der Reaktionsfreudigkeit des OH-Moleküls in der bodennahen Atmosphäre ist seine Verweilzeit mit etwa einer Sekunde extrem niedrig. Zu den wichtigsten Prozessen der Entfernung von OH-Radikalen gehören die Reaktionen mit Kohlenmonoxid und Methan. Daneben werden tages- und jahrszeitliche Schwankungen durch das für die Photolyse notwendige Strahlungsangebot bestimmt. Global betrachtet stellen die höheren Kohlenmonoxid-Konzentrationen in der Nordhemisphäre eine größere OH-Senke dar und erklären die im Vergleich zur Südhemisphäre insgesamt um 20% niedriger liegende Konzentration des Hydroxyl-Radikal. Eine detaillierte Darstellung der einzelnen Mechanismen und Reaktionsgleichungen geben [SEINFELD, PANDIS, 1998, Seite 250], [GRAEDEL, CRUTZEN, 1994] und [FABIAN, 1992, Seite 63].

Der Reinigungsmechanismus der Atmosphäre wird durch das Wettergeschehen in Verbindung mit dem Wasserkreislauf aus Verdunstung, Wolkenbildung und Niederschlag gebildet. Insbesondere Partikel und wasserlösliche Gase sind direkt bei den Prozessen der Wolkenbildung beteiligt und werden mit dem Niederschlag ausgewa-

schen und somit aus der Atmosphäre entfernt. Sie verbleiben daher nur eine kurze Zeit von einigen Tagen bis Wochen in der Atmosphäre. Allgemein wird die mittlere Lebensdauer eines atmosphärischen Spurenstoffes aus der Geschwindigkeit seiner Abbaumechanismen bestimmt. Die Lebensdauer oder atmosphärische Verweilzeit gibt die Zeit an, über die eine bestimmte Substanz in der Atmosphäre Bestand hat, bevor sie durch chemische Prozesse aus der Atmosphäre entfernt wird. Mathematisch ist nach [FABIAN, 1992, Seite 60] die Lebensdauer als die Zeit definiert, während der die Konzentration des betreffenden Konstituenten auf den  $e$ -ten Teil ( $e = 2,72$ ) der ursprünglichen Konzentration abnimmt, nachdem alle Quellen dieser Substanz abgeschaltet wurden.

Die chemischen und photochemischen Prozesse sind eng mit der Dynamik der Atmosphäre verbunden. Während der Vertikalaustausch aufgrund der Temperaturzunahme mit der Höhe in der Stratosphäre eingeschränkt ist, bewirken die turbulenten Winde in der Troposphäre bedeutende Austauschprozesse, die zu einer effektiven horizontalen und vertikalen Durchmischung führen. Die Durchmischungszeit ist ein Maß für die Intensität dieser Mischungsprozesse und gibt den Zeitraum an, bis eine Substanz in einer bestimmten Region gleichmäßig in der Atmosphäre verteilt ist. Der Zeitraum der homogenen Vermischung eines Spurenstoffes innerhalb einer Hemisphäre liegt bei ein bis zwei Monaten. Im Gegensatz zu dieser hemisphärischen Durchmischungszeit wird die globale Vermischung durch die innertropische Konvergenzzone mit ihren intensiven aufsteigenden Luftbewegungen behindert, die ähnlich einer Sperrschicht wirkt. Der Zeitraum für die innerhemisphärische Durchmischungszeit beträgt ein bis zwei Jahre.

Während die dynamischen Prozesse vorrangig zu einer gleichmäßigen Verteilung der atmosphärischen Bestandteile führen, sind die Vorgänge der Umwandlung oder Entfernung aus der Atmosphäre in Bezug auf Raum und Zeit höchst variabel. Substanzen mit einer hohen Lebensdauer wie beispielsweise Kohlendioxid zeigen eine nahezu homogene globale Verteilung, während Substanzen wie Kohlenmonoxid mit einer Lebensdauer von einigen Monaten in der Hemisphäre gut durchmischt sein können, aber Konzentrationsunterschiede zwischen den Hemisphären aufweisen. Das Auftreten kurzlebiger Komponenten, deren Lebensdauer weniger als eine Stunde beträgt, wird hauptsächlich durch lokale Aufbau- und Abbaumechanismen bestimmt. Eine Änderung dieser Produktions- und Abbauraten führt bei solchen Substanzen zu einer hohen räumlichen und zeitlichen Variation in der Konzentration.

Der Vergleich von atmosphärischer Verweilzeit der betreffenden Substanz mit der Durchmischungszeit ermöglicht die Beurteilung, ob für die Verteilung die Durchmischung oder z. B die photochemische Reaktion dominierend ist. Da die Inhomogenität der natürlichen und insbesondere der anthropogenen Quellen extrem hoch ist, ist die atmosphärische Verweilzeit für eine lokale, regionale oder globale Bedeutung eines Spurenstoffes entscheidend und daher bei der Betrachtung von Konzentrationen mit einzubeziehen. Eine umfassende Darstellung zur atmosphärischen Verweilzeit gibt [FABIAN, 1992, Seite 62 ff], die Thematik ihrer Schwankungsbreiten erläutert [SEINFELD, PANDIS, 1998. Seite 1098 ff].

## 2.3 Standortspezifische Luftmassen-Einflüsse

Die Zugspitze liegt im hochalpinen Wettersteingebirge am Rand der Nordalpen. Mit 2964 m ü.NN stellt der Zugspitz-Gipfel die höchste Erhebung auf dem Gratrücken des Wettersteins dar. Von diesem Standort fallen Steilwände nach Norden und Westen sowie im Osten zum Höllentalferner ab, im Süden liegt die ca. 500 m tiefer liegende Plateaufläche mit dem Schneeferner-Gletscher. Der Gipfelbereich der Zugspitze ist mit der Meteorologischen Hochstation und der späteren Erreichbarkeit über Seilbahn und Zahnradbahn ausgebaut und touristisch erschlossen worden. Die Gipfel-Station ist in Messcontainer-Bauweise angelegt und befindet sich auf der Gipfelplattform etwas unterhalb des Ostgipfels auf 2.962 m ü.NN, die geographischen Koordinaten liegen bei 47°25' nördlicher Breite und 10°59' östlicher Länge. Die Umweltforschungsstation Schneefernerhaus liegt in exponierter Lage am Südhang der Zugspitze auf 2650 m ü.NN.

Bezüglich des vertikalen Aufbaus der Atmosphäre ist die Höhe der Station mit fast 3000 m ü.NN und dem Vorherrschen von Gradientwind der unteren freien Troposphäre zuzuordnen, wobei sich zeitweise Einflüsse aus der Grundschicht einstellen. Die freie Troposphäre wird meist durch eine Inversionsschicht von der darunter liegenden Grenzschicht (oder auch allgemein Grundschicht) getrennt. Kennzeichnend für die Grenzschicht sind die durch Bodenreibung verursachten turbulenten Strömungsverhältnisse, die durch Konvektion bestimmte vertikale Durchmischung sowie die damit verbundenen Konzentrationsverhältnisse von bodennah emittierten Spurengasen. Die Mächtigkeit der Grenzschicht zeigt starke tages- wie auch jahreszeitliche Schwankungen und ist von der Rauigkeit, der vertikalen Temperaturschichtung sowie der vorherrschenden Windgeschwindigkeit abhängig. Im Mittel liegt die Mächtigkeit der Grenzschicht bei etwa 1000 m, im Hochsommer bis über 2000 m und im Winter bei einigen hundert Metern [EMEIS, 2000, Seite 97].

Der Aufbau der Grenzschicht mit ihrem meist tagesperiodischen Verhalten wird vom Boden aus angeregt. Tagsüber ist die thermisch instabile und turbulente Grenzschicht vertikal gut durchmischt und wird auch als Mischungsschicht bezeichnet, die am Nachmittag ihre maximale Mächtigkeit erreicht. Durch Abkühlung bildet sich nachts eine neue stabile Grenzschicht aus, die durch geringe Windgeschwindigkeit und geringe Turbulenz gekennzeichnet ist und auch unter dem Begriff der Bodeninversion verstanden wird. Oberhalb der nächtlichen neu gebildeten Schicht bleibt der Rest der konvektiven Grenzschicht vom Tag als gut durchmischte sowie leicht turbulente Schicht zurück, die als Residual-Schicht bezeichnet wird [VISCONTI, 2001, Seite 172 ff]. Da die Residualschicht streng genommen nicht mehr zur nächtlichen Grenzschicht gehört, aber noch Konzentrationsverhältnisse bodennaher Spurengase enthält, wird im nachfolgendem Kontext der allgemein verwendete Begriff Grundschicht für die unterste Schicht als Abgrenzung zur freien Troposphäre verwendet.

Eine geringe Mächtigkeit der Grundschicht wie beispielsweise im Winter beinhaltet aufgrund der weniger starken vertikalen Durchmischung höhere Konzentrationsverhältnisse mit bodennah emittierten Spurengasen und ist bei einem Herantransport an die Station mit entsprechend höheren Konzentrationsänderungen verbunden. Das Niveau der Grundschicht erreicht nur bei starker Konvektion die Höhe der Zugspitze, die zum Teil auf thermisch induzierte Vorgänge zurückzuführen ist, teilweise aber auch durch die lokale Topographie selbst ausgelöst wird. Daneben wird die großräumige Strömung durch die Alpen beeinflusst, die den vorherrschenden Westwinden eine Nord-Süd Komponente gibt und mit Hebungsprozessen verbunden ist.

In etwa 10-13 km Höhe trennt die Tropopause das unterste Stockwerk von der Stratosphäre. Bei bestimmten Wetterlagen, vor allem im Herbst und Winter, wird die Tropopause durchbrochen und stratosphärische Luftmassen gelangen in die Troposphäre. Diese stratosphärischen Durchbrüche sind mit Konzentrationsänderungen verbunden, die wiederum an der hochgelegenen Station Zugspitze besonders deutlich ausgeprägt sind.

### 2.3.1 Lokal induzierte Vertikaltransporte

Die Windmessungen an der Zugspitze zeigen für die Windrichtungsverteilung im wesentlichen drei Hauptkomponenten, die in den Sektoren Nord-Nordost, West und Süd-Südost liegen. Nördliche Windrichtungen treten am häufigsten auf, sind aber meist nicht mit hohen Windgeschwindigkeiten verbunden. Höhere Windgeschwindigkeiten treten generell bei südwestlichen Windrichtungen auf und werden insbesondere bei Föhnwetterlagen registriert. Die Windverhältnisse mit Häufigkeit der Windrichtung und der mittleren Windgeschwindigkeit sind in Abb. 2-1 für das Jahr 1996 dargestellt, das die langjährigen Verhältnisse an dem Standort gut repräsentiert.

Das lokale Windfeld an der Zugspitze wird durch die starke Orographie beeinflusst und führt zu Abweichungen zwischen der Windregistrierung an der Station und der Windströmung der freien Atmosphäre. Die südöstliche Komponente ist beispielsweise orographisch bedingt und entspricht starkem Südwestwind in der freien Atmosphäre, der durch Ansaugen von Luft aus dem Wetterstein entsteht [DWD, 2000-B, Seite 46]. Da mit der Registrierung des orographisch bedingten Windfeldes an der Station kein unmittelbarer Rückschluss auf Herkunft und Verlauf der Luftmassen möglich ist, sind Spurengaswindrosen mit Darstellung der Abhängigkeit zwischen mittlerer Konzentration und Windrichtungssektor nur eingeschränkt für die Identifizierung beeinflusster Luftmassen an der Zugspitze nutzbar. Eine Ausnahme stellt die Spurengaswindrose der Natürlichen Radioaktivität dar, die einen Einfluss durch lokale Hangwinde erkennen lässt. Erhöhte Konzentrationen von Kohlenmonoxid treten 1996 zwar im Richtungssektor Ost-Südost ( $110^{\circ}$ - $130^{\circ}$ ) auf (vgl. Abb. A.2-3, Seite 175), sind jedoch aufgrund der geringen Häufigkeit dieses Sektors nicht für allgemeingültige Schlussfolgerungen relevant.

Durch die starke Orographie bedingt sind für die Strömungsverhältnisse an der Station lokal auftretende Zirkulationsmechanismen von Bedeutung. Hierzu zählen die thermisch induzierten Konvektionsvorgänge mit Hangwind sowie der Berg- und Talwind. Eine Ausprägung von katabatischen Winden der Gletscher in der Windmessung an der Station, die im Bereich des Zugspitzplateaus über dem Schneeferner sowie dem östlich gelegenen Höllentalferner auftreten könnten, sind bislang nicht bekannt. Die dortigen Gletscherflächen sind relativ klein und eine mögliche Zirkulation würde von dominanten Hangwinden und dem Berg-Talwind-System überlagert.

Hangwinde mit hangaufwärtsgerichteten Windbewegungen werden durch die Besonnung eines Berghangs initiiert, die zu einer Erwärmung der Luft mit anschließendem Aufstieg führt. An der Zugspitze tritt dieser lokale Hangwind durch Erwärmung des südlichen Gipfelmassives auf und trägt zu der gegenüber der freien Atmosphäre stärkeren Komponente von Südwinden bei. Berg-Talwind-Systeme sind auf thermisch bedingte Luftdruckunterschiede in jeweils gleichem Höhenniveau zwischen Gebirge und über der Ebene zurückzuführen. Mit verstärkter Erwärmung der Luft im Gebirge fällt der Luftdruck und führt zu einem Nachströmen von Luft aus den Tälern. Der Talwind setzt ca. zwei bis drei Stunden nach Sonnenaufgang ein und

kann Windgeschwindigkeiten bis zu  $5 \text{ ms}^{-1}$  erreichen. In den Alpen ist der tagsüber zum Gebirge hineinströmende Wind bis in eine Entfernung von über 50 km nachgewiesen worden [EMEIS, 2000, Seite 112].

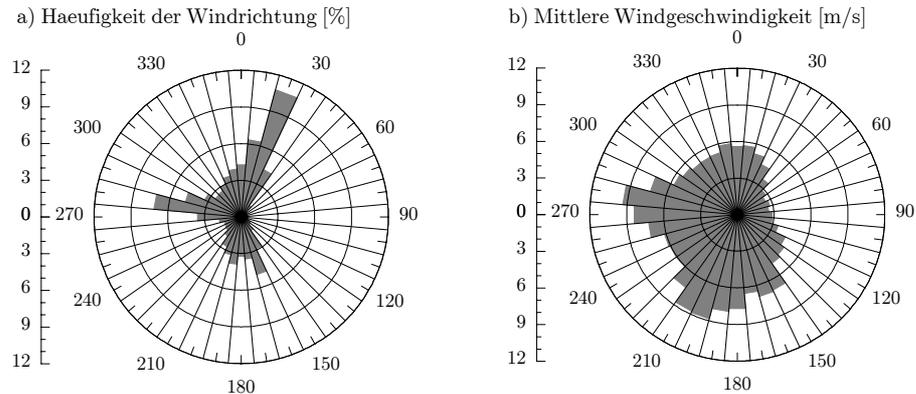


Abb. 2-1 Registrierte Windverhältnisse an der Station Zugspitze für 1996

Die Gradeinteilung entspricht der Windrichtung  $0^\circ$  Nord,  $90^\circ$  Ost,  $180^\circ$  Süd,  $270^\circ$  West.

- a) Häufigkeit der Windrichtung als Anteil in Prozent der registrierten Windrichtungen.  
 b) Mittlere Windgeschwindigkeit als Arithmetisches Mittel eines Windrichtungssektors.

Das tagesperiodische Windsystem ist an der Talstation des Deutschen Wetterdienstes in Garmisch deutlich erkennbar. An der Talstation herrschen entsprechend der Talführung ausschließlich südwestliche und nordöstliche Windrichtungen vor (vgl. Abb. 2-2-a). Die Ausprägung der Berg- und Talwinde zeigt sich, wenn die Häufigkeiten der Windrichtung nach der Tageszeit getrennt dargestellt werden. Der tagsüber auftretende Talwind (vgl. Abb. 2-2-c) kommt aus nordöstlichen Richtungen und ist im Gegensatz zum Bergwind (vgl. Abb. 2-2-d), der sich als sehr schwacher nächtlicher Kaltluftstrom aus dem Gebirge darstellt, mit höheren Windgeschwindigkeiten (vgl. Abb. 2-2-b) verbunden.

An der Zugspitze ist vor allem Mittags bei strahlungsreichen Hochdrucklagen mit einem Einfluss durch Talwind an der Station zu rechnen, der durch Hangwinde verstärkt wird und einen thermischen Einfluss auf den sonst vorherrschenden Gradientwind ausübt. Der damit verbundene Transport bodennaher Luftmassen an die Station ist in der Spurengaswindrose für den Tracer Natürliche Radioaktivität wiederzufinden. Hohe Konzentrationen der Natürlichen Radioaktivität treten verstärkt in den südwestlichen Sektoren ( $170^\circ$ - $260^\circ$ ) auf und zeigen insbesondere während strahlungsintensiver Monate einen ausgeprägten mittleren Tagesgang (vgl. nachstehendes Kapitel 3.6.1. Natürliche Radioaktivität).

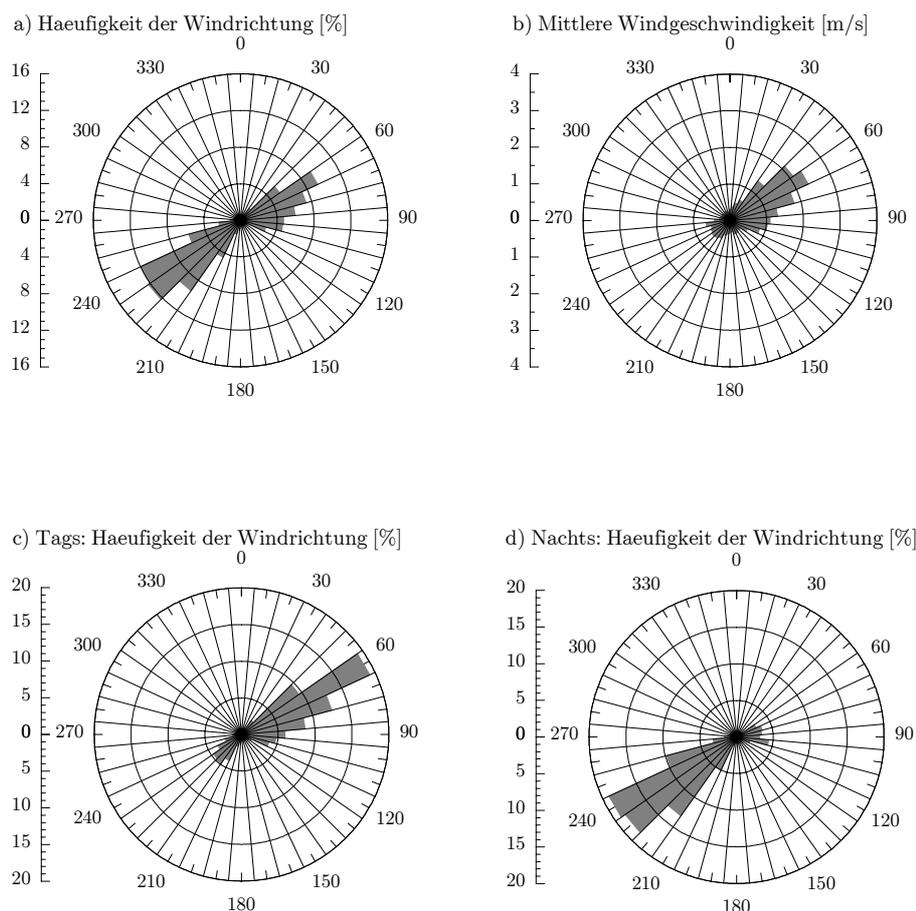


Abb. 2-2 Windverhältnisse an der Talstation Garmisch für 1996

Die Gradeinteilung entspricht der Windrichtung  $0^\circ$  Nord,  $90^\circ$  Ost,  $180^\circ$  Süd,  $270^\circ$  West.

- Häufigkeit der Windrichtung als Anteil in Prozent der registrierten Windrichtungen.
- Mittlere Windgeschwindigkeit als Arithmetisches Mittel eines Windrichtungssektors.
- Häufigkeit der Windrichtung zwischen 10:00 und 17:00 MEZ, täglicher Talwind.
- Häufigkeit der Windrichtung zwischen 21:00 und 06:00 MEZ, nächtlicher Bergwind.

Die tagesperiodisch und lokal thermisch induzierten Windsysteme treten generell im Alpenraum auf und führen in ihrer Summe zu einem Windsystem größerer Dimension. Die Luftdruckunterschiede zwischen den Alpen und dem Vorland induzieren insgesamt ein Windsystem, das durch Konvektion über den Alpen ausgelöst wird. Dabei strömt in den unteren atmosphärischen Schichten Luft aus dem Vorland in die Alpen, strömt darüber zum Vorland wieder zurück und schließt das Windsystem durch Absinkbewegung über der Ebene. Da bei dem Transport aus dem Vorland spurenstoff-angereicherte Luftmassen aus den bodennahen Schichten in den Alpenraum und damit auch in die untere freie Troposphäre verfrachtet werden, wird diese ther-

mische Zirkulation als sogenanntes Alpines Pumpen bezeichnet. Für hochalpine Stationen, wie die der Zugspitze, bedeutet dies einen Einfluss durch bodennahe Luftschichten, der durch die Lage in den Alpen selbst ausgelöst wird, mit höheren Mischungsverhältnissen verbunden ist und damit den Unterschied zu den niedrigeren Konzentrationsverhältnissen der atmosphärischen Schichten in gleicher Höhe über der Ebene erklärt. Fallstudien zur Spurengasverfrachtung aus dem Alpenvorland durch Alpines Pumpen geben [LUGAUER, 2001], [KROMP-KOLB, 2001] und [NYEKI ET AL., 2000].

### 2.3.2 Synoptisch bedingte Transportprozesse

Die thermisch induzierten Transportprozesse führen zu einem mit Tagesperiodizität auftretenden Einfluss an der Station. Hingegen sind episodenhafte Einflüsse von Stunden bis Tagen an der Station auf advektiv herantransportierte Luftmassen mit Hebungsvorgängen in weiterer Entfernung als dem lokalen Umfeld oder Alpenvorland zurückzuführen. Synoptisch induzierte Hebungsvorgänge im zurückliegenden Verlauf der an die Station herantransportierten Luftmassen beinhalten Vertikaltransporte unterschiedlicher Dimension und sind auf die jeweilige großräumige Wetterlage zurückzuführen. Fronten sind mit mehr oder weniger mächtigen Vertikalbewegungen relativ großräumiger Ausdehnung verbunden, bei Föhnereignissen hingegen sind die vertikalen Austauschprozesse im Luv des Gebirges entscheidend. Neben dem vertikalen Verlauf ist die Herkunft der an die Station herantransportierten Luftmassen entscheidend, ob dafür ein bodennaher Aufenthalt auch mit einer Emissionsaufnahme und anschließender Registrierung an der Station verbunden ist. Die anthropogen bedingte Emissionssituation ist im europäischen Raum insgesamt sehr inhomogen und führt je nach Aufenthalt der Luftmassen, wie zum Beispiel über der italienischen Po-Ebene, zu einer unterschiedlicher Ausprägung an der Zugspitze.

Die Erfassung synoptisch bedingter Vertikaltransporte erfordert eine Beobachtung der großräumigen Wetterlage, die über die Analyse der punktuellen meteorologischen Messgrößen einer Station hinaus geht. Eine Rückverfolgung der an die Station herantransportierten Luftmassen ist hingegen über dreidimensionale Rückwärtstrajektorien möglich. Rückwärtstrajektorien beschreiben neben Herkunft auch den vertikalen Verlauf der Luftmassen, mit denen Vertikaltransporte übergeordneter Strömungsverhältnisse erfassbar sind, wenn auch die Modellauflösung gewisse Unsicherheiten für kleinräumig auftretende Prozesse nicht ausschließt. Für die Zugspitze werden dreidimensionale Rückwärtstrajektorien vom Deutschen Wetterdienst mit dem Modell TRAJEK auf Basis des Europa-Modells zu den Ankunftsterminen zu 00:00 und 12:00 UTC an der Station berechnet. Eine detaillierte Beschreibung des Modells TRAJEK gibt [FAY ET AL., 1995].

Jede Rückwärtstrajektorie beinhaltet von der Station aus die Rückverfolgung der Luftmassen mit Angabe der geographischen Breite und Länge sowie Höhe über NN in jeweils stündlicher Auflösung bis maximal 96 Stunden zurück bzw. bis der Modellrand erreicht wird. Die Berechnung der Rückwärtstrajektorien wird für die drei Ankunfts niveauflächen der 700 hPa-Druckfläche, 800 hPa-Druckfläche sowie für den aktuellen Druck in Höhe der modellierten Topographie minus 6 hPa berechnet. Bei der Auswahl eines Trajektorien datensatzes ist zu berücksichtigen, dass es sich bei der Höhenangabe um gemittelte Werte für eine Gitterfläche im Europamodell handelt und nicht mit der tatsächlichen Höhenlage der Station gleichzusetzen ist. Das Ankunfts niveau der modellierten Topographie minus 6 hPa liegt für die Datensätze

von 1996 zwischen 1453 m und 1873 m und beträgt im Mittel 1600 m. Das Ankunftsniveau für die 700 hPa-Druckfläche liegt bei 3012 m und für die 800 hPa-Druckfläche bei 1949 m. Während das Ankunftsniveau in Bodennähe aufgrund der Gitterauflösung für die Zugspitze insgesamt zu niedrig liegt, ist das Ankunftsniveau der 700 hPa-Druckfläche mit einer Höhendifferenz von über 1000 m zu weit von der modellierten Topographie entfernt, so dass eine bestmögliche Annäherung für das tatsächliche Ankunftsniveau in Höhe der Zugspitze über die 800 hPa-Druckfläche erfolgt.

Das Einzugsgebiet der Luftmassen für die Zugspitze kann über die Darstellung der einzelnen Trajektorienverlauf-Stunden abgebildet werden. Die Differenzierung der Trajektorienverlauf-Stunden nach jeweils 24-, 48-, 72-, 96 -stündiger Rückverfolgung ist in Abb. 2-3 dargestellt. Neben der starken westlichen Strömungskomponente zeigt sich insgesamt ein sehr großes Einzugsgebiet, das bereits nach 24 Stunden über den europäischen Kontinent hinaus reicht. Während der Herantransport von Luftmassen über weite Entfernung im wesentlichen mit hohen Windgeschwindigkeiten in größeren Höhen erfolgt, findet ein Aufenthalt der Luftmassen über dem europäischen Kontinent häufig in niedrigen Höhen statt und beinhaltet einen potentiellen Einfluss aus der dortigen Grundschicht.

In Abb. 2-4 sind die Trajektorienverlauf-Stunden mit Differenzierung nach der Aufenthaltshöhe dargestellt. Für Trajektorienverlauf-Stunden mit Aufenthaltshöhen unter 750 m (vgl. Abb. 2-4-a) ist neben einzelnen Fragmenten von Trajektorienverläufen ein charakterisiertes Bild zu erkennen, das ein westöstlich verlaufendes Band sowie die Aussparung bestimmter Regionen wie die des spanischen Kontinents und der Alpen zeigt. Während Trajektorienverlauf-Stunden mit Aufenthaltshöhen unter 1500 m (vgl. Abb. 2-4-b) sich im wesentlichen auf den europäischen Kontinent konzentrieren, wird in Abb. 2-4-c und -d der Zusammenhang zwischen Aufenthaltshöhe und zunehmender Entfernung von der Zugspitze deutlich. Es wird aber auch deutlich, dass über dem europäischen Kontinent die zurückverfolgten Luftmassen insgesamt betrachtet in allen Höhenbereichen liegen und eine Einzelfalluntersuchung eines jeden Trajektorienverlaufs hinsichtlich synoptisch bedingter Vertikaltransporte erfordern.

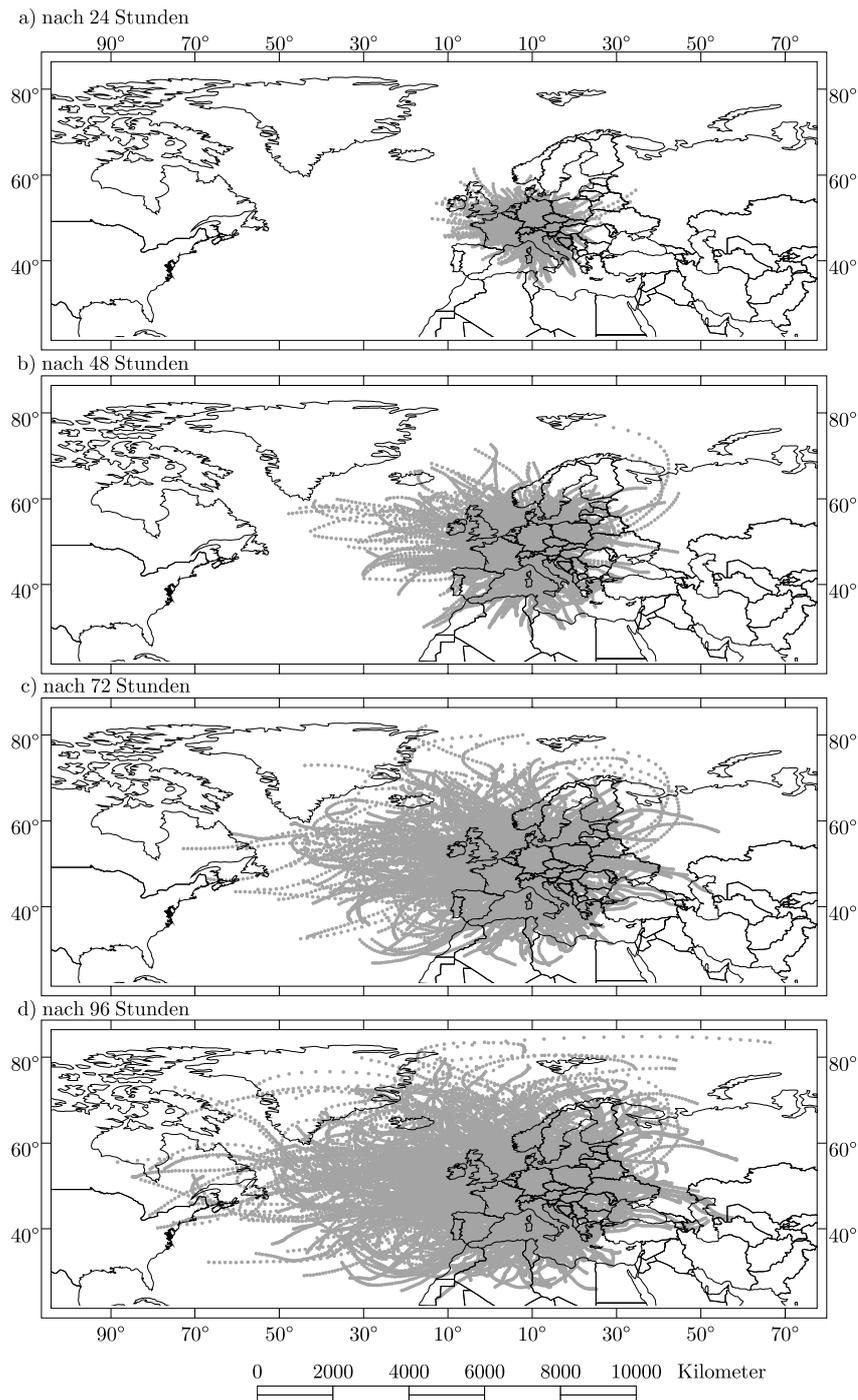


Abb. 2-3 Luftmassen Einzugsgebiet mit zeitlicher Differenzierung, 1996

Darstellung der Rückwärtstrajektorien mit Ankunftsniveau der 800 hPa-Druckfläche an der Zugspitze für 1996. Die Trajektorienverlauf-Stunden sind nach 24-, 48-, 72-, sowie 96- stündlicher Rückverfolgung differenziert dargestellt.

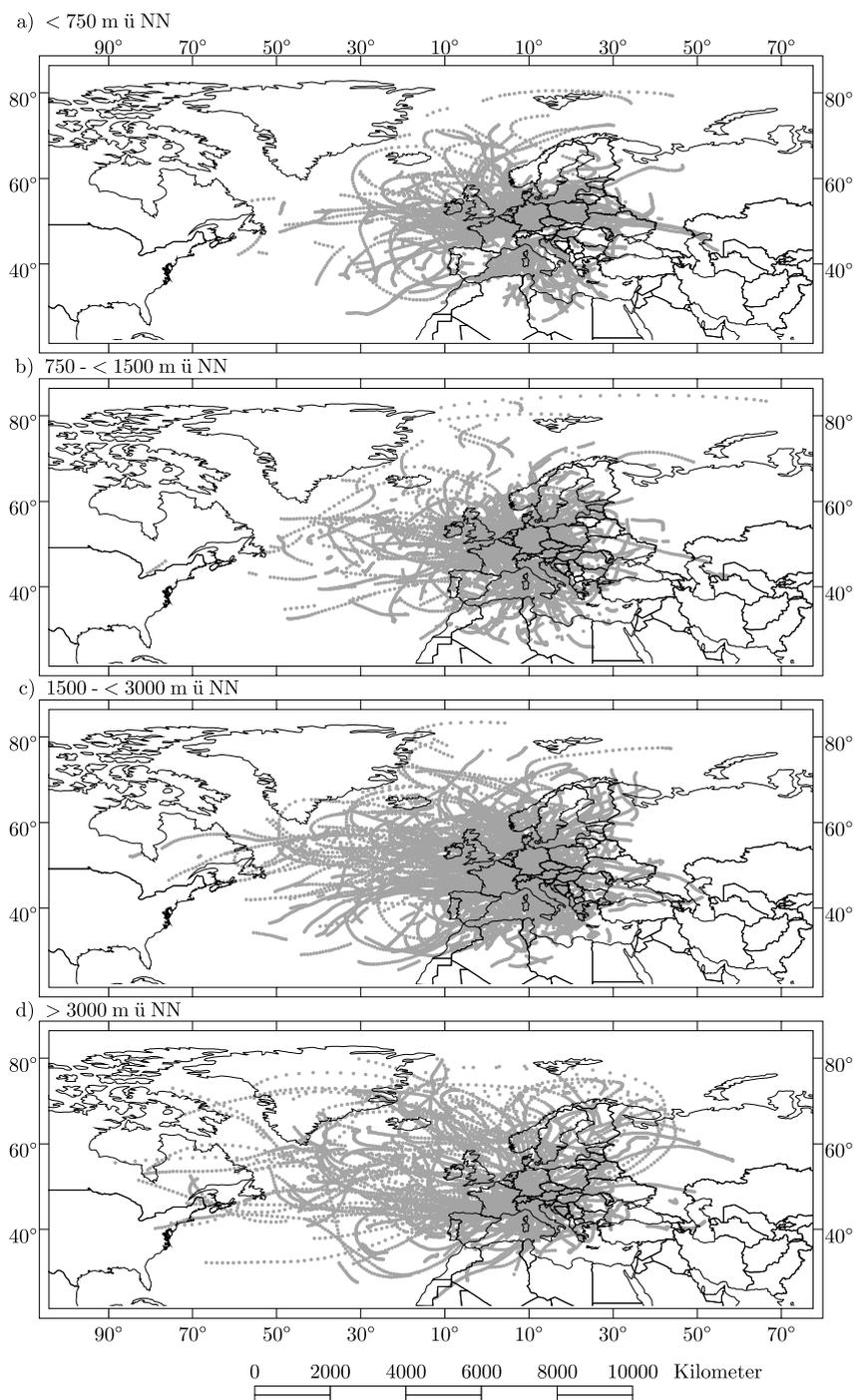


Abb. 2-4 Luftmassen-Einzugsgebiet mit vertikaler Differenzierung, 1996

Darstellung der Rückwärtstrajektorien mit Ankunftsniveau der 800 hPa-Druckfläche an der Zugspitze für 1996. Die Trajektorienverlauf-Stunden sind nach der Aufenthaltshöhe in die vier Klassen: < 750 m, 750-1500 m, 1500-3000 m und > 3000 m differenziert dargestellt.

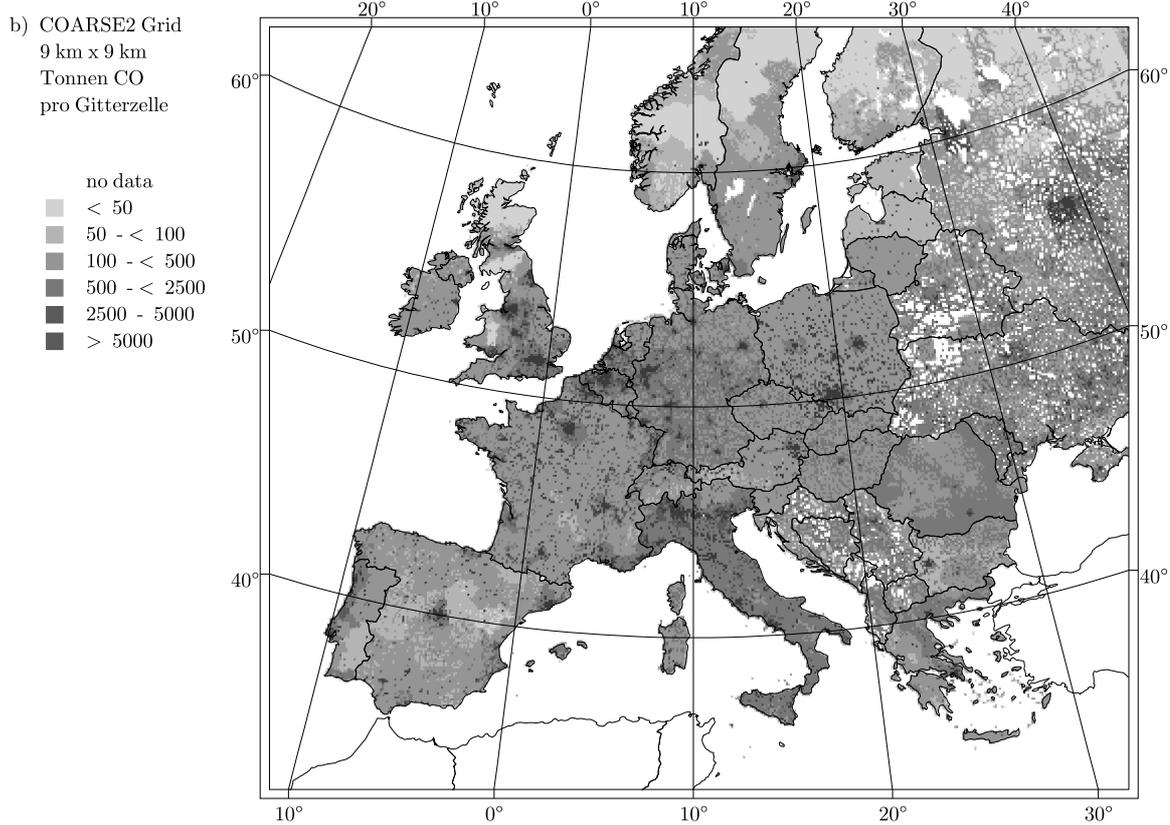
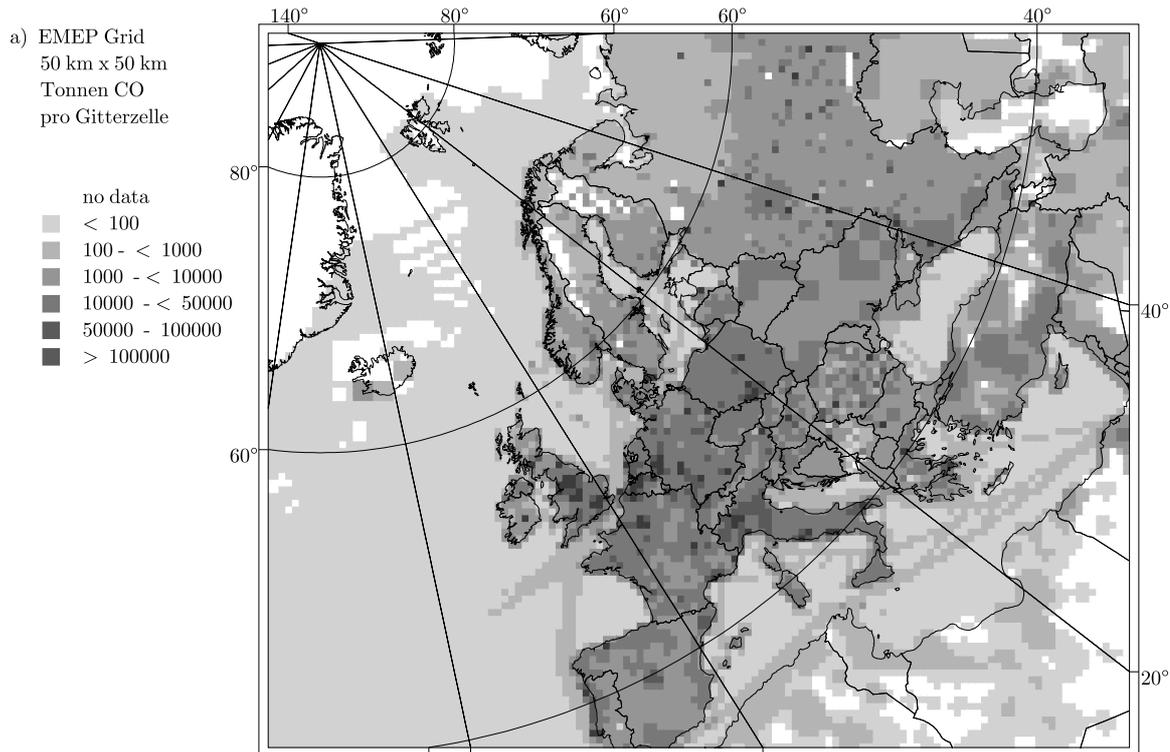
### 2.3.3 Europäische Emissionssituation

Im Zusammenhang mit synoptisch bedingten Vertikaltransporten und anschließendem advektiven Herantransport ist bei einem Aufenthalt der Luftmassen in der Grundsicht die damit verbundene mögliche Konzentrationsänderung von Bedeutung. Eine Abschätzung kann hierfür aus Emissions-Inventaren erfolgen, die Emissionsdaten als Quellstärke für bodennah emittierte Spurengase räumlich differenziert und zugleich für ein großräumiges Gebiet geben. Zu den Emissions-Inventaren für den europäischen Raum zählen das EMEP50-Grid sowie das räumlich höher aufgelöste COARSE2-Grid.

Das COARSE2-Grid mit einer Auflösung von ca. 9 km x 9 km wird von der Abteilung „Technikfolgenabschätzung und Umwelt am Institut für Energiewirtschaft und rationelle Energieanwendung“ (IER) der Universität Stuttgart gerechnet und ist in [WICKERT ET AL., 1999] näher beschrieben. Das Emissions-Inventar berücksichtigt anthropogene Emissionsquellen auf Landflächen für die Parameter Schwefeldioxid, Stickoxide sowie Kohlenmonoxid und ist derzeit für die zwei Jahre 1994 und 1998 verfügbar. Die Angabe der Emission erfolgt als Summe eines Jahres in Tonnen pro Gitterzelle, wobei die insgesamt 175500 Gitterzellen über den Lagemittelpunkt mit zugehöriger exakter Flächenangabe beschrieben werden.

Im Rahmen des europäischen Überwachungsprogrammes „European Monitoring and Evaluation Programme“ (EMEP) werden vom „Meteorological Synthesizing Center-West“ in Oslo (MSC-West) Emissionsdaten im sogenannten EMEP50-Grid bereitgestellt [Datenabruf: <http://webdab.emep.int/>]. Erläuterungen zu dem Emissions-Inventar geben [VESTRENG, KLEIN, 2002] und [OLENDRZYNSKI, 1999]. Das EMEP50-Grid basiert auf einer Auflösung von ca. 50 km x 50 km und berücksichtigt auch Emittenten außerhalb von Landflächen für die fünf Parameter Schwefeldioxid, Stickoxide, Ammoniak, NMVOC sowie Kohlenmonoxid. Die Emissionsdaten sind derzeit für die Jahre 1997 bis 2000 verfügbar, wobei das Emissions-Inventar laufend fortgeschrieben wird. Daneben sind ältere Datensätze für das niedrig aufgelöste Grid mit 150 km x 150 km Auflösung zugänglich. Die Angabe der Emission erfolgt als Summe eines Jahres in Tonnen pro Gitterzelle. Neben der Angabe zu Fläche und Lagemittelpunkte der insgesamt 15096 Gitterzellen werden zusätzlich die Eckpunkte beschrieben.

Die Kenndaten der beiden Emissions-Inventare COARSE2-Grid und EMEP50-Grid sind in Tab. 2-3 (Seite 20) gegenübergestellt. Während das COARSE2-Grid eine hohe Raumauflösung bietet, wird mit dem EMEP50-Grid ein größerer Raum erfasst, der insbesondere durch den Einbezug östlicher Gebiete an Bedeutung gewinnt. Daneben werden im EMEP50- im Gegensatz zum COARSE2-Grid auch Emissionsquellen auf Wasserflächen berücksichtigt. Für das EMEP50 Inventar sind zusätzlich die luftchemischen Größen  $\text{NH}_3$  und NMVOC verfügbar. Die unterschiedliche Auflösung der beiden Inventare wird mit Darstellung des Inventars am Beispiel für Kohlenmonoxid im Jahr 1998 in Abb. 2-5 deutlich. Zu beachten ist hierbei die zugrunde liegende Projektion sowie der für die Emissionsangabe getroffene Bezug zur Gittergröße, die im COARSE2-Grid etwa 81 km<sup>2</sup> und im EMEP50-Grid etwa 2500 km<sup>2</sup> beträgt.



## Abb. 2-5 Emissions-Inventare EMEP50- und COARSE2-Grid

Beispiel für Kohlenmonoxid mit Bezugsjahr 1998

- ◀ a) EMEP50-Grid: Meteorological Synthesizing Center-West, Oslo (MSC-West), European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP), Projektion: Stereographic.
- b) COARSE2-Grid: Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER), Universität Stuttgart, Projektion: Lambert Conform Conical.

Tab. 2-3 Kenndaten der Emissions-Inventare COARSE2 und EMEP50

Kenndaten	COARSE2-Grid	EMEP50-Grid
Parameter	CO	CO
	SO <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub>
	NO <sub>x</sub> als NO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub> als NO <sub>2</sub>
		NH <sub>3</sub>
		NMVOC
Bezugsjahr, (Stand: 2002)	1994, 1998	1997, 1998, 1999, 2000
Gitterauflösung	9 km x 9 km	50 km x 50 km
Gitterpunkte	x: 450	x: 136
	y: 390	y: 111
Anzahl	175500	15096
Projektion	Lambert Conform Conical	Stereographic

Eine kombinierte Nutzung der räumlich hochaufgelösten Emissionsdaten des COARSE2-Grid in Ergänzung der Daten des EMPE50-Grid für Randbereiche und Wasserflächen kann durch eine Grid-Transformation der beiden Inventare erreicht werden. Im Hinblick auf eine spätere Verbindung zu den Trajektorien- und Daten ist eine Grid-Transformation für ein äquidistantes Grid mit einer Auflösung von 1/10-Gradangabe durchzuführen. Hierfür wird zunächst ein neues Grid mit einer Ausdehnung in Größe des EMEP50-Grid berechnet. Mit der Gridding-Methode Nearest Neighbor erfolgt eine Zuordnung der Gitterzellen der beiden Inventar-Grids zu dem neu berechneten äquidistanten Grid. Um spätere Aktualisierungen der Emissionsdaten für weitere Jahrgänge ohne die Prozeduren einer Gittertransformation durchführen zu können, erfolgt die Zuordnung der Grids nicht für die Emissionsdaten sondern für die eindeutigen Kenndaten der jeweiligen Gridzellen. Ergebnis der Grid-Transformation sind zwei Grid-Tabellen, die jeweils eine Zuordnung zwischen den Kenndaten der Inventare COARSE2-Grid und EMEP50-Grid zu dem neu berechneten äquidistanten Grid enthalten und für die Herstellung eines kombinierten Grid als Verbindungstabelle zwischengeschaltet werden. Die inhaltliche Zusammenführung der

Emissionsdaten erfolgt dann prozedurgesteuert in einer Datenbank. Hierbei werden die hochaufgelösten Daten des COARSE2-Grid prioritär behandelt und die Daten des EMEP50-Grid nur für Randbereiche oder Wasserflächen herangezogen. Für eine Vergleichbarkeit der Emissionsdaten ist zusätzlich eine Umrechnung auf die einheitliche Basis eines Quadratkilometers durchzuführen, womit das kombinierte Inventar COARSE2-EMEP50-Grid dem Prinzip der Massenerhaltung entspricht.

#### 2.3.4 Intrusionen

Im Gegensatz zu bodennah beeinflussten Luftmassen wird ein weiterer Einfluss auf die Konzentrationsverhältnisse am Mess-Standort Zugspitze durch einen direkten Vertikaltransport aus der Stratosphäre verursacht. Der globale Stratosphären-Troposphären-Austausch ist gekennzeichnet durch den Aufstieg von Luftmassen über den Tropen in die Stratosphäre, stratosphärischem Transport in mittlere und höhere Breiten mit langsamen Absinken in die untere Stratosphäre und anschließendem episodenhaften Luftmassen-Austausch mit der Troposphäre. Entgegen diesem sogenannten downward-pumping als Motor der Meridionalzirkulation stellen Intrusionen einen direkten markanten Transport von stratosphärischer Luft bei Tropopausenfaltungen und sogenannter Kaltlufttropfen dar. Während die Tropopause eine relativ wirksame Sperre gegen Vertikalbewegungen darstellt, tritt ein verstärkter Austausch bei typischen Wetterlagen mit Austrogung der oberen Troposphäre durch Absenkung und Bildung einer Falte der Tropopause auf. Hierbei strömt stratosphärische Luft in die Troposphäre nach und führt über einem nachfolgenden Bodenhoch zu einem Absinken. Bei Ausprägung eines Kaltlufttropfens als abgeschlossenes Höhentief und Absenkung der Tropopause unterstützen konvektive Prozesse die Ausbildung von stratosphärischen Durchbrüchen in die Troposphäre. Episoden von Intrusionen sind an Bergstationen mit Konzentrationsänderungen zu Mischungsverhältnissen für stratosphärische Luftmassen verbunden. Charakteristisch hierfür sind hohe Konzentrationen von stratosphärischem Ozon und kosmogenem Beryllium-7 sowie eine niedrige Luftfeuchte und geringe Konzentrationsverhältnisse für bodennah emittierte Spurengase wie Kohlenmonoxid und Radon-222 (DWD, OZONBULLETIN, 1998).

Vor dem Hintergrund des starken Anstiegs der Ozonkonzentrationen in den letzten Dekaden mit besonders starker Ausprägung an Hochgebirgsstationen sind Intrusionen an Bergstationen wegen des Zusammenhangs mit hohen Ozonkonzentrationen bereits in Fallstudien hinsichtlich Entstehung und Häufigkeit untersucht worden. Bergstationen unterliegen aufgrund ihrer Höhe einem regelmäßigen Einfluss von Intrusionen, der zum Teil auch auf die durch die Topographie selbst bedingte Lee-Zyklogese zurückzuführen ist [REITER, 1991, BUZZI ET AL., 1984]. Die generelle Höhenabhängigkeit hinsichtlich der Intrusionshäufigkeit belegt [ELBERN ET AL., 1997] für einen 10-jährigen Zeitraum mit Angabe einer 2-fachen Häufigkeit von Intrusionen an der Zugspitze im Vergleich zum benachbarten Wank (1776 m ü.NN) und keiner signifikanten Ausprägung im Tal Garmisch-Partenkirchen (740 m ü.NN).

Mit Zunahme der Höhe steigt die Häufigkeit der Ereignisse sehr starker Einflüsse, die von [STOHL ET AL., 2000] für den Sonnblick (3106 m ü.NN) mit 10% angegeben wird, am Jungfraujoch (3580 m ü.NN) liegt die Häufigkeit bei 17%, zudem fehlt das ausgeprägte Minimum im Sommer und zeigt keine ausgeprägte jahreszeitliche Variation. Daneben zeigen die dort betrachteten Fallstudien eine gute Identifizierung von Intrusionen aus Messdaten über die Größen von Ozon, Beryllium-7 und der Relativen Feuchte. Ein starker Einfluss durch Intrusionen an der Zugspitze wird von [SCHEEL

ET AL., 1999] für 5-6% der Zeit angegeben, für gut 10% der Zeit ist ein schwächerer aber durchaus noch deutlicher Einfluss erkennbar. Das Maximum der Häufigkeit wird im Oktober mit 12% erreicht, ein zweites Maximum liegt im Winter und Frühsommer, das Minimum mit weniger als 3% liegt in den Monaten Mai bis August.

Während im nachfolgenden Kapitel 3 die Darstellung der luftchemischen Messgrößen erfolgt, wird folgend die meteorologische Messgröße der Relativen Feuchte vor dem Hintergrund einer Verwendung als Tracer für Intrusionen beschrieben.

Die Quelle der atmosphärischen Feuchtigkeit liegt in der unteren Troposphäre. Höhere Temperaturen im Sommer bedingen eine höhere Verdunstung von Wasser und führen zu einem Maximum der absoluten Feuchtigkeit im Sommer und Herbst. Der Temperatureinfluss auf die Feuchtigkeitsverhältnisse hingegen führt zu einem gegensätzlichen Jahresgang der Relativen Feuchte mit Maximum im Winter und Minimum im Sommer. Neben ausgeprägten tageszeitlichen Schwankungen findet vor allem im Sommer eine Beeinflussung der Feuchtigkeitsverhältnisse aufgrund lokaler Vorgänge und durch bestimmte Wetterlagen wie Hochdrucklagen statt. [LILJEQUIST, 1974, Seite 46 ff].

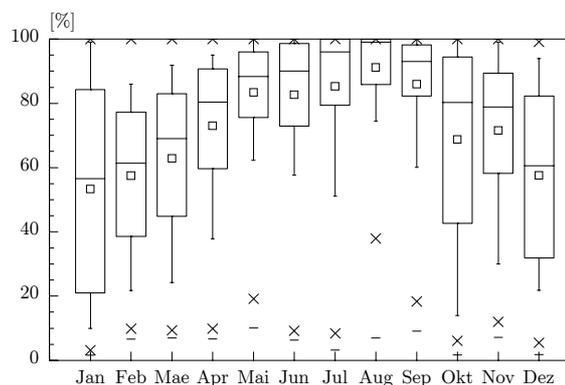
Die Vertikalstruktur der Relativen Feuchte besitzt an der Tropopause eine Diskontinuität zweiter Ordnung, das stratosphärische Mittel liegt bei  $32 \pm 28\%$ , das troposphärische bei  $61 \pm 26\%$ . Im Vergleich zur Spezifischen Feuchte eignet sich die Relative Feuchte aufgrund der Diskontinuität als Tracer für stratosphärische Luftmassen, da die Spezifische Feuchte neben der exponentiellen Abnahme mit der Höhe einen kontinuierlichen Übergang zwischen troposphärischer und stratosphärischer Verteilung zeigt. Die relative Feuchtigkeit nimmt in der Stratosphäre aufgrund des downward-pumping im Frühjahr etwas ab. Diese Abnahme wird mit Zunahme der Temperatur in der Stratosphäre bis in die Sommermonate weiter verstärkt, trotz eines höheren Wasserdampfgehaltes im Sommer als im Winter, führt aber insgesamt nicht zu einem deutlich ausgeprägten Jahresgang [DUHNKE, 1998, Seite 72 ff].

Vertikalprofile mittels Radiosondenaufstiegen wie beispielsweise die der Bodenstation München-Oberschleißheim zeigen, dass der Jahresgang der Relativen Feuchte grundsätzlich von der betrachteten Höhe abhängig ist [DWD, 1999, Seite 370]. Während in Bodennähe der beschriebene Jahresgang mit Minimum im Sommer deutlich erkennbar ist, so ist in der unteren Troposphäre mit weiterer Zunahme der Höhe zunächst eine Umkehrung des Jahresganges festzustellen. Verstärkte Vertikaltransporte in den Sommermonaten beinhalten einen Feuchtetransport in größere Höhen, der durch die Temperaturzunahme in diesen Höhen nicht kompensiert wird und zu einem Maximum der Relativen Feuchte im Sommer führt. Dieser Jahresgang ist in Höhe der 700 hPa-Druckfläche deutlich erkennbar, wird dann aber ab Höhe der freien Troposphäre wiederum schwächer und verliert in Höhe der Tropopause an Ausprägung. Mit weiterer Zunahme der Höhe beträgt die Relative Feuchte in der Stratosphäre weniger als 10% und zeigt nur einen sehr schwach und nicht deutlich ausgeprägten Jahresgang, der wiederum in den Wintermonaten zum Teil etwas höhere Werte beinhaltet.

Abb. 2-6 zeigt mit Darstellung der Boxplots die Verteilung der Werte für die Relative Feuchte an der Zugspitze sowie im Vergleich dazu die der Talstation Garmisch. An der Talstation Garmisch beträgt die Relative Feuchte im Jahresdurchschnitt 82% und zeigt den typischen Jahresverlauf bodennaher Stationen mit Maximum im Winter wie für den Dezember 1996 mit 92% und Minimum im Sommer wie beispielsweise für den Juli 1996 mit 75%. An der hochgelegenen Station Zugspitze liegt die Relative Feuchte mit einem Jahresdurchschnitt von 73% insgesamt niedriger als an der Tal-

station. Zugleich zeigt die jahreszeitliche Variation einen entgegengesetzten Verlauf mit einem Minimum von beispielsweise 53% im Januar und einem Maximum von über 90% im August. Der Jahresverlauf der Relativen Feuchte verdeutlicht den Einfluss aufgrund der mit den höheren Temperaturen in den Sommermonaten angeregten Konvektion, der mit einem Feuchtetransport an die Zugspitze verbunden ist. Gleichzeitig zeigt die deutliche Differenz zwischen Arithmetischen Mittel und dem höher liegendem Median an beiden Stationen eine linksschiefe Verteilung mit einer hohen Häufigkeit von extrem niedrigen Werten der Relativen Feuchte. An der Zugspitze liegen die Minima-Werte und 1%-Perzentile in allen Monaten unter 40%, in den Monaten Oktober bis April auch die 10%-Perzentile und zeigen insgesamt den Einfluss von Luftmassen aus großen Höhen wie er bei Intrusionen auftritt. Mit der alpinen Lage der beiden Stationen treten auch Föhn-Ereignisse auf, die ebenfalls mit einem Einfluss auf die Änderung der relativen Feuchtigkeitsverhältnisse verbunden sind.

a) Zugspitze, 1996



b) Talstation Garmisch, 1996

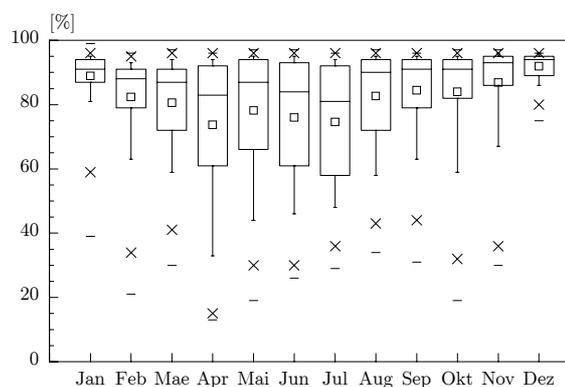


Abb. 2-6 Relative Feuchte Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

Bei der Verwendung der meteorologischen Messgröße der Relativen Feuchte als Tracer ist zu berücksichtigen, dass an der Station Zugspitze der Jahresgang in den Sommermonaten sehr stark von tageszeitlich bedingten Vertikaltransporten aus der Grundsicht beeinflusst wird. Weiter ist das Auftreten von Intrusionen jahreszeitlich bedingt mit einer unterschiedlichen Häufigkeit verbunden und findet zum Teil in einigen Monaten äußerst selten statt. Zusätzlich beinhaltet ein Einfluss an der Station aufgrund der jahreszeitlich nicht deutlich variierenden stratosphärischen relativen Feuchtigkeit auch keine jahreszeitlich bedingte Variation, die zudem in der Messreihe der Zugspitze zu keiner Ausprägung führen würde.

### 3 Analyse der Stations-Messreihen

Die Entwicklung von Filterfunktionen zur Identifikation eines Einflusses durch Herantransport bodennah beeinflusster Luftmassen an der Station Zugspitze setzt eine detaillierte Betrachtung der registrierten Konzentrationen für jedes Spurengas voraus. Hierzu gehört die Darstellung des Verlaufs der Messreihen in Abhängigkeit von der Jahres- und Tageszeit sowie der Schwankungsbreite der Konzentrationen, die unter Berücksichtigung der Quellen und Senken sowie der chemischen Eigenschaften jeden Spurengases zu erklären sind. Schwerpunkt der nachstehenden Darstellung ist die Identifikation eines Einflusses an der Station durch Luftmassen aus der Grundschicht und infolge Intrusionen, die in dem Verlauf der Messreihe erkennbar sind, aber von natürlich auftretenden Schwankungen durch Photochemie oder jahres- und tageszeitlich variierende Quellen bzw. Senken unterschieden werden müssen.

Daneben wird die Eigenschaft bestimmter Spurengase als sogenannte Tracer deutlich, die mit der Funktion einer Leitsubstanz Rückschlüsse auf die Herkunft von Luftmassen ermöglichen. Zu den nachfolgend vorgestellten Messgrößen zählen Kohlenmonoxid als wichtiges Tracergas im Rahmen der Filterfunktionen, die klimarelevanten Gase Methan und Kohlendioxid, die relativ kurzlebigen, aber für die Troposphären-Chemie bedeutenden Stickoxide  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_x$  und  $\text{NO}_y$ , Ozon und die für die Identifizierung der Herkunft von Luftmassen bedeutenden Radionuklide Beryllium-7 sowie das mit der Sammelgröße Natürliche Radioaktivität erfasste Radon-222.

Um direkte Einflüsse und die prinzipiellen Zusammenhänge auch zwischen den Messgrößen zu verdeutlichen, ist eine Darstellung auf eine möglichst übersichtliche Anzahl von Messwerten zu beschränken, die aber gleichzeitig noch den jahreszeitlichen Verlauf erfasst. Von den drei verfügbaren luftchemischen Jahres-Messreihen 1995 bis 1997 zeigt das Jahr 1996 mit vergleichsweise wenigen messtechnisch bedingten Ausfällen insgesamt eine hohe Datenverfügbarkeit sowie einen repräsentativen Verlauf. Erwähnenswert für das Jahr 1996 ist die relativ milde Witterung im Januar und der vergleichsweise kühle September (vgl. Anhang Abb. A.9-1, Abb. A.9-2, Seite 225).

In den nachstehenden Kapiteln sind neben ausgewählten Einzeldarstellungen lediglich die für das Verständnis grundlegenden Abbildungen aufgeführt, zu denen die Zeitreihe der Messwerte sowie die Boxplots mit Darstellung der Lageverteilung der Messwerte auf Monatsbasis zählen. Die im folgenden Textteil ausgewählten Abbildungen sind dem Anhang entnommen und aus Gründen der Vollständigkeit also auch dort wieder zu finden. An dieser Stelle sei explizit auf den Anhang (Seite 171 ff) verwiesen, der eine systematisch aufbereitete Darstellung der luftchemischen Messgrößen für das Jahr 1996 beinhaltet. Die Gliederung orientiert sich an den Messgrößen, die jeweils nach gleichem Schema aufbereitet sind. Insgesamt stellt dieser

Anhang eine vollständige Grundlage für die Analyse der Spurengas-Konzentrationen dar, die auch für weiterführende Auswertungen genutzt werden kann. Erläuterungen für die zum Teil statistisch zusammengefassten Darstellungen befinden sich dort in einem vorangestellten Kapitel. Für die Messgröße Beryllium-7 ist aufgrund der geringen Auflösung als Tagesmittel die Darstellung entsprechend beschränkt, daneben sind Zeitreihen und Boxplots für die meteorologischen Größen der Temperatur und Relativen Feuchte im Anhang ergänzend aufgeführt. Neben der meist auf Monatsbasis zusammengefassten grafischen Aufbereitung der Messwerte sind die statistischen Maße wie Mittelwerte und Perzentile tabellarisch mit Angabe der Datenverfügbarkeit aufgelistet. Tagesperiodische Abhängigkeiten als Abweichung vom Tagesmittel sind für die Spurengas-Konzentrationen in mittleren Tagesgängen dargestellt. Die aufgeführten Spurengaswindrosen geben die mittlere Konzentration eines Windrichtungssektors wieder, sind aber insgesamt aufgrund der erwähnten topographischen Verhältnisse an der Station nur eingeschränkt für Rückschlüsse auf die Herkunft der Luftmassen heranzuziehen. Die häufig zwischen den Messgrößen auftretenden Korrelationen werden für die quantifizierbare Stärke des Zusammenhangs statistisch mit der Berechnung des Korrelationskoeffizienten nach Spearman deutlich, die für die Spurengase tabellarisch aufgelistet sowie als Balkendiagramm dargestellt sind.

### 3.1 Kohlenmonoxid

Das Vorkommen von Kohlenmonoxid in der Atmosphäre ist in erster Linie eine Folge der atmosphärischen Oxidation von Methan, Industrieprozessen mit Verbrennung fossiler Brennstoffe und Biomasse sowie der Oxidation von Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffen. Etwa zwei Drittel sind anthropogenen Ursprungs, wobei die anthropogen bedingte Produktion fast ausschließlich in der Nordhemisphäre stattfindet. Die bedeutende Senke für Kohlenmonoxid ist die Reaktion mit dem atmosphärischen Hydroxyl-Radikal zu Kohlendioxid. Weitere Senken sind die Aufnahme durch den Boden und der Transport in die Stratosphäre. Die Dimension der derzeitigen Quellen und Senken für Kohlenmonoxid sind in Tab. 3-1 aufgelistet.

Die Konzentrationen von troposphärischem Kohlenmonoxid variieren aufgrund der unterschiedlichen Bodenquellen und der relativ kurzen chemischen Verweilzeit von 30 bis 90 Tagen zeitlich und räumlich sehr stark und zwar im Mittel zwischen 40 und 200 ppbv. Die höchsten Werte werden in Bodennähe sowie aufgrund der stärkeren anthropogenen Produktion in der Nordhemisphäre und dort vor allem in den mittleren Breiten registriert. Aus diesem Zusammenhang resultiert die für die Entwicklung von Filterfunktionen hohe Bedeutung von Kohlenmonoxid als Leitsubstanz bzw. Tracer für anthropogen beeinflusste Luftmassen. Insbesondere im Zusammenhang mit erhöhten Ozon-Konzentrationen ist hierdurch eine Unterscheidung zwischen stratosphärischem und bodennahem Ursprung erst möglich. Die Bedeutung von Kohlenmonoxid für die photochemische Ozonproduktion wird in [DWD, OZON-BULLETIN, 1999] dargestellt.

Tab. 3-1 Quellen und Senken für Kohlenmonoxid

Quellen	Wertebereich [Tg(CO)/a]
Fossile Brennstoff-Verbrennung	300-550
Biomassen-Verbrennung	300-700
Biogenics	60-160
Ozeane	20-200
Oxidation von Methan	400-1000
Oxidation von höheren Kohlenwasserstoffen	200-600
Senken	Wertebereich [Tg(CO)/a]
Hydroxyl-Radikal	1400-2600
Bodenaufnahme	250-640
Stratosphären-Transport	≈ 100
nach [IPPC, 1995]	

In der Südhemisphäre ist die Durchmischung einheitlicher und die Konzentration liegt mit etwa 0,07 ppmv deutlich niedriger als für die Nordhemisphäre mit 0,13 ppmv [ROEDEL, 2000, Seite 352]. Die saisonale Schwankungen liegen in der Nordhemisphäre bei  $\pm 40\%$  vom Mittel, während es nur  $\pm 20\%$  auf der Südhalbkugel sind [SEINFELD, PANDIS, 1998, S. 85 ff]. Der Jahresgang des Kohlenmonoxid-Mischungsverhältnisses mit Maximum der Konzentrationen im Frühjahr und Minimum im Spätsommer/Frühherbst wird durch den Abbau über die von der jahreszeitlich beeinflussten Photolyse abhängigen Hydroxyl-Konzentration gesteuert. Aufgrund der Akkumulation von Kohlenmonoxid während der strahlungsarmen Monate liegt das Maximum der Kohlenmonoxid-Konzentration im Frühjahr während der Abbau im Sommer relativ rasch abläuft. Die steuernde Größe des Hydroxyl-Radikals wird durch das Auftreten eines gegensätzlichen Jahresgang in der Südhemisphäre wie an der Globalstation Cape Grim in Australien deutlich, der entsprechend den Strahlungsverhältnissen ein Maximum im September/Okttober und ein Minimum im Januar/Februar zeigt [WMO WDCGG No.25 DATA REPORT, 2001].

Der durch das Hydroxyl-Radikal bedingte Jahresverlauf ist auch an der Mess-Station Zugspitze zu beobachten (vgl. Abb. 3-1). Während das Monatsmittel für Juli mit 113,19 ppbv und August 127,13 ppbv ein Minimum zeigt, ist für die Monate Februar bis April ein Maximum mit mittleren Konzentrationen zwischen 181,62 und 176,92 ppbv zu verzeichnen. Für Kohlenmonoxid liegt an der Zugspitze das Jahresmittel 1996 mit 143,05 ppbv auf dem zuvor aufgeführten Niveau der mittleren Breiten und verdeutlicht den Einfluss im europäischen Emissionsraum. Im Vergleich hierzu liegt der Mittelwert an der Station Mauna Loa auf Hawaii für 1996 bei 83,20 ppbv [WMO WDCGG No.21 DATA REPORT, 2000].

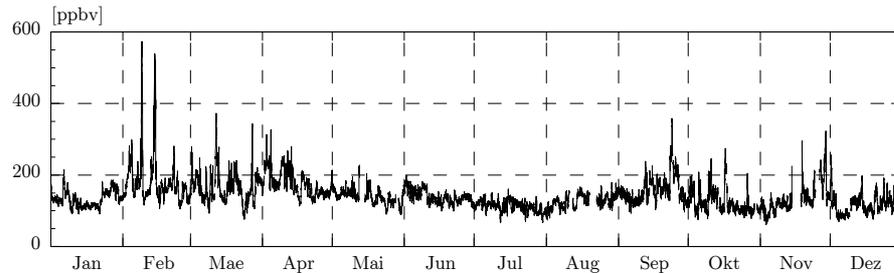
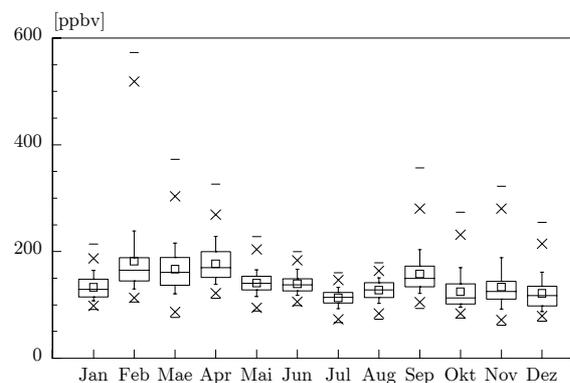


Abb. 3-1 Kohlenmonoxid Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Die Variabilität der Messwerte ist im Sommer generell niedriger als in den übrigen Monaten. Die extrem hohen Messwerte mit Konzentrationen von fast 600 ppbv im Februar sind Singularitäten, die ausschließlich im Jahr 1996 ermittelt wurden. Beispielsweise liegt die maximale Konzentration für 1995 und 1997 bei 300 bzw. 390 ppbv. Die in Abb. 3-2 dargestellte Verteilung und Lage der Messwerte auf Monatsbasis zeigt das Auftreten von starken Abweichungen vom Mittel bei ausschließlich hohen Messwerten. Insbesondere das 99%-Perzentil liegt extrem hoch, aber auch die Lagemaße des 90%-Perzentils liegen im Vergleich zu den Sommermonaten insgesamt höher. Entsprechend ist das Arithmetische Mittel höher als der für Ausreißer weniger empfindliche Median. Im Jahresmittel liegt der Median mit einer Konzentration von 135,90 ppbv um ca. 5% niedriger als das Arithmetische Mittel und damit näher an der für die Nordhemisphäre in der Literatur erwähnten mittleren Konzentration von 0,13 ppmv.

Abb. 3-2 Kohlenmonoxid Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.



Die Variabilität der Schwankungen im Jahresverlauf ist über die in Bodennähe erhöhten Emissionen anthropogenen Ursprungs zu erklären. Entsprechend der erhöhten Konzentrationen in der Grundsicht für Monate mit höheren Emissionen (z.B. mit Heizperioden) und gleichzeitig eingeschränkter Vertikaldurchmischung zeigt sich bei Herantransport der bodennah beeinflussten Luftmassen auch eine stärkere Konzentrationsänderung an der Station. Der Rückschluss auf den Einfluss aus der bodennahen Schicht wird durch das gleichzeitige Auftreten hoher Konzentrationen für weitere Spurengase mit Quellen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe wie Methan und Kohlendioxid gestützt (vgl. nachstehende Kapitel 3.2 Methan und 3.3 Kohlendioxid). Zusätzlich liegen für solche Fälle keine hohen Konzentrationen des Spurengases Beryllium-7 mit stratosphärischer Quelle vor und schließen das Vorhandensein von Luftmassen aus größeren Höhen allgemein aus.

Einzelfalluntersuchungen zeigen ein Auftreten derartiger Einflüsse insbesondere in der zeitlichen Dimension von Episoden mit einigen Tagen und sind ursächlich in Verbindung mit Wetterlagen zu betrachten, die meist zyklonal sind. Als Transportprozesse kommen im wesentlichen dynamisch bedingte Hebungen in Betracht, die nicht lokal am Standort sondern in weiter entfernten Gebieten gegebenenfalls mit einem hohen Emissionsaufkommen stattfinden und dann advektiv herantransportiert werden. Dieser Zusammenhang ist in vielen Fällen mit der entsprechenden Rückwärtstrajektorie nachzuvollziehen, die Informationen über Herkunft und vertikalen Verlauf und damit über Aufenthalt in niedrigen Höhen der an die Station herantransportierten Luftmassen gibt.

Eine Beeinflussung der Konzentrationen an der Station durch bodennah beeinflusste Luftmassen ist in den Sommermonaten weniger stark ausgeprägt. Die Lagemaße liegen vergleichsweise eng beieinander und die Abweichungen vom Mittel betreffen hohe wie niedrige Werte, womit die Messreihe mehr einer Normalverteilung entspricht. Der besonders deutlich ausgeprägte Tagesgang in der Messreihe deutet auf eine lokale konvektive Hebung von bodennahen Luftmassen an die Station hin (vgl. Anhang Abb. A.2-4, Seite 177). Die aufgrund eines erhöhten Vertikalaustausches im Sommer stärkere Durchmischung der Luftmassen sowie die relativ geringen Emissionsquellen im lokalen Umfeld führen bei einer Beeinflussung durch bodennahe Luftmassen im Vergleich zur kalten Jahreszeit zu geringen Konzentrationsänderungen an der Station.

## 3.2 Methan

Methan ist der häufigste Kohlenwasserstoff in der Atmosphäre. Als bedeutende natürliche Quelle sind neben Ozean und Termiten vor allem Feuchtgebiete zu nennen. Mit einem Anteil von mehr als zwei Drittel überwiegen jedoch die anthropogenen Emissionen. Hier sind es vor allem biosphärische Quellen mit Reisanbau, Fermentierung im Verdauungstrakt von Wiederkäuern, Verbrennung von Biomasse, Deponien sowie Quellen in Verbindung mit fossilen Brennstoffen wie Erdgasverteilungssysteme und Kohleförderung. Die bedeutende Senke für Methan ist wie für Kohlenmonoxid die Reaktion mit dem Hydroxyl-Radikal, die Abgabe in die Stratosphäre und die Aufnahme durch den Boden liegen jeweils etwa um den Faktor 10 niedriger [SEINFELD, PANDIS, 1998, S. 79]. Die wesentlichen Quellen und Senken sind mit ihren Größenordnungen in Tab. 3-2 aufgelistet.

Tab. 3-2 Quellen und Senken für Methan

Quellen	Wertebereich [Tg(CH <sub>4</sub> )/a]
Feuchtgebiete	55-150
weitere natürliche Quellen: Termiten, Ozean	20-60
Anthropogene Prozesse mit fossilen Brennstoffen: Erdgas, Kohleförderung, Erdgasverteilungssysteme, Petroleumindustrie.	70-120
Biosphärischer Kohlenstoff aus anthropogener Akti- vität: Reisanbau, Wiederkäuer-Fermentation, Ver- brennung von Biomassen, Deponierung.	200-350
Senken	Wertebereich [Tg(CH <sub>4</sub> )/a]
Hydroxyl-Radikal	360-530
Stratosphären-Transport	32-48
Bodenaufnahme	15-45
nach [IPPC, 1995]	

Die relativ hohe atmosphärische Verweilzeit und das Überwiegen der Quellen gegenüber den Senken führen zu einer Akkumulation von Methan in der Atmosphäre. Derzeit liegen die Konzentrationen bei etwa 1750 ppbv mit Schwankungen  $\pm 100$  ppbv in der Nordhemisphäre, während das vorindustrielle Mittel in einem Wertebereich von 700 ppbv lag [DLUGOKENCKY ET AL., 1994]. Im Jahr 1996 liegt das Jahresmittel an der Station Mauna Loa bei 1741,33 ppbv [WMO WDCGG NO.17 DATA REPORT, 1998].

In der Südhemisphäre liegen die Werte aufgrund der abweichenden Land-/ Meer-Verteilung und der geringeren anthropogenen Emissionsquellen bei etwa 1650 ppbv. Der jährliche Anstieg der Methan-Konzentration um ca. 1% ist aber auch im Zusammenhang mit dem Anstieg weitere Spurengase in Verbindung zu setzen, da das für die Methan-Oxidation relevante Hydroxyl-Radikal auch bei anderen Spurenstoffreaktionen beteiligt ist und dabei sozusagen verbraucht wird und das Potential eines Methan-Abbaus mindert [ROEDEL, 2000, Seite 391]. Die steuernde Größe des jahreszeitlichen Verlaufs der Methan-Konzentrationen durch das Hydroxyl-Radikal wird wie für Kohlenmonoxid an der Station Cape Grim in Australien besonders deutlich [WMO WDCGG NO.25 DATA REPORT, 2001]. Dieser typische Jahresgang ist an der Station Zugspitze durch die geringe Datenverfügbarkeit in Abb. 3-4 nur bedingt erkennbar. Insbesondere der Monat September 1996 zeigt im Jahresverlauf relativ hohe Werte und stört das Erkennen des typischen Jahresganges. Im Zusammenhang mit der Verbrennung fossiler Brennstoffe ist eine Erklärung über die wetterlagenbedingten Temperaturverhältnisse im Jahr 1996 zu finden. Der September war vergleichsweise kühl und der Januar mehr durch milde Wetterbedingungen gekennzeichnet.

Der Mittelwert an der Station Zugspitze liegt für 1996 mit 1814,19 ppbv und einem Median von 1810,10 ppbv auf vergleichsweise ähnlichem Niveau wie für die Nordhemisphäre angegeben. Für einen Vergleich ist der Messwertausfall in den Monaten Juli bis Oktober der Methan-Zeitreihe für 1996 zu berücksichtigen (vgl. Abb. 3-3), der mit ca. 50% in Monaten mit typischerweise niedrigeren Konzentration in der Mittelwertbildung zu einem insgesamt höheren Mittel führt.

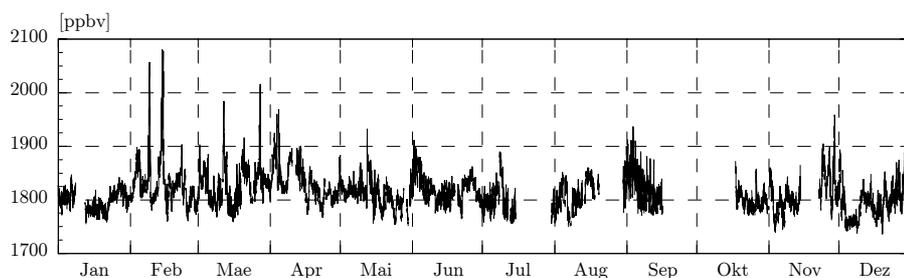
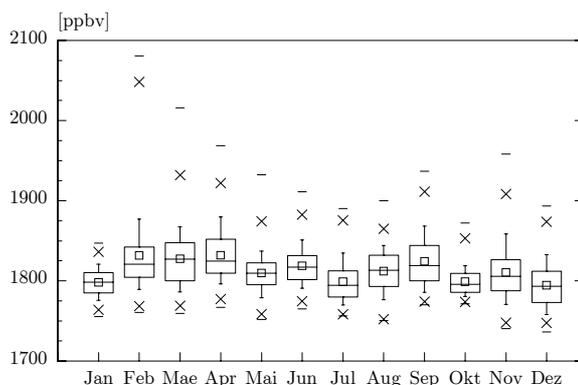


Abb. 3-3 Methan Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. 3-4 Methan  
Boxplots für 1996

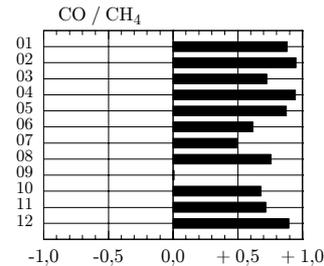
Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.



Die Schwankungen im Konzentrationsverlauf von Methan (vgl. Abb. 3-4) sind insgesamt im Zusammenhang mit der hohen positiven Korrelation mit Kohlenmonoxid zu betrachten. Beispielsweise ist die erwähnte Singularität der hohen Kohlenmonoxid-Episode im Februar 1996 auch in der Methan-Messreihe registriert (vgl. Abb. 3-1 sowie Abb. 3-3). In den Winter- und Frühjahr-Monaten ist der Zusammenhang mit Kohlenmonoxid mit einem Korrelationskoeffizienten von 0,9 maximal und in den Sommermonaten mit einem Koeffizienten von 0,5 -0,8 schwächer ausgeprägt.

Abb. 3-5 Methan  
Korrelationskoeffizienten mit CO,  
1996

Korrelationskoeffizienten nach Spearman. Zu berücksichtigen ist der Messwertausfall. Die Datenverfügbarkeit beträgt 43% im Juli, 50% im August, 46% im September sowie 40% im Oktober.



Neben dem Einfluss bodennaher Luftmassen durch anthropogene Emissionsquellen sind bei der Betrachtung von erhöhten Methan-Werten an der Station zusätzlich die natürlichen Quellen mit Feuchtgebieten und die der Viehwirtschaft mit zu berücksichtigen. Diese für Methan typischen Quellen führen vor allem in den Sommermonaten zu einer Minderung des Zusammenhangs mit Kohlenmonoxid als Tracer für bodennah anthropogen beeinflusste Luftmassen. Hohe Methan-Konzentrationen an der Station geben aufgrund der hohen atmosphärischen Verweilzeit und des jährlichen Anstiegs der Konzentrationen jedoch nur bedingt Aufschluss über einen Einfluss von bodennahen Luftschichten. Bei gleichzeitigem Auftreten mit hohen Konzentrationen von Kohlenmonoxid sind die Methan-Mischungsverhältnisse an der Station unter Einbezug der hohen Korrelation aufgrund ihrer gemeinsamen Quelle mit der Verbrennung fossiler Brennstoffe jedoch als weiterer Indikator zur Identifikation von bodennah beeinflussten Luftmassen zu bewerten.

### 3.3 Kohlendioxid

Neben Wasserdampf ist Kohlendioxid das atmosphärische Spurengas mit der höchsten Konzentration. Die Menge des in der Atmosphäre befindlichen Kohlendioxids weist jedoch nur einen kleinen Anteil des gesamten in den Kreislauf involvierten Kohlenstoffs auf und wird durch das Wechselspiel mit den anderen Reservoiren der Biosphäre und Ozeane bestimmt.

Die mittlere Volumen-Konzentration von Kohlendioxid in der Atmosphäre zeigt einen säkularen Anstieg -über die letzten 10 Jahre gemittelt- von 1,5 ppmv/a auf und liegt im Jahr 1998 bei 367 ppmv [EMEIS, 2000, Seite 157]. Konzentrationsschwankungen mit einem Wertebereich zwischen 200 und 300 ppmv sind im Zusammenhang mit der Klimavariabilität über eine positive Korrelation der Temperatur in Untersuchungen von Eisbohrkernen der Antarktis festgestellt worden [BARNOLA ET AL., 1987]. Der Anstieg der letzten 200 Jahre von etwa 280 ppmv auf das derzeitige Niveau ist im wesentlichen auf die Verbrennung fossiler Brennstoffe, die Zementproduktion sowie Waldrodung oder vergleichbare Änderungen der Bodennutzung mit Freisetzung von rezentem biogenen Kohlenstoff zurückzuführen [KEELING, 1983]. Das unausgeglichene Kohlendioxid-Budget zeigt Tab. 3-3 mit Abschätzung der jährlichen Quellen und Senken.

Zu den natürlichen Quellen und Senken zählt neben den Ozeanen als passiver Speicher die pflanzliche Biosphäre, die mit der Photosynthese von Kohlehydraten Kohlendioxid verbrauchen und durch Pflanzen- und Bodenatmung Kohlendioxid wiederum an die Atmosphäre abgeben. Jahres- und tageszeitliche Schwankungen der Konzentrationen sind durch diesen biologischen Rhythmus bedingt und liegen für den Jahresgang bei etwa  $\pm 10$  ppmv. Die Amplitude der Tagesgänge mit einem Minimum am Nachmittag schwankt in Abhängigkeit von Pflanzenwachstum sowie der Sonneneinstrahlung und kann Variationen der Kohlendioxid-Konzentrationen von  $\pm 50$  ppmv in Bodennähe bedingen. Die Amplitude der jahreszeitlichen Schwankungen nimmt mit der Höhe ab und liegt an der 3397 m hohen Station Mauna Loa bei etwa  $\pm 3$  ppmv [ROEDEL, 2000, Seite 355].

Tab. 3-3 Globales Kohlendioxid-Budget

Quellen	CO <sub>2</sub> (Gt(C)/a)
Fossile Brennstoff-Verbrennung, Zementproduktion	5,5 ± 0,5
Waldrodung, Umwandlung von Landnutzung	1,6 ± 1,0
Senken	CO <sub>2</sub> (Gt(C)/a)
Aufnahme durch Ozeane	2,0 ± 0,8
Wiederaufforstung	0,5 ± 0,5
Abgabe in die Atmosphäre	3,2 ± 0,2
nach [IPPC, 1995]	

An der Mess-Station Zugspitze entspricht die mittlere Konzentration von Kohlendioxid mit einem Arithmetischen Mittel von 361,37 ppmv für 1996 der zuvor aufgeführten atmosphärischen Volumen-Konzentration. Vergleichsweise beträgt das Jahresmittel 1996 an der Station Mauna Loa 362,40 ppmv [WMO WDCGG No.23 DATA REPORT, 2000]. Der Jahresgang für Kohlendioxid ist auch in der Messreihe an der Zugspitze verzeichnet (vgl. Abb. 3-6). Mit dem Einsetzen der Pflanzen-Wachstumsphase ab April beginnt eine Abnahme des Konzentrationsniveaus, das im Sommer ein Minimum erreicht und bis zum Frühjahr wiederum ansteigt. Mit mittleren monatlichen Konzentrationen von 355 ppmv im August und 366 ppmv im Frühjahr (März, April) fällt die jahreszeitliche Schwankungsbreite an der Zugspitze mit etwa  $\pm 6$  ppmv im Gegensatz zur höher gelegenen Station Mauna Loa etwas stärker aus. Zusätzlich ist der Einfluss der Landbiosphäre aufgrund der kontinentalen Lage an der Station Zugspitze stärker ausgeprägt und führt zu einem stärker ausgeprägten Minimum in den wachstums- und strahlungsstarken Monaten. Abb. 3-7 verdeutlicht den Einfluss von relativ niedrigen Kohlendioxid-Konzentrationen über die Lageverteilung der Messwerte, die für die Monate Juni und Juli einen im Vergleich zum Arithmetischen Mittel niedriger liegenden Median zeigen.

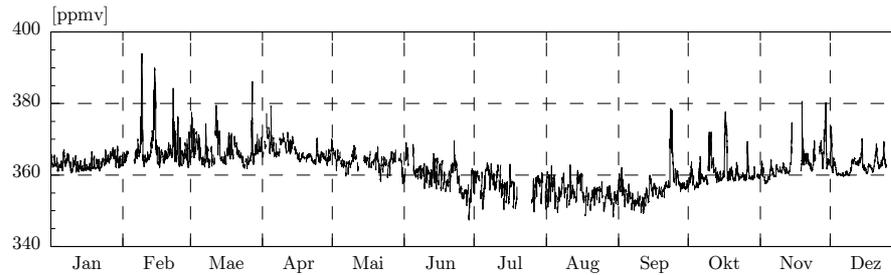
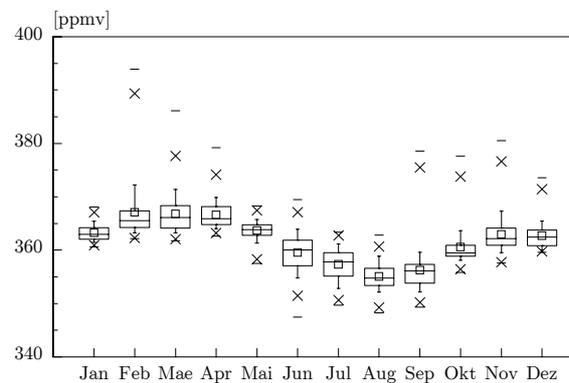


Abb. 3-6 Kohlendioxid Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. 3-7 Kohlendioxid Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.



Daneben beeinflussen insbesondere hohe Messwerte in den Monaten September bis April -mit Ausnahme von Januar- den Mittelwert und damit auch die jahreszeitliche Variationsbreite mit starken Schwankungen zu hohen Konzentrationen. Der Herantransport von bodennahen Luftmassen ist hier wiederum mit höheren Konzentrationsänderungen an der Station verbunden und auf die jahreszeitlich bedingte Verbrennung fossiler Brennstoffe in Bodennähe zurückzuführen. Wie im vorherigen Kapitel 3.2 erwähnt, führen die relativ milden Temperaturverhältnisse im Januar 1996 direkt zu einer weniger stark ausgeprägten Beeinflussung durch bodennahe Emissionen.

Entsprechend dem biologischem Rhythmus ist der Tagesgang nur für die durch Wachstumsphasen und Strahlung charakterisierten Monate März bis September deutlich ausgeprägt und zeigt für August mit Minimum am Nachmittag die höchsten mittleren Schwankungen von  $\pm 2,5$  ppmv im mittleren Tagesgang (vgl. Anhang Abb. A.4-4, Seite 189). Die pflanzliche Biosphäre mit ihrer Photosynthese bestimmt die atmosphärische Konzentration in Bodennähe vor allem in den Sommermonaten und führt bei einem Herantransport an die Station in der Regel nicht zu hohen Kon-

zentrationsänderungen. Ein tageszeitlich bedingter konvektiver Herantransport ist unter Umständen sogar mit einer Änderung zu niedrigen Konzentrations-Werten verbunden.

Hingegen ist die Kohlendioxid-Konzentration an der Station im Winter maßgeblich durch die Quelle mit Verbrennung fossiler Brennstoffe bestimmt. Das gleichzeitige Auftreten hoher Kohlendioxid-Konzentrationen mit denen von Methan und Kohlenmonoxid wird durch die hohe positive Korrelation deutlich, die ausschließlich in den entsprechenden Monaten besteht (vgl. Abb. 3-8-a, -b). Mit einem schwach negativen Korrelationskoeffizienten zwischen Kohlendioxid und Stickoxiden  $\text{NO}_y$  (vgl. Abb. 3-8-c) ist für diesen Zusammenhang in den Sommermonaten nahezu eine Umkehrung festzustellen, die die erwähnte biologisch bedingte Beeinflussung von Kohlendioxid unterstreicht. Ein Herantransport von bodennah beeinflussten Luftmassen ist im Gegensatz zu Kohlenmonoxid und Methan im wesentlichen nur im Winter mit Konzentrationsänderungen zu hohen Werten verbunden.

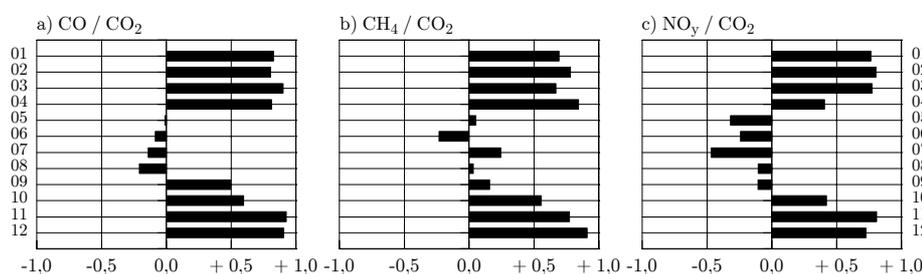


Abb. 3-8 Kohlendioxid Korrelationskoeffizienten mit CO, CH<sub>4</sub> und NO<sub>y</sub>, 1996

### 3.4 Stickoxide

Stickstoff wird durch mehrere natürliche und künstliche Vorgänge der Luft ständig entnommen und wieder zugeführt. Die Gesamtheit dieser Vorgänge ergibt den sogenannten Stickstoffzyklus. Der atmosphärische Stickstoff ( $\text{N}_2$ ) ist mit 78,09 Volumenprozent der Bestandteil mit der höchsten Konzentration in der Atmosphäre und ist chemisch sehr stabil. Für die Atmosphärenchemie bedeutend sind jedoch die geringen und schwankenden Konzentrationen der Stickstoff enthaltenden Verbindungen. Dies sind neben Distickstoffoxid ( $\text{N}_2\text{O}$ ), Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ) und Ammoniak ( $\text{NH}_3$ ), das Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid, die insbesondere aufgrund ihrer Teilnahme an katalytischen Prozessen für die Chemie des Ozons eine Schlüsselrolle einnehmen. Mit ihrem ungepaarten Elektron besitzen die Stickoxide ( $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}_3$ ) Radikalcharakter und wirken reaktionsbeschleunigend oder reaktionshemmend luftchemisch insgesamt sehr vielfältig. Stickstoffmonoxid wird von natürlichen wie anthropogenen Quellen emittiert. Stickstoffdioxid hingegen entsteht nur in geringen Mengen bei Verbrennungsprozessen und wird vor allem durch die Oxidation von Stickstoffmonoxid

gebildet. Die Salpetersäure ist wiederum ein Oxidationsprodukt von Stickstoffdioxid in der Atmosphäre [SEINFELD, PANDIS, 1998, Seite 67 ff], [MORTIMER, 1987, Seite 396 ff].

Die wichtigste Quelle der natürlichen Stickoxide in der Stratosphäre ist die Oxidation von Distickstoffoxid durch angeregten atomaren Sauerstoff. Daneben wird Stickstoffmonoxid in der oberen Stratosphäre durch ionisierende Partikelstrahlung von der Sonne und in der unteren Stratosphäre durch galaktische kosmische Strahlung produziert. Der stratosphärische Transport von Stickoxiden in die untere Troposphäre nimmt insgesamt aber nur einen geringen Anteil an der troposphärischen Konzentration von Stickoxiden ein [ROEDEL, 2000, Seite 375].

In der Troposphäre werden Stickoxide durch eine Reihe natürlicher und anthropogener Prozesse gebildet. Zu den natürlichen Quellen gehören die Stickstoffmonoxid-Bildung durch Blitzentladungen über die Reaktion von Luftstickstoff mit Luftsauerstoff, die Oxidation von biogen erzeugten Ammoniak durch Hydroxyl-Radikale sowie das direkte Ausgasen von Stickstoffmonoxid und -dioxid aus bestimmten Bodenarten und in geringen Konzentrationen aus dem Ozean. Eine Übersicht der geschätzten Werte für die globale Emission von Stickoxiden der letzten Dekade zeigt Tab. 3-4. Die weitaus wichtigste Quelle sind anthropogene Verbrennungsprozesse, bei denen durch Oxidation des in Brennstoff und Verbrennungsluft enthaltenen Stickstoffs neben geringen Mengen Stickstoffdioxid überwiegend Stickstoffmonoxid emittiert wird und anschließend atmosphärisch zu Stickstoffdioxid oxidiert [FABIAN, 1992, Seite 76 ff].

Tab. 3-4 Globale Emissionen von Stickoxiden  $\text{NO}_x$  in der Troposphäre

Quellen	Geschätzte Werte (Tg(N)/a)
Fossile Brennstoff-Verbrennung	24
Abgabe durch Boden (natürlich und anthropogen)	12
Biomassen- Verbrennung	8
Blitzentladungen	5
Ammoniak-Oxidation	3
Luftverkehrmission	0,5
Transport aus der Stratosphäre	0,1 (Total: 0,6 $\text{NO}_y$ )
nach [IPPC, 1995]	

Der wichtigste Umwandlungsprozess für Stickstoffmonoxid in der Atmosphäre ist die Oxidation durch Ozon mit Bildung von Stickstoffdioxid und Sauerstoff. Diese Reaktion läuft relativ schnell ab und führt ohne Lichteinwirkung wie zum Beispiel nachts zum Ozonabbau, der im Gegensatz zu quellfernen Gebieten insbesondere bei ständiger Nachlieferung von Stickstoffmonoxid bedeutend ist. Unter Sonnenlicht wird wiederum das Stickstoffdioxid durch Photolyse in Stickstoffmonoxid und Ozon zerlegt. Abbau und Erzeugung und somit die Konzentration von Ozon werden durch das Verhältnis von Stickstoffdioxid zu Stickstoffmonoxid und der wirksamen Lichtintensität

bestimmt. Insgesamt entsteht bei ständiger Stickstoffmonoxid-Nachlieferung und starker Sonneneinstrahlung nur wenig Ozon, sofern nicht andere Spurengase eine Oxidation des Stickstoffmonoxids bewirken und auf diese Weise das Stickstoffdioxid/Stickstoffmonoxid Verhältnis größer wird [BAUMBACH, 1992, Seite 81 ff].

Die Oxidation von Stickstoffdioxid mit der Reaktion von Stickstoffdioxid und Ozon kann nachts zu messbaren Konzentrationen von Distickstoffpentoxid ( $N_2O_5$ , Anhydrid der Salpetersäure) und Stickstofftrioxid ( $NO_3$ ) führen, wobei am Tage die Stickstofftrioxid-Bildung durch die Photolyse des Stickstofftrioxids in einer schnellen Reaktion mit Stickstoffmonoxid wieder rückgängig gemacht. Die bedeutende Weiterreaktion des Stickstoffdioxids erfolgt mit Hydroxyl-Radikalen. Die dabei entstehende gasförmige Salpetersäure ist in der bodennahen Atmosphäre stabil sowie wasserlöslich und wird durch Auswaschung oder trockene Deposition aus der Atmosphäre entfernt. Stickstoffdioxid kann aus diesem Grund nicht über so große Entfernungen transportiert werden wie beispielsweise Schwefeldioxid ( $SO_2$ ) [BAUMBACH, 1992, Seite 89 ff].

Die Überführung von Stickstoffmonoxid über Stickstoffdioxid in Salpetersäure und anschließender Auswaschung mit dem Niederschlag läuft vergleichsweise schnell ab. Die atmosphärische Verweilzeit von Stickstoffmonoxid liegt im Bereich von Stunden, für Stickstoffdioxid bei etwa einem Tag und für Salpetersäure mit Entfernung aus der Atmosphäre über nasse oder trockene Deposition typischerweise bei einer Woche. Im Gegensatz zu Kohlenmonoxid mit relativ hoher atmosphärischer Verweilzeit wird das Gewicht der anthropogenen Quellen von Stickoxiden an dem hemisphärischen oder globalen  $NO_x$ -Budget insgesamt als geringfügig bewertet. Die kurze atmosphärische Verweilzeit der Stickoxide mit Freisetzung in anthropogen geprägten Gebieten verhindert vielmehr einen Transport in entfernte Räume und damit eine Beeinflussung der Hintergrundkonzentration von Ozon. Die Konzentrationen von Stickoxiden und insbesondere von dem kurzlebigen Stickstoffmonoxid treten aber nur lokal in Erscheinung. Die Belastung von Stickstoffdioxid liegt an den Mess-Stellen des Umweltbundesamtes im Jahresmittel großräumig mit 4-5 ppbv auf niedrigem Niveau, abseits von verkehrsreichen Räumen unter 5 ppbv und in den Ballungsräumen bei 15-31 ppbv. Die Wertespanne des Mischungsverhältnisses in der unteren Troposphäre von Stickoxiden  $NO_x$  als Summe von Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid zeigt Tab. 3-5. In entfernten maritimen Räumen beträgt die Konzentration 0,02 bis 0,04 ppbv, in tropischen Wäldern aufgrund der biogenen  $NO_x$  Emissionen vom Boden zwischen 0,02 und 0,08 ppbv, in ländlichen Gebieten zwischen 0,2 und 10 ppbv und in städtischen zwischen 10 und 1000 ppbv [FABIAN, 1992, Seite 77 ff], [UMWELTBUNDESAMT, 2001, Seite 153], [SEINFELD, PANDIS, 1998, Seite 259 ff].

Tab. 3-5 Konzentrationen von Stickoxiden  $NO_x$  in Bodennähe

Region	$NO_x$ [ppbv]
Urban-Suburban	10-1000
Rural	0,2-10
Entfernte tropische Wälder	0,02-0,08
Entfernte maritime Räume	0,02-0,04
nach [NATIONAL RESEARCH COUNCIL, 1991]	

Während  $\text{NO}_x$  die Summe von Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid beschreibt, enthält die Größe  $\text{NO}_y$  die Summe aller Stickstoffverbindungen mit einer Oxidationszahl größer eins. Neben  $\text{NO}_x$  sind dies alle Komponenten, die Produkte der atmosphärischen Oxidation von  $\text{NO}_x$  sind. Hierzu zählen vor allem Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ), Salpetrige Säure ( $\text{HNO}_2$ ), Stickstofftrioxid ( $\text{NO}_3$ ), Distickstoffpentoxid, ( $\text{N}_2\text{O}_5$ ), Peroxysalpetersäure ( $\text{HNO}_4$ ) und Peroxyacetylnitrat (PAN). Salpetersäure ist aufgrund seiner Wasserlöslichkeit das bedeutende Produkt von  $\text{NO}_x$  in der Atmosphäre. Das aggressive Reaktionsprodukt Peroxyacetylnitrat ist neben Ozon wichtigster Photooxidant. Die Messung von  $\text{NO}_y$  in der Atmosphäre beschreibt als Größe die totalen oxidierten Stickstoff-Inhalte und kann auch zur Altersbestimmung von Luftmassen herangezogen werden. Die Umwandlungsdauer von  $\text{NO}_x$  in andere  $\text{NO}_y$  Spezies beträgt 4 bis 20 Stunden. Das Verhältnis zwischen  $\text{NO}_x$  und  $\text{NO}_y$  reflektiert die chemischen Prozesse in einer Luftmasse, die nach der Injizierung mit  $\text{NO}_x$  auftreten und stattgefunden haben. In urbanen Räumen dominiert der Anteil an  $\text{NO}_y$  mit  $\text{NO}_x$ , in entfernten Regionen hingegen ist der Anteil mit  $\text{NO}_x$  kleiner und Komponenten mit Oxidationszahlen größer zwei stellen den dominierenden Anteil an  $\text{NO}_y$ . An der entfernt maritim gelegenen Station Mauna Loa beträgt der Anteil von  $\text{NO}_x$  an  $\text{NO}_y$  beispielsweise nur 15%, an der in gleicher Höhe aber isoliert liegenden Inland-Station Niwet Rigde in den westlichen Vereinigten Staaten liegt der Anteil bei 32%. An bodennahen ländlichen Stationen liegt der Anteil von  $\text{NO}_x$  an  $\text{NO}_y$  mit ca. 60% generell höher. Der üppigste  $\text{NO}_y$ - Bestandteil in der freien entfernten Troposphäre ist PAN [SEINFELD, PANDIS, 1998, Seite 71 ff].

Die Messung von Stickoxiden an der Station Zugspitze liegen mit wenigen ppbv zum großen Teil im Bereich der Nachweisgrenze. Für  $\text{NO}_x$  liegen die Messungen im unteren Bereich des für ländliche Regionen angegebenen Wertebereiches von 0,2 bis 10 ppbv (vgl Tab. 3-5). Der Jahresdurchschnitt für 1996 beträgt für Stickstoffmonoxid 0,10 ppbv, für die Summe von Stickstoffmonoxid und -dioxid als  $\text{NO}_x$  0,52 ppbv und für alle Stickstoffverbindungen  $\text{NO}_y$  1,49 ppbv. Insgesamt geben die Mischungsverhältnisse die Charakteristik des Mess-Standortes wieder, der quellenfern einen lokalen Einfluss aus der Grundschicht im wesentlichen durch einen Herantransport entsprechender Luftmassen erfährt. Stickstoffmonoxide werden an der Zugspitze aufgrund ihrer kurzen atmosphärischen Verweilzeit nur in sehr geringen Konzentrationen registriert und sind mit Messung an der Nachweisgrenze nur bedingt auswertbar. Bei den Stickoxiden  $\text{NO}_x$  dominieren die durch Oxidation des Stickstoffmonoxid in wenigen Stunden entstehenden Stickstoffdioxiden. Der mittlere Anteil von  $\text{NO}_x$  an dem Mischungsverhältnis von  $\text{NO}_y$  beträgt etwa 35% und zeigt eine für entfernte Stationen typische hohe Konzentration von Oxidationsprodukten des Stickstoffdioxids (vgl. Niwet Ridge mit 32%). Dieser niedrige Anteil von  $\text{NO}_x$  an  $\text{NO}_y$ -Konzentrationen gibt einen deutlichen Hinweis auf die Bedeutung eines advektiven Herantransport von Luftmassen mit einem in weiterer Entfernung stattgefundenen Vertikaltransports, der etwa 1 bis wenige Tage zurückliegt.

Ein Jahresgang der Stickoxide ist in den Messreihen nicht erkennbar. Auffällig ist jedoch die hohe Schwankungsbreite der Messwerte in der Jahreszeit mit niedrigen Temperaturen von Oktober bis März. Diese hohen Peaks von Stickoxiden mit Werten von maximal 5,71 ppbv  $\text{NO}$ , 25,48 ppbv  $\text{NO}_x$  und 27,69 ppbv  $\text{NO}_y$  sind zusammen mit den für Verbrennungsprozesse typischen Spurengasen (Kohlenmonoxid, Methan und Kohlendioxid) auf einen Herantransport von Luftmassen mit bodennah freigesetzten Emissionen zurückzuführen. In den Wintermonaten ist eine derartige Beeinflussung zum Teil noch in dem 90%-Perzentil erkennbar (vgl. Whisker in Abb. 3-10), so dass

hier mindestens 10 Prozent der Messungen einen Einfluss aus der Grundschicht beinhalten können. Entsprechend liegen das monatliche Arithmetische Mittel wie der Median für die Stickoxide  $\text{NO}_x$  in der kalten Jahreszeit generell höher als im Sommer. Der vergleichsweise milde Monat Januar zeigt wiederum ähnlich den vorher diskutierten Messreihen nur eine geringe Variationsbreite in den Messungen. Die Messungen von  $\text{NO}_y$  zeigen ebenfalls hohe Schwankungen in den Wintermonaten, jedoch liegen die Monatsmittel im Sommer höher als im Winter. Mit der Annahme eines hohen Anteils von Peroxyacetylnitrat (PAN) an den weiteren Oxidationsprodukten von  $\text{NO}_x$  sind hierfür photochemische Vorgänge verantwortlich, die unter dem erhöhten Strahlungsangebot im Sommer gebildet werden.

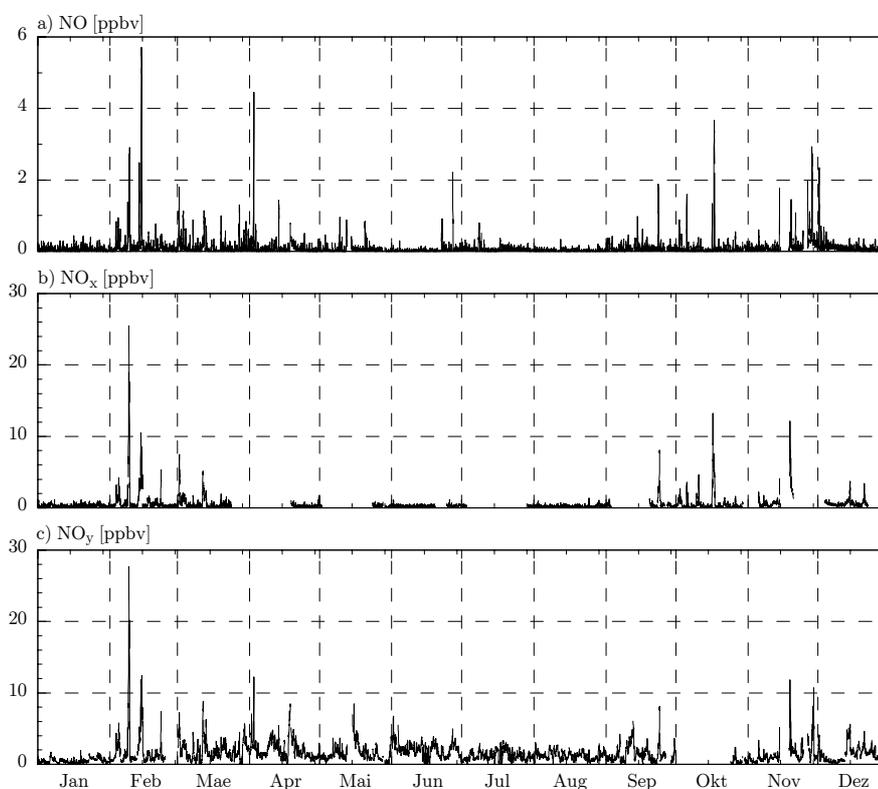


Abb. 3-9 Stickoxide Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Für Stickstoffmonoxid und  $\text{NO}_y$  sind schwache Tagesgänge im Bereich von wenigen Zehntel ppbv erkennbar (vgl. Anhang Abb. A.5-4, Abb. A.5-7, Abb. A.5-10, Seite 197 ff), die im wesentlichen auf photochemische Vorgänge zurückzuführen sind. Der schwach ausgeprägte winterliche Tagesgang für Stickstoffmonoxid kann unter Vorbehalt der Messgenauigkeit über den photochemischen Vorgang der Photolyse von Stickstoffdioxid erklärt werden, der im Winter ein höheres Mischungsverhältnis aufzeigt. Die höheren Konzentrationen von Stickstoffdioxid im Winter resultieren einer-

seits aus der höheren bodennahen Emission sowie andererseits aus der verminderten weiteren Oxidation mit dem zu dieser Jahreszeit mit niedriger Konzentration vorliegenden Hydroxyl-Radikal.

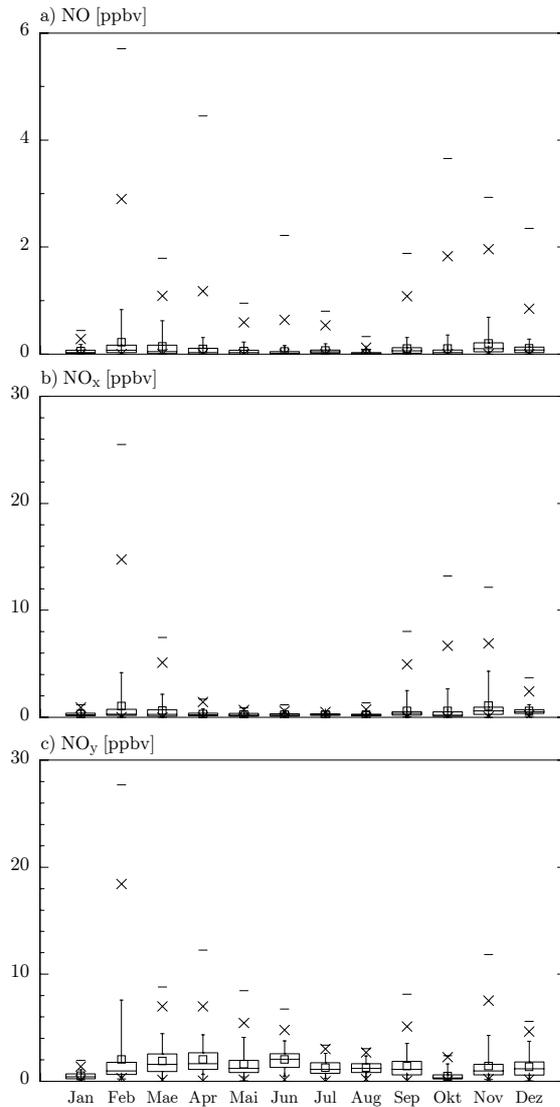


Abb. 3-10 Stickoxide  
Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

Für die niedrigen Stickstoffmonoxid-Konzentrationen ist keine deutliche Korrelation mit anderen Messgrößen feststellbar. Ein schwacher Zusammenhang mit NO<sub>x</sub> ist auf den Bestandteil von NO in der Summengröße selbst zurückzuführen, aber aufgrund des höheren Anteils mit Stickstoffdioxid an NO<sub>x</sub> nicht sehr ausgeprägt (vgl. Anhang Abb. A.5-5, Seite 199). Ein Zusammenhang mit dem Tracer Kohlenmonoxid für bodennah beeinflusste Luftmassen ist für Stickoxide NO<sub>x</sub> in einigen Wintermonaten

über Korrelationskoeffizienten zwischen 0,5 und 0,7 zu erkennen (vgl. Tab. A.5-6, Seite 203). Dies ist auf den Bestandteil von Stickstoffdioxid zurückzuführen, der jedoch in dem Korrelationskoeffizienten mit  $\text{NO}_x$  nicht allein ausgewiesen wird und damit keinen deutlicheren Zusammenhang zeigt. Der monatliche Korrelationskoeffizient für Stickoxide mit Ozon ist in einigen Wintermonaten mit einem Koeffizienten von 0,6 schwach negativ und kann die vorherige Aussage zum winterlichen Tagesgang von Stickstoffmonoxid durch Photolyse von Stickstoffdioxid stützen.

Für die radikalen Stickstoffverbindungen  $\text{NO}_y$  sind deutlichere Zusammenhänge erkennbar (vgl. Abb. 3-11). Ein relativ enger Zusammenhang besteht mit den Tracern Kohlenmonoxid und Natürliche Radioaktivität, wobei letztere mit ihrer bodennahen Emission ebenfalls einen Herantransport bodennaher Luftmassen an die Station charakterisieren. Die Messungen von  $\text{NO}_y$  kennzeichnen damit auch einen Einfluss aus der Grundschicht und stehen allgemein für bodennah beeinflusste Luftmassen. Aufgrund der Bestandteile von  $\text{NO}_x$  in der Messgröße  $\text{NO}_y$  selbst besteht mit Ausnahme der Sommermonate ein direkter Zusammenhang zwischen diesen Messgrößen. Im Sommer hingegen treten verstärkt photochemische Prozesse auf, die die Konzentration von  $\text{NO}_y$  bestimmen. Das erhöhte sommerliche Mischungsverhältnis von  $\text{NO}_y$  beinhaltet dann einen höheren Anteil von Stickstoffverbindungen mit Oxidationszahlen größer zwei wie beispielsweise den Photo-Oxidanten PAN. Der geringe Anteil von  $\text{NO}_x$  an  $\text{NO}_y$  wird durch den wesentlich kleineren Korrelationskoeffizienten in den Sommermonaten deutlich. Daneben besteht für diese Monate ein schwacher positiver Zusammenhang mit Ozon, was auf die Bedeutung der Photochemie für das  $\text{NO}_y$ -Mischungsverhältnis im Sommer hinweist.

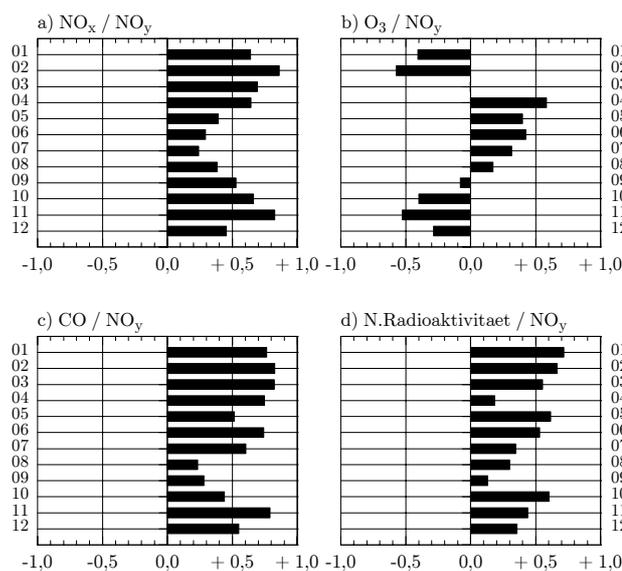


Abb. 3-11  $\text{NO}_y$  Korrelationskoeffizienten mit  $\text{NO}_x$ ,  $\text{O}_3$ , CO und Nat.Radioaktivität, 1996

Zusammenfassend sind hohe Messwerte von Stickoxiden auf einen bodennahen Einfluss zurückzuführen, die mit anderen Tracern für beeinflusste Luftmassen zusammen auftreten. Für die Entwicklung von Filterfunktionen sind Stickoxide aufgrund der umfangreichen photochemischen Prozesse insgesamt jedoch nur eingeschränkt verwendbar.

### 3.5 Ozon

Ozon ist einerseits ein natürlicher Bestandteil der Atmosphäre und unterliegt andererseits durch anthropogene Einflüsse starken Konzentrationsschwankungen. In Höhen oberhalb von 20 bis 25 km wird Ozon fast ausschließlich durch die photolytische Spaltung des molekularen Sauerstoffs gebildet und bildet in der Stratosphäre die sogenannte Ozonschicht, die für die Absorption biologisch schädlicher ultravioletter Strahlung eine zentrale Rolle spielt. Zu den Abbaumechanismen von Ozon in der Stratosphäre zählen neben der photolytischen Spaltung insbesondere Abbaureaktionen in Form von katalytischen Prozessen, in denen Stickoxid, atomarer Wasserstoff, das Hydroxyl-Radikal und das atomare Chlor als Katalysatoren fungieren. Eine Übersicht dieser Abbaumechanismen der Gasphasenchemie sowie die Erläuterung der Bedeutung von heterogenen Reaktionen an Aerosolpartikeln gibt [FABIAN, 1992, Seite 26 ff].

Die Obergrenze der für den Strahlungshaushalt relevanten Ozonschicht liegt bei etwa 50 bis 55 km Höhe und ist auf den schnellen photochemischen Abbau in größeren Höhen zurückzuführen. Die Verteilung des Ozon-Mischungsverhältnisses zeigt ein ausgeprägtes Vertikalprofil, das entsprechend der Strahlungsverhältnisse in Abhängigkeit von Jahreszeit und Breitengrad variiert. Die höchsten Volumenverhältnisse mit ca. 10 ppmv befinden sich in der mittleren Stratosphäre der tropischen und subtropischen Breiten in Höhen von 30-35 km. Dieses Mischungsverhältnis fällt von der Stratosphäre bis zur Tropopause stark ab. Über dynamische Transportprozesse wird Ozon von der Stratosphäre in die Troposphäre verfrachtet. Daneben wird durch Meridionalzirkulation Ozon von den Tropen in die höheren Breiten verfrachtet und führt vor allem im Winter zu der beobachteten relativ geringen Abnahme des Mischungsverhältnisses [ROEDEL, 2000, Seite 373]. Unterhalb der Tropopause in der freien Troposphäre bei etwa 12 km Höhe beträgt das Mischungsverhältnis in Mitteleuropa 50-70 ppbv. Diese Konzentration wird als natürliches Niveau angesehen, welches auf stratosphärische Mischungsverhältnisse zurückzuführen ist [BAUMBACH, 1992, Seite 92]. Der markanter Transport stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre während Intrusionen ist hingegen mit einer deutlichen Änderungen der Ozon-Konzentration verbunden, der an Bergstationen besonders deutlich ausgeprägt ist. Daneben wird mit dem Auftreten von Intrusionen im Spätwinter und Frühling in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre ein Frühlingsmaximum in der unteren Stratosphäre beobachtet [MONK, 2000].

Das Ozon in der Troposphäre zeigt Volumenanteile zwischen 10 und 100 ppbv und hält einen Anteil von ca. 10% an dem gesamten atmosphärischen Ozon. Wie in Kapitel 2.2 Hydroxyl-Radikale, Verweil- und Durchmischungszeit erwähnt, ist die Rolle des troposphärischen Ozons aufgrund der Initialwirkung für die Bildung freier Radikale eine Grundvoraussetzung für die Selbstreinigung der Atmosphäre.

Die mittleren Ozonkonzentrationen liegen über Mitteleuropa in nicht verunreinigten bodennahen Luftschichten zwischen 20 und 40 ppbv und aufgrund der intensiven Photochemie im Sommer zwischen 40 und 60 ppbv [BAUMBACH, 1992, Seite 92].

Der Ozonabbau in Bodennähe durch Deposition über Wasserflächen sowie über Wald- und Wiesenflächen führt zu einem leichten Anstieg der Konzentrationen mit der Höhe, die bei 2 bis 3 km Höhe lokale Maximalwerte erreichen, die etwa ein Drittel höher liegen als die Bodenwerte [ROEDEL, 2000, Seite 393]. Die mittleren Konzentrationen an der Zugspitze liegen im Jahresdurchschnitt 1996 bei 54,49 ppbv mit einem Minimum von 39,69 ppbv im November und einem Maximum von 66,61 ppbv im Juni. Im Vergleich zu Bodenstationen liegen die mittleren Konzentrationen an der Zugspitze höher, wobei die Variabilität insgesamt kleiner ausfällt.

In der unteren Stratosphäre mit Höhen von 18 bis 20 km und der Troposphäre ist aufgrund des Fehlens der für die Ozon-Synthese notwendigen kurzwelligen Strahlung mit Wellenlängen von weniger als 240 nm eine Ozonproduktion über photolytische Spaltung des molekularen Sauerstoffs nicht möglich. Die troposphärische Ozonproduktion ist auf andere chemische Produktionsmechanismen zurückzuführen, die vor allem im Zusammenhang mit der Chemie des Methans, des Kohlenmonoxids und der Stickoxide stehen und neben dem Transport von Ozon aus der Stratosphäre etwa die Hälfte des gesamten troposphärischen Mischungsverhältnisses darstellen. Die Prozesse laufen über eine Kette von Reaktionen ab, die mit der Oxidation von Kohlenmonoxid durch Hydroxyl-Radikale eingeleitet werden. Hierbei bestimmt das Verhältnis von Stickstoffmonoxid und Ozon eine Produktion hoher NO-Konzentrationen oder einen Abbau von Ozon ab einem kritischen Konzentrationsverhältnis von Stickstoffmonoxid und Ozon [FABIAN, 1992, Seite 75 ff].

Bei bestimmten Wetterlagen mit intensiver Strahlung und relativ hohen Temperaturen treten hohe Ozon-Konzentrationen mit einem ausgeprägten Tagesgang auf, der auf photochemische Reaktionen mit Luftverunreinigungen wie Stickstoffoxiden und Kohlenwasserstoffen zurückzuführen sind. Während in den Nachtstunden das überregional vorhandene Ozon durch Reaktion mit Stickstoffoxiden verbraucht wird, wird tags unter Einwirkung von Sonnenstrahlung aus den Luftverunreinigungen Ozon mit sehr hohen Konzentrationen von über 100 ppbv am Nachmittag produziert. Dieser Tagesgang wird mit der Beeinflussung der Bildung und des Verbrauchs von Ozon im wesentlichen durch die Entfernung zu Schadstoffquellen bestimmt. Die direkte Abhängigkeit der Beeinflussung von Ozonbildung und -verbrauch verdeutlicht [KANTER ET AL., 1982] durch einen Vergleich der Standorte Talstation Garmisch-Partenkirchen (740 m), Wank (1600 m) und Zugspitze (2964 m). Während an der Talstation mit Nähe zu anthropogenen Emissionsquellen ein stark ausgeprägter Tagesgang registriert wird, ist der Einfluss durch photochemische Vorgänge am Wank nur schwach erkennbar und die Zugspitze bleibt nahezu unbeeinflusst. Die Konzentrationen an der Talstation erreichen am Nachmittag Werte, die über denen der Bergstationen Wank und Zugspitze liegen.

Während diese photochemischen Vorgänge an der Zugspitze aufgrund der Entfernung zu Emissionsquellen zu keinen markanten Konzentrationsänderungen am Messstandort führen, sind Schwankungen im Konzentrationsverlauf im wesentlichen in den Zusammenhang mit dem Herantransport von Luftmassen zu setzen. Die Schwankungsbreite der Messreihe an der Zugspitze zeigt Konzentrationsänderungen für hohe wie für niedrige Werte auf und ist insgesamt niedriger als an Bodenstationen. Beispielsweise liegt der höchste Halbstundenwert im Jahr 1996 mit 88,26 ppbv im Juni. Im Jahresverlauf zeigt sich ein Maximum im Juni und ein zweites Maximum im April (vgl. Abb. 3-12, Abb. 3-13).

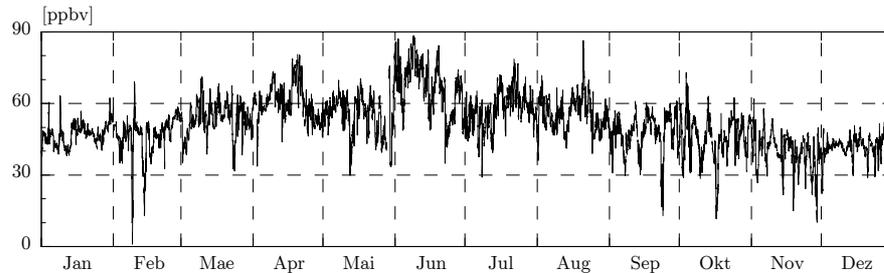
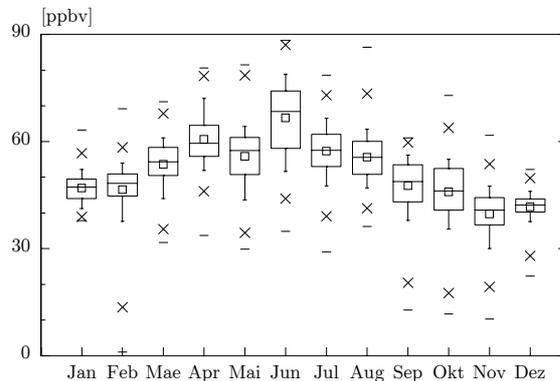


Abb. 3-12 Ozon Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. 3-13 Ozon Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.



Der Einfluss auf die Konzentrationsänderung ist für Ozon differenziert zu betrachten. Ein Einfluss aus der Grundschicht durch Herantransport entsprechender Luftmassen ist eng an die Konzentrationsänderung in den bodennahen Luftschichten gebunden. Während im Winter die Ozon-Konzentrationen in Bodennähe niedriger als an der Station liegen, ist im Sommer bei photochemisch aktiven Wetterlagen in Bodennähe ein höheres Konzentrationsniveau vorhanden. Im Winter ist ein bodennaher Einfluss von Luftmassen generell mit Änderungen zu niedrigen Konzentrationen verbunden. Zusätzlich führt der Herantransport von bodennah beeinflussten Luftmassen in Verbindung mit Stickoxiden zu einem kritischen Stickoxid-Ozon Verhältnis und zu einem leichten Ozonabbau. Insbesondere bei konvektiven tageszeitlich bedingten Vorgängen ist dieser Zusammenhang in den Sommermonaten im Tagesgang mit Minimum am Nachmittag und mittleren Schwankungen von  $\pm 2,5$  ppbv erkennbar (vgl. Anhang Abb. A.6-4, Seite 213). Gleichzeitig findet in den Sommermonaten durch den Herantransport von ozonreicheren Luftmassen aus bodennahen Schichten eine Beeinflussung der Messwerte an der Station statt, die aufgrund von Durchmischungsvorgängen aber weniger stark ausgeprägt sind.

Im Gegensatz dazu treten im Zusammenhang mit Intrusionen hohe Konzentrationen am Mess-Standort durch stratosphärisches Ozon auf, die insbesondere verstärkt im Herbst und Spätwinter/ Frühjahr vorkommen. Die Differenzierung zwischen einem Einfluss durch troposphärisches oder stratosphärisches Ozon ist neben der groben Einteilung nach dem jahreszeitlichen Vorkommen ausschließlich über andere Leitparameter in den Luftmassen möglich. Für bodennahe Luftmassen sind dies im wesentlichen der Tracer Kohlenmonoxid und Natürliche Radioaktivität und für stratosphärische Luftmassen, die geringe Relative Feuchte sowie Beryllium-7. Der Beitrag von Ozonkonzentrationen aufgrund stratosphärischer Intrusionen liegt nach einer Untersuchung von [SCHEEL ET AL., 2000, Seite 43 ff] an der Zugspitze bei ca. 5,5% für den jährlichen Ozon-Beitrag und bei 11,8% für das Winterhalbjahr.

### 3.6 Radionuklide

Die Radioaktivität ist eine Eigenschaft instabiler Atomkerne, die sich ohne äußere Einwirkung umwandeln und dabei eine charakteristische ionisierende Strahlung in Form von Alpha- und Beta-Teilchen sowie Gamma-Quanten aussenden. Aufgrund der Strahlung wird für diese instabilen Atomkerne auch die Bezeichnung Radionuklid verwendet. Allgemein umfasst die Radioaktivität alle ohne äußere Einwirkung stattfindenden Kernumwandlungsprozesse. Die Umwandlung wird als radioaktiver Zerfall bezeichnet und beinhaltet unter spontaner Strahlungsemission und Energieabgabe die Überführung eines radioaktiven Atomkerns aus einem instabilen Zustand in eine stabilere Konfiguration oder Struktur. Bei einer Kernumwandlung kann ein sogenannter Tochterkern entstehen, der selbst wieder instabil ist, weiter zerfällt und eine ganze Umwandlungsreihe von radioaktiven Nukliden entstehen, die mit einem stabilen Nuklid enden [POHLIT, 1992].

Der radioaktive Zerfall wird trotz der Spontanität jeder einzelne Kernumwandlung im statistischen Mittel durch feste zeitliche Änderungsgesetze bestimmt. Die charakteristische Größe hierfür ist die Halbwertszeit mit Angabe der Zeit, nach der die Hälfte der ursprünglichen Menge des radioaktiven Materials durch Zerfall umgewandelt ist. Die Halbwertszeit ist für jedes Radionuklid spezifisch und beträgt je nach Radionuklid nur einige Sekunden bis hin zu Milliarden von Jahren. Angegeben wird die Radioaktivität in der Einheit Becquerel (Bq), mit der das Maß für die Anzahl der Atomkerne eines Radionuklids beschrieben wird, die pro Sekunde zerfallen und dabei ionisierende Strahlung aussenden. Ein weiteres charakteristisches Merkmal einer radioaktiven Substanz ist die freigesetzte Strahlung. Die Alphastrahlung beinhaltet schwere Teilchenstrahlung aus Heliumkernen und einem Folgeprodukt mit niedrigerer Kernladungs- und Massenzahl, die Betastrahlung eine leichte Teilchenstrahlung aus Elektronen oder Positronen und einem Folgeprodukt mit konstanter Massenzahl. Die Gammastrahlung besteht aus einer energiereichen Photonenstrahlung mit Übergang des instabilen Nuklids in einen energetisch niedrigen Zustand. In der Luft wird die Aktivitätskonzentration in  $\text{Bq}/\text{m}^3$  angegeben und beschreibt, wieviele Atome eines bestimmten Radionuklids in einem Kubikmeter Luft pro Sekunde zerfallen. Radionuklide werden üblicherweise über den Namen des Elementes mit zusätzlicher Angabe der Massenzahl als Summe aus der Protonenzahl und der Neutronenzahl deklariert. Dies ist für Isotope eines Elements entscheidend, die bei gleicher Protonenzahl (Ordnungsnummer) und gleichen chemischen Eigenschaften Unterschiede in der Neutronenzahl besitzen und damit differierende Massenzahlen aufweisen [LFU, 1996].

Neben künstlichen Radionukliden existieren eine Reihe von natürlichen radioaktiven Nukliden, die zu den natürlichen Bestandteilen der Umwelt zählen und auf kosmische sowie terrestrische Strahlung durch die vorhandenen Uran- und Thoriumbestandteile und deren Folgeprodukte im Boden zurückzuführen sind. Während natürliche radioaktive Stoffe in der Umwelt permanent vorkommen, stammt künstliche Radioaktivität aus Kernwaffenexplosionen sowie Kernkraftanlagen und Betrieben wie Krankenhäuser, die Radionuklide verarbeiten. Hierbei werden die typischen künstlichen Radionuklide wie Kobalt-60 durch Kernreaktionen, Cäsium-137, Iod-131 und Strontium-90 durch Kernspaltung sowie Tritium H-3 und Kohlenstoff-14 durch Kernfusion gebildet. Die natürlichen Radionuklide leisten einen bedeutenden Anteil an der Strahlenexposition des Menschen und sind nach ihrem Ursprung in drei Gruppen einzuteilen, die mit Angabe der bedeutendsten Radionuklide in Tab. 3-6 aufgeführt sind.

Tab. 3-6 Einteilung der Natürlichen Radionuklide nach ihrem Ursprung

Natürliche Radionuklide
Radionuklide ohne Zerfallsreihen (u.a. Kalium-40, Rubidium-87)
Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen: - Uran-Radium-Zerfallsreihe, ausgehend von Uran-238, u.a. mit Zwischenprodukt Radon-222 - Actinium-Zerfallsreihe, ausgehend von Uran-235, u.a. mit Zwischenprodukt Radon-216 - Thorium-Zerfallsreihe, ausgehend von Thorium-232, u.a. mit Zwischenprodukt Radon-220
Radionuklide, mit kontinuierlicher Bildung durch kosmische Strahlung - Tritium, Beryllium-7, Kohlenstoff-14, Natrium-22
nach [STOLZ, 1996]

Natürliche Radionuklide ohne Zerfallsreihen wie zum Beispiel Kalium-40 oder Rubidium-87 sowie die Ausgangsradionuklide der Zerfallsreihen besitzen eine Halbwertszeit in der Größenordnung von Milliarden Jahren, sind aber für die natürliche Strahlenbelastung nur von geringer Bedeutung. Die natürlichen Zerfallsreihen beginnen mit den Radionukliden Uran-238, Uran-235 oder Thorium-232 und enden mit einem stabilen Blei-Isotop. Bei diesen natürlichen Zerfallsreihen entstehen auch Radionuklide mit kurzen Halbwertszeiten. Hier sind vor allem die gasförmig auftretenden Isotope des Radons ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{229}\text{Rn}$ ) von Bedeutung, die als Zwischenstufen in den natürlichen Zerfallsreihen auftreten. Aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe entsteht über das Radium-226 das Radon-222 mit einer Halbwertszeit von 3,8 Tagen. Aus der Thorium-Zerfallsreihe über die Zwischenprodukte Radium-228 und Radium-224 das Radon-220 mit einer Halbwertszeit von 55,6 Sekunden und aus der Actinium-Zerfallsreihe das Radon-219 mit der Halbwertszeit von 3,96 Sekunden. Bei den im Boden ablaufenden Kernumwandlungsprozessen ist vor allem das Isotop  $^{222}\text{Rn}$  für die Aktivitätskonzentration in der Luft von weiterer Bedeutung. Mit einer Halbwertszeit von 3,8 Tagen kann das Edelgas Radon-222 vor weiteren Umwandlungen aus dem Boden

diffundieren und in die Atmosphäre gelangen und dort über größere Entfernungen transportiert werden. Neben sehr geringen Anteilen von Radon-220 in den bodennahen Luftschichten sind außerdem die kurzlebigen Zerfallsprodukte von Radon-222 mit Polonium-218, Blei-214, Wismut-214 und Polonium-214 in der Atmosphäre nachweisbar [BFS, 2001]. Eine detaillierte Darstellung zu den Zerfallsreihen und den einzelnen Zerfallsprodukten gibt [STOLZ, 1996].

Neben dieser terrestrischen Strahlung werden in der Erdatmosphäre kontinuierlich natürliche Radionuklide mit relativ kurzer Halbwertszeit durch kosmische Strahlung gebildet. Hierzu zählen Tritium, Kohlenstoff-14 und Beryllium-7. Das radioaktive Isotop  $^7\text{Be}$  entsteht in der Atmosphäre aus der Reaktion zwischen hohen energetischen kosmischen Strahlen und atmosphärischem Stickstoff und Sauerstoff. Da die meisten kosmischen Strahlen in relativ großer Höhe mit atmosphärischen Molekülen reagieren, befinden sich die höchsten Konzentrationen in der Stratosphäre. Die Halbwertszeit beträgt für Beryllium-7 53,3 Tage, der Zerfall findet über Elektronenaufnahme statt und führt zu dem häufigsten natürlichen Isotop Lithium [GRAEDEL, CRUTZEN, 1994, Seite 28 ff].

### 3.6.1 Natürliche Radioaktivität

Die atmosphärische Messung der natürlichen Radioaktivitätskonzentration beinhaltet alle natürlichen Radionuklide, die auf die terrestrische Strahlung der natürlichen Zerfallsreihen zurückzuführen sind und fungiert als Tracer für Vertikalbewegungen von Luftmassen. Mit der differenzierten Messung von Alpha- und Betastrahlung sind künstliche Radionuklide mit Betastrahlung sowie kosmogene Radionuklide wie Beryllium-7 mit Gammastrahlung in der Ausweisung der Natürlichen Radioaktivität nicht enthalten. Aufgrund des Hauptbestandteils von Radon-222 in der Sammelgröße für natürliche terrestrische Strahlung ist die Messgröße Natürliche Radioaktivität ohne Einschränkung über das Radionuklid Radon-222 darzustellen.

Die Konzentrationen von Radon-222 sind starken regionalen Schwankungen unterworfen, die im wesentlichen durch die örtlichen geologischen Verhältnisse und den natürlichen Anteil an Uran und Thorium bestimmt werden. Allgemein ist Urgestein und Felsgestein stärker radioaktiv als Sandboden, wobei die Aktivitätskonzentration vom Granit über Lehm zu Kalkstein und Basalt hin abfällt. Im Mittel beträgt die Konzentration von Radon-222 in der bodennahen Luft für das norddeutsche Flachland etwa  $15 \text{ Bq/m}^3$  und für den süddeutschen Raum  $30 \text{ Bq/m}^3$ . Die Radon-220-Konzentrationen liegen bei etwa  $0,15 \text{ Bq/m}^3$ . Bodennahe Radon-Konzentrationen zeigen eine Tagesperiodizität, die von der Erwärmung durch die Sonne bewirkt wird und mit einem Maximum von etwa  $40 \text{ Bq/m}^3$  am Morgen und einem Minimum von etwa  $10 \text{ Bq/m}^3$  am Abend auftreten. Hauptsächlich durch Bodenfrost bzw. durch eine Schneedecke bedingt tritt dieser Tagesverlauf im Winter nicht auf und die Radonkonzentration bleiben dann auf dem Niveau von etwa  $10 \text{ Bq/m}^3$ . Neben dieser jahreszeitlichen und tageszeitlichen Periodizität treten weitere Schwankungen aufgrund der leichten Wasserlöslichkeit von Radon bei Niederschlägen auf, die zu einem gewissen Auswaschungseffekt aus der Atmosphäre führen und darüber hinaus mit Erhöhung der Bodenfeuchte zudem eine Freisetzung aus dem Boden vermindern [POHLIT, 1992].

An der Zugspitze zeigen die Messungen der Natürlichen Radioaktivität (vgl. Abb. 3-14) den typischen Jahresgang mit Maximum im Sommer und Minimum im Winter. Im Jahresdurchschnitt 1996 beträgt die Aktivitätskonzentration in der Luft

2,20 Bq/m<sup>3</sup>, während das Monatsmittel im Juni mit 3,82 ein Maximum und im Dezember mit 1,25 Bq/m<sup>3</sup> ein Minimum zeigt. Abweichungen von diesen Mittelwerten treten im Verlauf des gesamten Jahres auf. Die Maximalwerte liegen im Sommer zwischen 8 und 12 Bq/m<sup>3</sup> und im Winter zwischen 4 und 10 Bq/m<sup>3</sup>. Insgesamt liegen die Konzentrationen der Natürlichen Radioaktivität deutlich unter denen für bodennahe Luftschichten, die im Süddeutschen Raum bei etwa 30 Bq/m<sup>3</sup> liegen. Hierfür sind Durchmischungsvorgänge verantwortlich, die nach dem bodennahen Austritt der terrestrischen Emission auftreten und am Mess-Standort zu einer Registrierung von Maximalkonzentrationen nicht über 12 Bq/m<sup>3</sup> führen. Minimale Halbstundenwerte liegen im Bereich von wenigen Zehnteln Becquerel pro Kubikmeter Luft.

Für alle Monate liegt der Median höher als das Arithmetische Mittel und verdeutlicht den Einfluss von hohen Konzentrationen am Mess-Standort, die auf einen Herantransport von bodennahen Luftmassen mit erhöhten Konzentrationen von <sup>222</sup>Rn zurückzuführen sind (vgl. Abb. 3-15). In den Wintermonaten vermindert sich der Emissionsfluss von Radon-222 aus dem Boden durch Bodenfrost oder Schneedecke und kann zu einer vorübergehenden Akkumulation führen, die dann während Auftauprozessen unter Berücksichtigung der Halbwertszeit zu einer verstärkten Emission führen kann. Die Schwankungsbreite in der Messreihe an der Zugspitze zeigt aber, dass in Wintermonaten über den Tracer Natürliche Radioaktivität Luftmassen aus bodennahen Luftschichten identifizierbar sind, wenn auch der Hinweis niedriger ausfällt und nicht alle Ereignisse erfasst werden können.

Tageszeitliche Schwankungen sind an der Zugspitze wie an den bodennahen Stationen sehr deutlich erkennbar, die zu ausgeprägten mittleren Tagesgängen führen (vgl. Abb. 3-16). In den Wintermonaten sind tageszeitliche Schwankungen eher selten und in der Darstellung von mittleren Tagesgängen nicht erkennbar. Im Sommer liegt die mittlere Abweichung vom Tagesmittel bei etwa 1 Bq/m<sup>3</sup> und damit deutlich niedriger als in bodennahen Luftschichten. Der zeitliche Verlauf zeigt ein mittleres Minimum der tageszeitlichen Konzentration um 12 Uhr mit anschließendem Anstieg der Konzentration bis 18 Uhr.

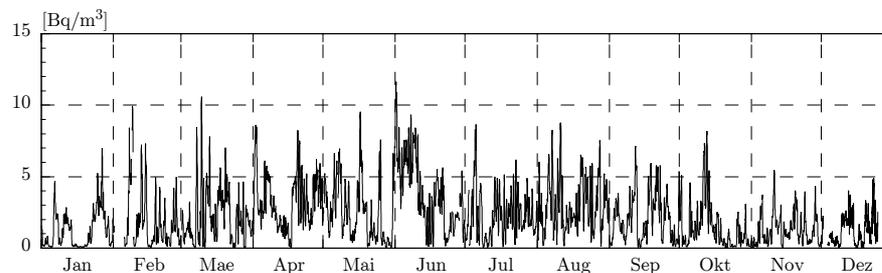


Abb. 3-14 Nat. Radioaktivität Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. 3-15 Nat.Radioaktivität Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

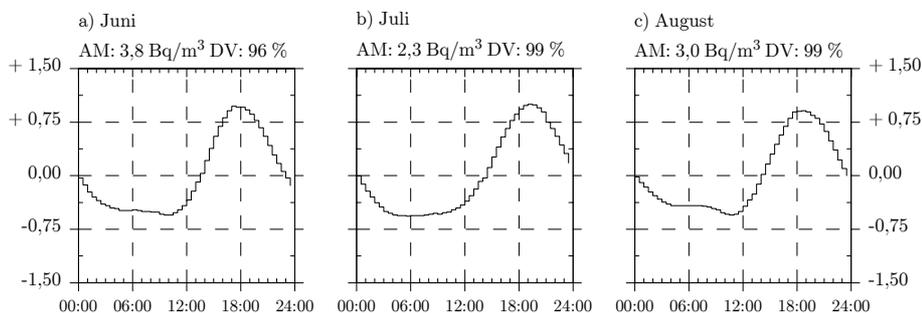
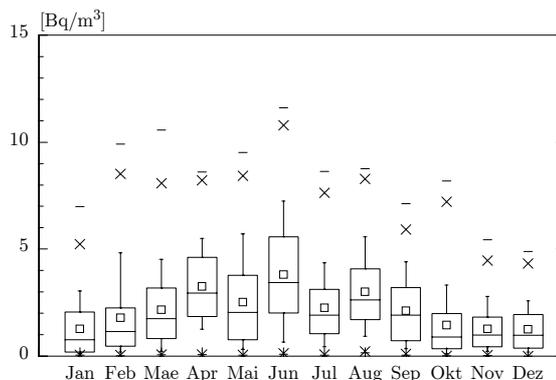


Abb. 3-16 Nat.Radioaktivität Mittlere Tagesgänge, Sommermonate für 1996

Die Tagesgänge sind normiert und stellen die mittlere Abweichung vom Tagesmittel dar. AM: Arithmetisches Monatsmittel, DV: Datenverfügbarkeit

Im Vergleich zur bodennahen maximalen Konzentration am Morgen wird hier eine zeitliche Verzögerung im Konzentrationsverlauf deutlich, die über thermisch induzierte Vorgänge zu erklären ist. Die lokal auftretenden Zirkulationsmechanismen mit Berg-Talwind-System sowie Hangwind führen zu einem konvektiven Einfluss an der Zugspitze. Mit Einsetzen von Konvektion am Vormittag, wirkt sich erst ab Mittag ein Luftmassen-Einfluss aus bodennahen Luftschichten an der Station aus, verstärkt sich im Laufe des Nachmittags und zeigt gegen Abend ein Maximum der Konzentration, die dann nach Zusammenbruch der konvektiven Vorgängen wieder zurückgeht. Für die Konzentrationsabnahme im weiteren zeitlichen Verlauf sind Durchmischungsvorgänge der zum Teil auf dem Niveau verbleibenden Luftmassen notwendig, während ein Luftmassenaustausch zu einer effektiveren und rascheren Änderung der Aktivitätskonzentration führt. Die Verstärkung des Berg-Talwind-Systems durch Hangwinde am südlichen Bergmassiv des Wettersteinrückens ist in der Spurengas-

windrose erkennbar (Abb. 3-17). Bei südwestlichen Windrichtungen, die mit höheren Windgeschwindigkeiten auftreten, sind die mittleren Konzentrationen deutlich höher.

Insgesamt zeigen die Messungen an der Zugspitze die hohe Bedeutung des Tracers Natürliche Radioaktivität für die Identifikation von bodennahen Luftmassen an der Station. Da bodennahe Luftmassen jedoch nicht generell Luftschadstoffe enthalten, ist im Rahmen der Entwicklung von Filterfunktionen dieser Tracer um eine entsprechende Ausprägung in den luftchemischen Messungen zu ergänzen. Umgekehrt sind gleichzeitig auftretende Konzentrationsänderungen von beispielsweise Kohlenmonoxid nicht ausschließlich mit der überwiegend tagesperiodisch auftretenden Konzentrationsänderung in der Messreihe der Natürlichen Radioaktivität erfassbar. Der Zusammenhang mit Kohlenmonoxid und Stickoxiden  $\text{NO}_y$  ist zwar positiv, zeigt jedoch in der Korrelationsrechnung auf Monatsbasis einen Koeffizienten nicht über 0,7, da diese Spurengase zusätzlich episodenhafte Konzentrationsänderungen beinhalten (vgl. Abb. 3-18).

Abb. 3-17 Nat.Radioaktivität  
Spurengaswindrose für 1996  
Mittlere Konzentrationen pro Wind-  
richtungssektor.

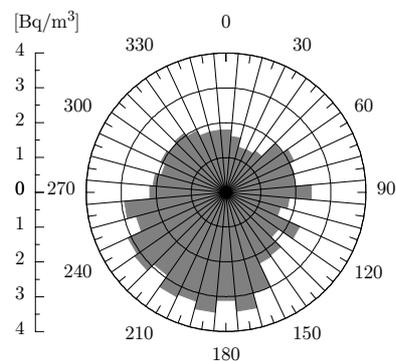
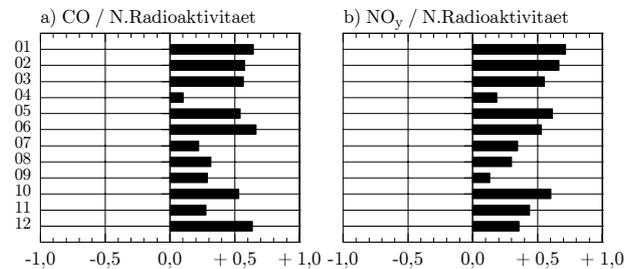


Abb. 3-18 Nat.Radio-  
aktivität Korrelations-  
koeffizienten mit CO  
und  $\text{NO}_y$ , 1996



### 3.6.2 Beryllium-7

Das Radionuklid  $^7\text{Be}$  ist Bestandteil der natürlichen Aktivitätskonzentration in der Luft. Der Wertebereich für den Gammastrahler Beryllium-7 mit wenigen mBq pro Kubikmeter Luft beinhaltet aber nur einen geringen Anteil an der Konzentration der natürlichen Radioaktivität und liegt im Vergleich zum Alphastrahler Radon-222 um den Faktor 1000 niedriger. In der Atmosphärenchemie fungiert das Beryllium-7 wie Radon-222 als Tracer für den vertikalen Austausch von Luftmassen. Aufgrund der ständigen Bildung von Beryllium-7 durch kosmische Strahlung vor allem in der Stratosphäre steht dieser Tracer jedoch für einen Einfluss aus der oberen Atmosphäre. In Höhen von 20 km liegt die maximale Produktionsrate von Beryllium-7, die Konzentrationsverhältnisse in Höhen der niedrigen Stratosphäre liegen in Breiten von  $11^\circ$  bis  $60^\circ\text{N}$  bei  $165 \text{ mBq/m}^3$ , in der hohen Troposphäre bei weniger als  $40 \text{ mBq/m}^3$  [DUTKIEWICZ, 1985].

Wie im Kapitel 3.5 Ozon dargestellt, sind die durch Intrusionen bedingten hohen Ozonkonzentrationen mit stratosphärischem Ursprung nur im Zusammenhang über das zeitgleiche Auftreten von Beryllium-Konzentrationen zu identifizieren und von denjenigen hohen Ozonkonzentrationen durch photochemische Bildung infolge bodennah emittierter Vorläufersubstanzen zu unterscheiden. Daneben wird die Konzentrationsmessung von Beryllium-7 mit einer Halbwertszeit in der Größenordnung von zwei Monaten im Rahmen der Altersbestimmung von Luftmassen verwendet.

Die Exposition der kosmischen Strahlung ist von der geographischen Breite mit ihrem jahreszeitlichen Strahlungspotential und, wegen der Abschwächung durch die Lufthülle, von der Höhe über dem Meeresspiegel abhängig. Eine Zunahme der Konzentration tritt bei 1500 Höhenmetern bereits mit einer Verdopplung der Werte im Vergleich zum Meeresniveau auf, in 5000 m Höhe wird für den Unterschied zum Flachland der Faktor 10 angegeben. Weitere Schwankungen in der Konzentration sind durch Niederschlag bedingt, da  $^7\text{Be}$  sich mit kleinen Aerosolpartikeln verbindet und aus der Atmosphäre ausgewaschen werden kann. In der bodennahen Luft schwanken die Jahresmittel der  $^7\text{Be}$ -Konzentrationen an den Mess-Stellen in der Bundesrepublik zwischen  $2,5 \text{ mBq/m}^3$  und  $3,5 \text{ mBq/m}^3$ . An der Mess-Stelle München-Neuherberg beträgt das Jahresmittel 1996  $3,3 \text{ mBq/m}^3$ . Die Monatmittel zeigen im Sommer Maxima mit Werten zwischen  $4,0$  und  $5,0 \text{ mBq/m}^3$  und im Winter sowie Herbst Minima im Bereich von  $3,0$  und  $4,0 \text{ mBq/m}^3$  [POHLIT, 1992], [BFS, 2001].

Die Häufigkeitsverteilung von  $^7\text{Be}$  an Hochgebirgsstationen in den Alpen zeigt eine bimodale Struktur, mit einer Klasse von niedrigen Werten um  $1,5 \text{ mBq/m}^3$  und einer mit höheren Werten um  $6 \text{ mBq/m}^3$ , die auf den Herantransport von Luftmassen zurückzuführen sind. Niedrige  $^7\text{Be}$ -Konzentrationsverhältnisse stehen im Zusammenhang mit subtropischen maritimen Luftmassen aus niedrigen Höhen, hohe Konzentrationsverhältnisse hingegen mit einem Herantransport von Norden und aus großen Höhen, wie sie bei Intrusionen stattfinden. Die Variabilität von Beryllium-7-Konzentrationsverhältnissen wird stark durch das episodenhafte Auftreten geprägt, im langjährigen Monatsmittel verliert der Einfluss von Episoden an Bedeutung und zeigt ein Maximum im Spätsommer, daneben tritt eine Schwankung in 11-jähriger Periodizität im Zusammenhang mit der Sonnenaktivität auf [GERASOPOULOS ET AL., 2001].

An der Mess-Station Zugspitze erfolgt die kontinuierliche Erfassung von Beryllium-7 in der Luft als Filterbeprobung in 24-stündiger Auflösung. Das Jahresmittel 1996 beträgt  $4,7 \text{ mBq/m}^3$  und liegt deutlich über dem Mittel von  $3,3 \text{ mBq/m}^3$  für die bodennahe Station München-Neuherberg. Der Konzentrationsunterschied zwischen

der bodennahen und der hochalpinen Station fällt hingegen kleiner aus als die bereits aufgeführte höhenabhängige Konzentrationszunahme in der Atmosphäre. Die Ursache ist der für die Station Zugspitze auftretende Herantransport bodennaher und gealterter Luftmassen mit charakteristischen niedrigen Beryllium-Konzentrationen. Der Verlauf der Tagesmittel im Jahr 1996 zeigt an der Zugspitze sehr starke Schwankungen mit einem Wertebereich von 0,1 bis 16,0 mBq/m<sup>3</sup>, auffällig in der Messreihe sind Peaks mit Aktivitätskonzentrationen von über 10,0 mBq/m<sup>3</sup>. Der für bodennahe Stationen typische, durch das Strahlungsangebot bedingte Jahresgang ist an der Zugspitze hingegen nicht ausgeprägt (vgl. Abb. 3-19). Auch das Maximum im Spätsommer für Hochgebirgsstationen ist in den Monatsmitteln für das Jahr 1996 an der Zugspitze nicht feststellbar, wenn auch die Monatsmittel nicht niedriger liegen als in den Wintermonaten. Hingegen ist das typische bimodale Auftreten der Konzentrationsverhältnisse zu beobachten, wobei die Klasse mit höheren <sup>7</sup>Be-Konzentrationsverhältnissen für die Zugspitze etwas niedriger liegt als die für die höher gelegenen Stationen Sonnblick und Jungfraujoch.

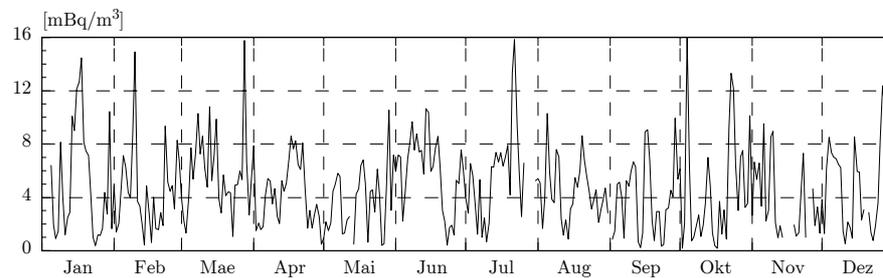


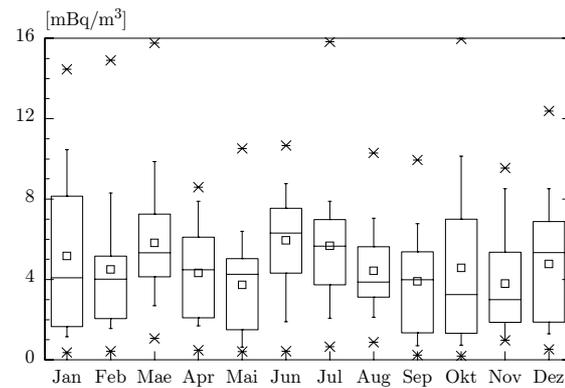
Abb. 3-19 Beryllium-7 Zeitreihe der Tagesmittelwerte für 1996

Während das höchste Monatsmittel als Arithmetisches Mittel mit 6,0 mBq/m<sup>3</sup> im Juni 1996 liegt, ist in den Mittelwerten kein struktureller Verlauf erkennbar (vgl. Abb. 3-20). Neben dem höchsten Tagesmittel im Juli von fast 16,0 mBq/m<sup>3</sup> werden trotz des geringeren Strahlungsangebotes im Herbst und Winter sehr hohe Tagesmittelwerte registriert. Die Werte des 90%-Perzentils liegen in diesen Monaten über denen der Sommermonate und zeigen den Einfluss eines verstärkten Transports von Beryllium-7 aus der Stratosphäre. Intrusionen mit stratosphärischen Durchbrüchen treten häufig im Herbst und Winter auf, beeinflussen in den entsprechenden Monaten die Messreihe durch hohe <sup>7</sup>Be-Konzentrationen an der Station und führen insgesamt zu einer Überdeckung des typischen Jahresganges mit Minimum im Winter. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass die zeitliche Dimension von Intrusionen im Bereich von wenigen bis mehreren Stunden liegt und die Ausprägung eines stratosphärischen Durchbruchs in der Messung mit 24-stündiger Auflösung unter Umständen niedriger ausfällt und an Deutlichkeit verliert. Trotz der Einschränkung durch die relativ niedrige zeitliche Auflösung liefern die Messungen wichtige Hinweise für die Charakterisierung der Luftmassen. Während mittlere Werte eine eindeutige Interpretation unmittelbar nicht zulassen, konzentriert sich die Aussagekraft dieses Tracers auf

deutlich ausgeprägte Peaks sowie sehr niedrige Tagesmittel und ermöglichen eine Verwendung als Indikator für den Vertikalaustausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre.

Abb. 3-20 Beryllium-7  
Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Kreuz- mit Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert. Mit der Datenbasis als Tagesmittel für einen Monat entsprechen die minimalen und maximalen Werte dem 1%- bzw. 99%-Perzentil.





## 4 Modellvorstellung und Beschreibung der Filter

Fuzzy-Logic als mehrwertige Logik beschreibt die Grundlage für die Abbildung unscharfer Informationsverarbeitung. Mit der Anwendung von Zwischenwerten für die graduelle Zuordnung zu einer Größe anstelle harter Grenzwerte mit den binären Zuständen von 0 oder 1 eignet sich die Methode insbesondere zur Modellierung komplexer Prozesse, die über wenige sogenannte Abstrakte Größen als Variablen eines Prozesses beschrieben werden können. Im Gegensatz zur konventionellen Modellierung, die meist auf den einzelnen Steuergrößen eines Prozesses basiert, identifizieren Abstrakte Größen den abzubildenden Prozess bereits über zusammengefasste Größen. Ein Luftmassen-Einfluss aus der Grundschicht oder infolge Intrusionen ist letztendlich Folge einer bestimmten meteorologischen Situation, die zu einer charakteristische Ausprägung in den Spurengas-Messreihen führt und dort selbst erkennbar ist. Weiter ist für abzubildende Prozesse, die nicht eine prognostische Leistung erfüllen müssen, sondern a posteriori formuliert werden, eine Rückführung auf die einzelnen den Prozess bestimmenden Faktoren wie meteorologische Elemente nicht notwendig, wenn nicht zum Teil sogar unzureichend. Mit dem Verständnis eines Luftmassen-Einflusses an der Station als abzubildender Prozess, können auf Grundlage der zuvor dargestellten meteorologischen und luftchemischen Zusammenhänge linguistisch formulierte Filterregeln aufgestellt werden. Dabei fungiert die Implementierung von Fuzzy-Logic in die Filter als methodischer Modellrahmen zur Abbildung der unscharf formulierten Wirkungszusammenhänge unter Einsatz einer eindeutigen mathematischen Beschreibung.

Die Entwicklung von Fuzzy-Logic Filtern orientiert sich streng an dem strukturellen Ablauf der Fuzzy-Theorie mit ihren drei Teilprozessen Fuzzifizierung, Fuzzy-Inferenz und Defuzzifizierung. Nach einer grundlegenden Darstellung der Fuzzy-Theorie als Modellvorstellung für die Abbildung komplexer Prozesse folgt die Aufstellung des Regelwerkes. Die Formulierung der linguistischen Regeln folgt aus der Wissensbasis und beinhaltet insgesamt drei Filter. Im Teilprozess der Fuzzifizierung sind die unscharfen Mengen für die Filterparameter zu formulieren und anschließend für die Zuordnung zwischen Grundwert und linguistischer Wertemenge mathematisch über eine Zugehörigkeitsfunktion zu beschreiben. Hierbei erfordert die grundsätzlich differierende Datenstruktur von Messgrößen und Rückwärtstrajektorien Daten eine entsprechend angepasste Methodik. Mit der mathematischen Beschreibung der Filterregeln in Form von Filterfunktionen folgt im zweiten Teilprozess der Fuzzy-Inferenz das unscharfe Schließen für die aufgestellten Regeln mit der Ermittlung einer Schlussfolgerung für eine jeweilige Situation im abzubildenden Prozess. In dem letzten Teilprozess Defuzzifizierung erfolgt wiederum die Umwandlung der unscharfen Schlussfolgerung in exakte Ausgabewerte, die als Data-Flag das Ziel einer binären

Messreihen-Kennzeichnung hinsichtlich eines Luftmassen-Einflusses beschreibt. Als Übersicht für den abzubildenden Fuzzy-Logic Prozess dient die abschließend aufgeführte Schautafel (vgl. Abb. 4-10), die Teilprozesse mit den verwendeten Größen und ihren Bezeichnungen zusammengefasst darstellt.

## 4.1 Die Idee der Fuzzy-Logic

Die Fuzzy-Logic Theorie wurde 1965 von dem Informatiker Lofti Zadeh begründet und stellt die Grundlage zur Abbildung von regelbasiertem Wissen. Der Grundgedanke der unscharfen Informationsverarbeitung stützt sich auf die mathematische Beschreibung von nicht exakt formulierten Wissen unter Verwendung unscharfer Mengen, den sogenannten Fuzzy-Sets. Allgemein formuliert ist die Theorie der unscharfen Mengen mit ihrer mehrwertigen Logik eine Erweiterung der klassischen Mengenlehre und damit auch der Binärlogik. Während die konventionelle Aussagenlogik jeweils nur die zwei Möglichkeiten 0 oder 1 zulässt, existieren bei unscharfen Mengen auch Zwischenwerte zwischen 0 und 1, mit denen gewisse Unsicherheiten bezüglich einer betrachteten Größe oder eines Wirkungszusammenhangs zum Ausdruck gebracht werden. Um eine unscharfe Menge zu beschreiben, werden einer Größe bestimmte Fakten graduell zugeordnet. Dabei stellt das sogenannte linguistische System einen wesentlichen Baustein dar, das sich durch seine sprachliche Struktur auszeichnet und zugleich mathematisch eindeutig beschreiben lässt. Gegenüber konventionellen Methoden ist die Anwendung von Fuzzy-Logic insbesondere dann von Vorteil, wenn Prozesse modelliert werden, bei denen

- komplexe Wechselwirkungen zwischen den Steuergrößen bestehen,
- der Einfluss auf die Steuergröße nur unzureichend beschreibbar ist,
- die Messung der den Prozess beschreibenden Größen nur indirekt erfolgen kann und damit nicht exakt und vollständig ist oder
- Phänomene beschrieben werden, die nicht mit exakten Grenzwerten darstellbar sind.

Die Anwendung von Fuzzy-Logic beinhaltet die linguistische Formulierung der abzubildenden Prozesse über unscharfe Begriffe in Regeln und die anschließende mathematische Beschreibung der unscharfen Information über Fuzzy-Sets. Eine umfassende Darstellung zur Fuzzy-Set Theorie, ihrer mathematischen Beschreibung und Anwendungen gibt [ZIMMERMANN, 2001], Beiträge von dem Fuzzy-Begründer Zadeh zu ausgewählten Spezialthemen sind zu finden in [KLIR, YUAN, 1996].

Die Methode von Fuzzy-Logic ist mehr als Modellrahmen zu verstehen, in dem Prozesse verschiedenster Anwendungsbereiche abgebildet werden können. Während sich der Einsatz in der industriellen Fertigung seit mehreren Jahren fest etabliert hat, zeichnet sich im Zusammenhang mit der traditionellen Künstlichen Intelligenz wieder ein verstärkter Einsatz von Fuzzy-Logic ab, der den Kern des sogenannten Soft Computing darstellt, das eine Kombination sich ergänzender intelligenter Methoden wie die der neuronalen Netze und des Chaotic Computing beinhaltet und die Erhöhung des Machine Intelligence Quotient-Level (MIQ) zum Ziel hat [ALIEV ET AL., 2000], [DRÖSSER, 1995]. Daneben besteht ein weiteres Anwendungsgebiet im Rahmen von Bewertungsverfahren, wie beispielsweise [KARATZAS, MOUSSIOPOULOS, 2001] mit der

Umsetzung der Fuzzy-Theorie als methodische Grundlage für ein urbanes Luftqualitäts-Management-System zeigt. Insgesamt gewinnt die Implementierung von Fuzzy-Logic auch für naturwissenschaftliche Prozessbeschreibungen zunehmend an Bedeutung, da gerade in diesem Bereich die Mehrzahl der Prozesse komplexe Wirkungsfaktoren beinhalten, die zudem nur bedingt über Messgrößen zu erfassen sind.

Der Prozess der unscharfen Informationsverarbeitung ist methodisch in die drei Teilprozesse Fuzzifizierung, Fuzzy-Inferenz und Defuzzifizierung zu gliedern. Das Strukturschema (vgl. Abb. 4-1) mit den drei Teilprozessen stellt die Grundlage für die durchzuführende Implementierung in die Filterregeln dar und wird nachfolgend allgemeingültig in Anlehnung an die verwendeten Begriffe von [BÖRCSÖK, 2000] vorgestellt.

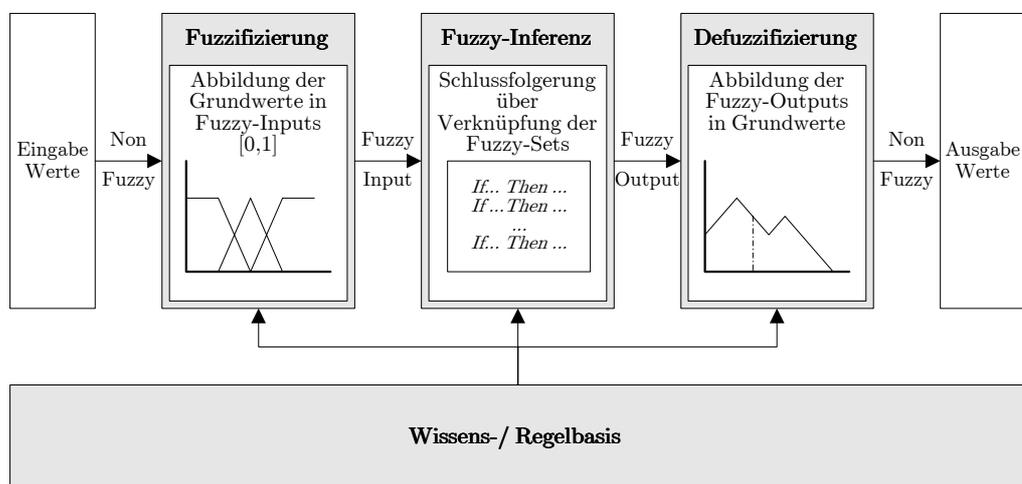


Abb. 4-1 Strukturschema eines Fuzzy-Logic-Prozesses

Die Fuzzifizierung beinhaltet die Abbildung exakter Eingangswerte auf dem Einheitsintervall  $\{0, 1\}$  über die Zuordnung in unscharf formulierte Mengen, die über sogenannte Fuzzy-Inputs dargestellt werden. Unscharfe Mengen sind Fuzzy-Sets, die aus dem jeweiligen inhaltlichen Kontext der Prozessbeschreibung festzulegen sind und die Eingabewerte anstelle von Wertemengen mit Maßangaben in linguistischer Form beschreiben. Die prozesssteuernden Eingangswerte sind die bedeutenden Variablen des linguistischen Systems und werden auch als Abstrakte Größen bezeichnet, die exakten Eingangswerte als Grundwerte. Beispielsweise ist eine Messgröße die Abstrakte Größe, die registrierten Messwerte die zugehörigen Grundwerte und der Begriff eines hohen Messwertes entspricht der unscharfen Formulierung. Hier bedeutet die Ermittlung eines Fuzzy-Inputs, dass ein registrierter Messwert nach einer mathematischen Beschreibung mit aufzustellender Zugehörigkeitsfunktion über die Zuordnung zu den Fuzzy-Sets linguistisch beschrieben wird. Im Gegensatz zu der binären Zuordnung der Grundwerte zu einer Menge mit der Information 0 oder 1, wird für die Zuordnung zu einer unscharfen Menge eine Zugehörigkeitsfunktion auf-

gestellt mit der die Unschärfe beschrieben wird. Die Zugehörigkeitsfunktion besitzt einen Wertebereich zwischen 0 und 1 und gibt den quantitativen Zusammenhang zwischen Fuzzy-Set und dem exakten Eingangswert der Abstrakten Größe an.

Die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion beinhaltet die Annahme, dass für jede Situation im abzubildenden Prozess ein eindeutig scharfer Grenzwert existiert. Für die mathematische Beschreibung der Funktion ist bei stetigen Abstrakten Größen mit linearem Zusammenhang zum Beispiel ein eindeutig oberer und ein unterer Grenzwert notwendig. Die Festlegung dieser scharfen Grenzwerte erfolgt als Vorgabe aus dem inhaltlichen Zusammenhang heraus und ist wegen der direkten Auswirkung auf die späteren Ergebnisse ein entscheidender Punkt in der Fuzzifizierung. Als Resultat der Fuzzifizierung liegt für jeden Grundwert der Abstrakten Größe eine graduelle Zuordnung von 0 bis 1 zu den formulierten Fuzzy-Sets vor, die die sogenannten Fuzzy-Inputs darstellen.

Die Fuzzy-Inferenz ist das unscharfe Schließen der jeweiligen Fuzzy-Inputs entsprechend der Regelbasis und Grundlage zugleich um Schlussfolgerungen mathematisch zu modellieren. Eine Inferenz besteht aus der Regel (Implikation), der Bedingung (Faktum) und der daraus gebildeten Folgerungen (Schluss). Die Formulierung erfolgt über die If...-Then...-Regel, die eine oder mehrere Bedingungen wie Schlussfolgerungen beinhalten kann. Die linguistische Aufstellung des Regelwerks resultiert aus der Wissensbasis des jeweils abzubildenden Prozesses und ist neben der Formulierung der scharfen Grenzwerte in der Fuzzifizierung ein weiterer bedeutender Punkt, der die Ergebnisse maßgeblich beeinflusst. Enthalten die aufgestellten Regeln mehr als eine Bedingung, so sind die jeweiligen Zugehörigkeitsfunktionen über die logischen Operatoren NICHT, UND und ODER zu verknüpfen. Da unscharfe Mengen nicht wie in der klassischen Logik zweiwertig  $\{0, 1\}$  sondern mehrwertig  $\{0, \dots, 1\}$  sind, muss für die Verknüpfung der Mengen je nach abzubildendem Prozess eine Methode angewandt werden, die die Modellierung der fuzzy-logischen Implikation umsetzen. Die zuvor ermittelten Fuzzy-Inputs der Abstrakten Größen durchlaufen die Bedingungen der Regel, die über die Verknüpfungsmethode pro Regeldurchlauf zu einem Wert zusammengefasst werden. Dieser Wert ist das Ergebnis, das sich aus der Kombination der Fuzzy-Inputs ergibt und wird als sogenannter Fuzzy-Output bezeichnet. Entsprechend der gewählten Methode besitzt der Fuzzy-Output wiederum eine graduelle Zuordnung zu der Menge der Schlussfolgerung.

Der letzte Abschnitt der Defuzzifizierung beinhaltet die Umwandlung der Ergebnisse des Inferenzprozesses und ist durchzuführen, wenn mehrere Regeln zur Anwendung kommen und aus den Funktionen der Schlussfolgerung ein Ergebnis zu ermittelt ist. Hierfür sind wieder im Hinblick auf den zu beschreibenden Prozess spezifische Methoden anzuwenden, wie beispielsweise die Maximum-Methode, die auch als Mean-of-Maximum bezeichnet wird und mit der die Schlussfolgerung über das Mittel des maximalen Outputs bestimmt wird, d.h. diejenige Schlussfolgerung mit dem höchsten Zugehörigkeitsgrad. Darüber hinaus können in Abhängigkeit von der Aufgabenstellung die unscharfen Schlussfolgerungen wieder in Grundwerte als exakte Ausgabewerte umgewandelt werden, was insbesondere für Prozesse in der Steuerungstechnik von Bedeutung ist.

Eine Implementierung von Fuzzy-Logic in die zu entwickelnden Filterfunktionen beinhaltet dessen methodische Umsetzung in die drei Teilabschnitte der Fuzzifizierung, Inferenz und der Defuzzifizierung. Aus dem inhaltlichen Zusammenhang heraus ist zunächst das Regelwerk für die abzubildenden Prozesse aufzustellen, um die Filterparameter für die Fuzzifizierung zu benennen. Zum Abschnitt der Fuzzifizierung

zählt die Festlegung der Fuzzy-Sets mit ihren linguistischen Werten und die Festlegung der scharfen Grenzwerte mit denen die Zugehörigkeitsfunktion für die Fuzzifizierung der Filterparameter aufgestellt wird. Die Auswahl der Methode für das unscharfe Schließen der Filterregeln zur Ermittlung der Schlussfolgerung erfolgt in dem Abschnitt der Fuzzy-Inferenz. Mit dem Ziel der Kennzeichnung von Luftmassen-Einflüssen in den Spurengas-Messreihen wird das angestrebte Ergebnis bereits linguistisch formuliert. Der Abschnitt der Defuzzifizierung beinhaltet damit keine implizite Umwandlung der Fuzzy-Outputs in scharfe Grundwerte, da es sich nicht um eine Prozessabbildung im Sinne der Steuerungsregelung handelt. Die Fuzzy-Outputs selbst geben mit der Angabe eines Zugehörigkeitsgrades zu der Schlussfolgerung eine detaillierte Information über einen möglichen Einfluss der Messreihen. Für eine Bereitstellung der Messreihen hinsichtlich ihrer Repräsentanz ist hingegen eine eindeutige Aussage zur Kennzeichnung der Datensätze zu treffen, die binär erfolgen muss und in dem Abschnitt der Defuzzifizierung vorzunehmen ist.

## 4.2 Filter-Regelwerk

Die luftchemischen Messreihen an der Station Zugspitze werden durch einen Herantransport von Luftmassen aus der Grenzschicht beeinflusst. Ursächlich steht der Einfluss von Grundschicht an der Station im Zusammenhang mit meteorologischen Vorgängen wie synoptisch bedingten Vertikaltransporten mit anschließendem advektiven Herantransport und thermisch induzierten Hebungsvorgängen. Daneben führen Intrusionen zu einem Einfluss durch stratosphärische Luftmassen. Diese Vorgänge sind mit charakteristischen Ausprägungen in den Spurengas-Messreihen verbunden und in der methodischen Übertragung als Prozesse zu verstehen, die mit der Entwicklung der Filterfunktionen erfasst werden sollen. Während die konventionelle Modellierung auf den einzelnen Steuergrößen der meteorologischen Prozessvorgänge basiert, erfolgt in der Fuzzy-Logic-Methode eine Prozessabbildung über einige wenige Abstrakte Größen, die den Prozess als solchen über zusammengefasste Größen identifizieren. Insbesondere vor dem Hintergrund der in unterschiedlicher Ausprägung auftretenden meteorologischen Vorgänge sind die Prozesse als Luftmassen-Einfluss jedoch vielmehr in den luftchemischen Messreihen selbst erkennbar. Mit den luftchemischen Messgrößen als Abstrakte Größen wird der zu beschreibende Prozess in Abhängigkeit von der spezifischen Ausprägung also bereits als Folge der ursächlichen Zusammenhänge abgebildet. Die Rückwärtstrajektorien hingegen ermöglichen das Erkennen von Vertikaltransporten im zurückliegenden Verlauf als zusammengefasste Folge der stattgefundenen meteorologischen Vorgänge, die als prozessrelevante Steuergröße in die Filterregel eingehen.

Die Grundlage für die Formulierung der Filterregeln ist die in Kapitel 3 durchgeführte Analyse der Spurengas-Konzentrationen in Verbindung mit den in Kapitel 2.3 dargestellten dynamisch bedingten Luftmassen-Einflüssen am Standort. Diese Darstellung der atmosphärenchemischen und meteorologischen Zusammenhänge mit der daraus folgenden spezifischen Ausprägung in den Messreihen stellt die Wissensbasis dar, die die inhaltliche Grundlage zur Aufstellung der Filter bildet. Ziel der zu formulierenden Filterregeln ist die Prozessabbildung für die Identifikation von Luftmassen-Einflüssen in den Spurengas-Messungen an der Station, die entsprechend in den Messreihen zu kennzeichnen sind. Aus dem kausalen Zusammenhang heraus ist das aufzustellende Regelwerk in die drei wesentlichen dynamisch bedingten Vorgänge zu gliedern und beinhaltet drei Regeln für Luftmassen-Einflüsse im Zusammenhang mit

lokal induzierten Vertikaltransporten, synoptisch bedingten Transportprozessen und Intrusionen. Hier ist zu beachten, dass sich die Formulierung zwar an den dynamisch bedingten Vorgängen orientiert, nicht jedoch deren Identifizierung beinhaltet, sondern den damit verbundenen Luftmassen-Einfluss mit Ausprägung in den Messreihen der Station. Die Schlussfolgerung folgt aus dem jeweiligen Luftmassen-Einfluss und lautet für die beiden ersten Filterregeln Einfluss aus der Grundschicht und stratosphärischer Einfluss infolge Intrusionen für die dritte Filterregel.

Die Filterparameter der Regeln werden als Abstrakte Größen für die Identifikation des zu beschreibenden Prozesses verstanden und sind die luftchemischen Messgrößen selbst, die meteorologische Messgröße der Relativen Feuchte sowie die Rückwärtstrajektorien in Verbindung mit einem Emissions-Inventar. Zu den luftchemischen Filterparametern gehören neben Ozon die Tracer Beryllium-7, Natürliche Radioaktivität und Kohlenmonoxid. Hierbei übernimmt der Tracer Kohlenmonoxid für Vertikaltransporte aus der Grundschicht eine zentrale Rolle und wird in allen drei Filterregeln verwendet. Die Messgröße Ozon ist kein eindeutiger Tracer für Luftmassen-Einflüsse und gewinnt als Filterparameter nur aus dem Zusammenhang mit anderen Messgrößen heraus an Bedeutung. Die Radionuklide sind wiederum Tracer entsprechend ihrer Quelle, Beryllium-7 für stratosphärische Luftmassen und Natürliche Radioaktivität für bodennahe Luftmassen.

#### 4.2.1 Filter 1 - Einfluss infolge Vertikaltransporten

Für die Identifizierung von Luftmassen-Einfluss aus der Grundschicht, die primär aus lokal induzierten Vertikaltransporten resultieren, wird eine Filterregel über luftchemische Parameter formuliert. Kohlenmonoxid und Natürliche Radioaktivität sind aufgrund ihrer bodennahen Emissionsquellen Tracer für Grundschicht-Luftmassen und lassen den Rückschluss zu, dass hohe Konzentrationen dieser luftchemischen Messgrößen an der Station auf Vertikaltransporte aus der Grundschicht zurückzuführen sind. Über den Filterparameter Natürliche Radioaktivität mit relativ kurzer atmosphärischer Verweilzeit und einem tageszeitlichen Konzentrationsverlauf werden mit der Filterregel weitestgehend lokal induzierte Vertikaltransporte angesprochen, die in Verbindung mit den am Standort auftretenden Zirkulationsmechanismen stehen. Mit der ausschließlichen Formulierung über luftchemische Filterparameter wird unter Beibehaltung des kausalen Zusammenhangs die differenzierte Formulierung zwischen dem eigentlichen dynamischen Vorgang und einem Einfluss der Messungen deutlich. Eine Einschränkung der Filterregel über zusätzliche meteorologische Filterparameter würde nicht der Abbildung des formulierten Ziels mit Identifikation von Luftmassen-Einflüssen in den Spurengas-Messungen entsprechen, da unter Umständen bei konvektiven Vorgängen die transportierten Luftmassen ohne effektiven Luftmassenaustausch auch nach Zusammenbruch der lokalen Zirkulationsvorgänge auf dem Niveau verbleiben und einen Einfluss der Messungen beinhalten.

Die Filterregel 1 zur Identifizierung eines Einflusses aus der Grundschicht infolge lokal induzierter Vertikaltransporte lautet:

Wenn für die Tracer Kohlenmonoxid und Natürliche Radioaktivität an der Station hohe Konzentrationen registriert werden, liegt ein Luftmassen-Einfluss aus der Grundschicht vor, der in den Messreihen zu kennzeichnen ist.

### 4.2.2 Filter 2 - Einfluss infolge Transportprozessen

Einflüsse aufgrund eines Grundsicht-Aufenthalts im zurückliegenden Verlauf der an die Station transportierten Luftmassen können über eine Auswertung der Rückwärtstrajektorien hinsichtlich ihres vertikalen Verlaufs und räumlichen Aufenthalts in Verbindung mit einem Emissions-Inventar ermittelt werden. Mit dem zugrundeliegenden Europamodell für die Berechnung der Trajektorien werden im Gegensatz zur Filterregel 1 für lokal induzierte Vertikaltransporte insgesamt großräumige synoptisch bedingte Vertikaltransporte aus der Grundsicht erfasst. Modellunsicherheiten in der Trajektorienberechnung sowie die ausschließlich zu zwei Tageterminen verfügbaren Datensätze und das zeitlich nicht aufgelöste Emission-Inventar beinhalten aber Unsicherheiten, die nur eine Aussage als potentieller Luftmassen-Einfluss zulassen. Hierfür ist die Filterregel um einen Tracer mit Registrierung einer hohen Konzentration an der Station zu ergänzen.

Die Filterregel 2 zur Identifizierung eines Einflusses aus der Grundsicht infolge synoptisch bedingter Transportprozesse lautet:

Wenn im zurückliegenden Verlauf der an die Station herantransportierten Luftmassen ein Grundsicht-Aufenthalt mit einer potentiellen Konzentrationsänderung über die Auswertung der Rückwärtstrajektorien in Verbindung mit einem Emission-Inventar festzustellen ist und an der Station hohe Konzentrationen des Tracers Kohlenmonoxid registriert werden, liegt ein Luftmassen-Einfluss aus der Grundsicht vor, der in den Messreihen zu kennzeichnen ist.

### 4.2.3 Filter 3 - Einfluss infolge Intrusionen

Im Gegensatz zu Luftmassen-Einflüssen aus der Grundsicht erfolgt bei Intrusionen ein direkter markanter Transport stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre. An der Station ist ein solcher Einfluss mit einer Konzentrationsänderung zu Mischungsverhältnissen für stratosphärische Luftmassen verbunden, die insbesondere zu hohen Konzentrationen von stratosphärischem Ozon und kosmogenem Beryllium-7 führen. Hingegen sind niedrige Konzentrationen für bodennah emittierte Spurengase festzustellen. Da stratosphärisches Ozon von troposphärisch produziertem Ozon ausschließlich über den Einbezug weiterer Leitparameter zu unterscheiden ist, wird die Filterregel neben Ozon zusätzlich mit den chemischen Parametern Beryllium-7, Kohlenmonoxid und der meteorologischen Messgröße der Relativen Feuchte aufgebaut.

Die Filterregel 3 zur Identifizierung eines Einflusses infolge Intrusionen lautet:

Wenn charakteristische Mischungsverhältnisse für stratosphärische Luftmassen mit hohen Ozon-Konzentrationen, hohen Beryllium-7-Mittelwerten, niedrigen Kohlenmonoxid-Konzentrationen und niedrigen Werten der Relativen Feuchte an der Station registriert werden, liegt ein Luftmassen-Einfluss infolge von Intrusionen vor, der in den Messreihen zu kennzeichnen ist.

### 4.3 Fuzzifizierung

In dem Regelwerk sind die Filterparameter als Abstrakte Größen des zu beschreibenden Prozesses festgelegt und liegen für die unscharfe Informationsverarbeitung zunächst als Grundwerte vor. Der Abschnitt der Fuzzifizierung beinhaltet die mathematische Abbildung der Grundwerte in Fuzzy-Größen nach Maßgabe der zu definierenden linguistischen Terme. Für jeden ermittelten Input-Wert wird dabei ein Zugehörigkeitsgrad als  $\mu$ -Wert im Intervall  $\{0, 1\}$  für jeden linguistischen Term ermittelt. Die Ermittlung der Fuzzy-Inputs erfordert für jede Abstrakte Größe die Festlegung der Fuzzy-Sets mit ihren linguistischen Werten, die Festlegung der scharfen Grenzwerte und die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion. Als Zugehörigkeitsfunktionen werden die am häufigsten angewendeten Funktionsverläufe mit den fuzzy-typischen Dreiecks- bzw. Trapezformen verwendet, so dass für die Zugehörigkeitsfunktion die Fuzzifizierungsoperation einer einfachen Interpolation zwischen den festgelegten Grenzwerten entspricht.

Mit dem aufgestellten Regelwerk handelt es sich um folgende Abstrakte Größen:

- Kohlenmonoxid-Konzentration
- Ozon-Konzentration
- Natürliche Radioaktivität-Aktivitätskonzentration
- Beryllium-7-Aktivitätskonzentration
- Relative Feuchte
- Trajektorienverlauf: Rückwärtstrajektorien, Emissions-Inventar

Bei den Abstrakten Größen der Spurengase, der Radionuklide und der meteorologischen Größe handelt es sich um Messgrößen an der Station, bei denen die jeweiligen Messwerte die zu fuzzifizierenden Grundwerte darstellen. Hingegen beinhaltet die Abstrakte Größe Trajektorienverlauf zwei Kriterien, die zudem eine grundlegend andere Datenstruktur aufweisen. Für die Abstrakten Größen Messgröße und Trajektorienverlauf ist nachfolgend eine methodisch differenzierte Fuzzifizierung durchzuführen. Die mathematische Beschreibung der Fuzzy-Inputs erfolgt in Anlehnung an die Schreibweise von [BÖRCSÖK, 2000] und [ALIEV ET AL., 2000].

#### 4.3.1 Filterparameter Messgröße

In der Analyse und Beschreibung der Spurengas- Messreihen sind bereits linguistische Begriffe verwendet werden. Einflüsse aus der Grundsicht sind in dem Zeitreihenverlauf durch hohe bzw. niedrige Konzentrationen oder Peaks erkennbar, ohne dass eine genaue Abgrenzung oder Definition von den sogenannten hohen Messwerten vorgestellt wurde. Vor dem Hintergrund der meteorologischen Prozesse ist dieser Begriff auch unscharf und schwer festzulegen, da einerseits die Ausprägung je nach Einfluss unterschiedlich deutlich wird und andererseits von der Jahreszeit abhängt. Die Filterfunktionen werden mit diesen unscharfen Begriffen zur Beschreibung der luftchemischen Filterparameter in Regelform beschrieben, so dass sich die Festlegung der Fuzzy-Sets genau an diesen linguistischen Formulierungen orientiert.

Die Festlegung der scharfen Grenzwerte zur Beschreibung der Zugehörigkeitsfunktion erfordert neben der Abbildung der jahreszeitlichen Variabilität der Messgrößen bei gleichzeitiger Resistenz gegen Episoden und Ausreißer auch die Berücksichtigung säkularer Trendentwicklungen. Den Anforderungen entsprechend werden die Grenzwerte als gleitende Lagemaße beschrieben und ermöglichen das Erkennen einer Störung aus der Messreihe selbst. Mit der Fuzzifizierung der Konzentration einer luftchemischen Messgröße wird für jedes formulierte Set eine graduelle Zuordnung ermittelt und ermöglicht insgesamt eine unscharfe Formulierung der Konzentrationswerte.

#### Fuzzy-Sets Messgröße

Mit den verwendeten linguistischen Begriffen Messwerte hoher und niedriger Konzentration werden bereits zwei Fuzzy-Sets beschrieben. Zur weiteren differenzierten Betrachtung der luftchemischen Konzentrationen wird ein weiteres Fuzzy-Set für durchschnittliche Konzentrationswerte definiert. Diese Messwerte mit mittleren Konzentrationen sind als sogenannte Basislinie oder als Hintergrund zu verstehen, von der die Einordnung der hohen oder niedrigen Konzentrationswerte ausgeht.

Für die Filterparameter Messgröße, nachfolgend als Abstrakte Größe A, bezeichnet lauten die Fuzzy-Sets:

1. Fuzzy-Set low: Menge der Messwerte mit niedrigen Konzentrationen,
2. Fuzzy-Set medium: Menge der Messwerte mit mittleren Konzentrationen,
3. Fuzzy-Set high: Menge der Messwerte mit hohen Konzentrationen.

Die Basis für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion mit Zuordnung der Messwert zu den formulierten drei Fuzzy-Sets bilden die sogenannten scharfen Grenzwerte. Mit Abbildung einer linearen Zugehörigkeitsfunktion ist für jeden Fuzzy-Set derjenige obere und untere Grenzwert festzulegen, der eindeutig einer Menge zugeordnet werden kann. Eine eindeutige Zuordnung bedeutet hier eine Zuordnung ohne Zwischenwerte, womit eine Zugehörigkeit von 1 zu einem Fuzzy-Set erfolgt und die Zugehörigkeit zu den übrigen Fuzzy-Sets 0 beträgt. Für die luftchemischen Messgrößen sind Grenzwerte zu definieren, die zweifelsfrei einer Menge der Messwerte mit niedrigen, mittleren und hohen Konzentrationen zuzuordnen sind. Als Anforderung an die scharfen Grenzwerte der luftchemischen Filterparameter werden folgende Bedingungen definiert:

- Bestimmung für jede Situation in dem abzubildenden Prozess,
- Bestimmung nach eindeutigen und objektiven Kriterien,
- Berücksichtigung der jahreszeitlichen Variation der Messgrößen,
- Abbildung von Trendentwicklungen in den Messreihen,
- Resistenz gegen Episoden und Extremwerte.

Die Berücksichtigung des Jahresganges in den Messreihen erfordert eine jahreszeitlich differenzierte Festlegung eines scharfen Grenzwertes. Zusätzlich darf der Grenzwert nicht fix formuliert werden, um der Anforderung der Abbildung möglicher Trendentwicklungen der Messgrößen zu entsprechen. In der operationellen Filter-

anwendung auf mehrere Jahressgänge besteht sonst die Gefahr, dass mögliche Trendentwicklungen unterdrückt und damit weggefiltert werden. Mit diesen beiden Anforderungen wird deutlich, dass der scharfe Grenzwert gleitend aus der Messreihe selbst erkannt werden muss. Um der Anforderung einer eindeutigen und objektiven Bestimmung zu entsprechen, sind statistische Maße für das Erkennen eines Grenzwertes aus der Messreihe erforderlich.

Hieraus folgt, dass eine Formulierung des scharfen Grenzwertes als gleitender statistischer Wert aus der Messreihe erfolgen muss. Für das Fuzzy-Set der Messwerte mit mittleren Konzentrationen einer Messgröße eignet sich ein Gleitender Median. Gegenüber dem Arithmetischen Mittel besitzt der Median den Vorteil der Resistenz gegen Ausreißer und führt erst ab einer Ausreißerquote von 50% zu Verzerrungen. Daneben können weiterführende statistische Tests angewendet werden, die auf dem Lagemaß Median basieren, verteilungsfrei sind und als Bedingung keine Normalverteilung voraussetzen.

Für die Grenzwerte der Fuzzy-Sets mit Messwerten hoher und niedriger Konzentrationen sind ebenfalls Gleitende Lagemaße heranzuziehen. Die Minima und Maxima der Messreihen eignen sich nicht als Grenzwerte, da Extremwerte zu stark von Episoden beeinflusst werden und den Grenzwert im Hinblick auf die Zugehörigkeitsfunktion generell zu hoch bzw. zu niedrig setzen würden. Das Erkennen von Störungen in der Messreihe selbst setzt bestimmte Annahmen voraus, die im wesentlichen aus der Beschreibung der einzelnen Spurengase mit ihren Boxplot-Darstellungen resultieren. Die grundlegende Annahme ist, dass die Messreihen überhaupt Störungen sowie unbeeinflusste Messungen beinhalten. Daneben ist ein Bereich zu deklarieren, in dem die linguistische Beschreibung einer Störung einzuordnen ist und die eigentliche Spannweite der Störungen in den Messreihen implizit eingeschränkt wird. Aus der Analyse der Spurengas-Konzentrationen kann vorausgesetzt werden, dass in einem betrachteten Zeitintervall mindestens 10% der Messungen beeinflusst, aber mindestens 10% der Messungen unbeeinflusst sind. Demnach können Messwerte mit Konzentrationen größer als das 90%-Perzentil als eindeutig hohe Messwerte deklariert werden und Messwerte mit Konzentrationen kleiner als das 10%-Perzentil als eindeutig niedrige Werte. Die mittleren Konzentrationswerte als Median bilden die Grenze, an der die Beschreibung als hoher oder niedriger Konzentrationswert aufhört.

Die Festlegung der Zeitspanne für die Gleitenden Lagemaße stellt einerseits die Anforderungen an die Abbildung des Jahresgangs und andererseits an die Resistenz gegenüber Extremwerten und Episoden. Daneben ist der Einfluss oder die Einschränkung durch Messwertausfälle zu berücksichtigen. Für die Bildung eines repräsentativen Lagemaßes wird eine Datenverfügbarkeit innerhalb der betrachteten Zeitspanne von mindestens 70% gefordert. Um den Einfluss durch Episoden auf die Gleitenden Lagemaße zu unterdrücken ist eine relativ große Zeitspanne von 90 Tagen notwendig. Kürzere Zeitspannen beinhalten in der Zeitreihe noch vereinzelte Peaks, die auf Episoden von mehreren Tagen zurückzuführen sind. Daneben stellt die Forderung von weniger als 30% Messwertausfall innerhalb eines drei monatigen Messintervalls eine realistische Annahme dar. Andererseits ist die Zeitspanne von 90 Tagen aber noch kurz genug, um die Schwingung des Jahresganges abzubilden.

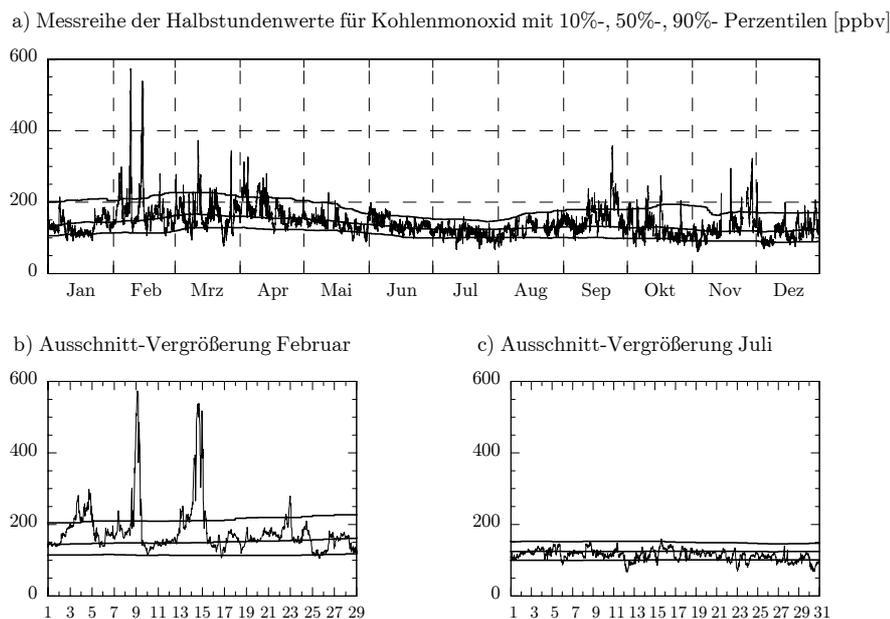


Abb. 4-2 Grenzwerte für den Filterparameter Messgröße

Messreihe mit Zentrierten Gleitenden 10%-, 50%-, und 90%-Perzentilen der 90-Tage-Zeitspanne als Grundlage für die Grenzwerte der Fuzzy-Sets, am Beispiel für Kohlenmonoxid, 1996

In der Diskussion um die Festlegung der Grenzwerte als 10%- und 90%-Perzentile zeigen 5%- und 95%-Perzentile einen zu starken Einfluss durch Ausreißer und würden eine noch größere Zeitspanne fordern. Die Festlegung als 85% sowie 15%-Perzentile ist lediglich für einige Monate mit starker Beeinflussung sinnvoll, nicht aber für weniger stark beeinflusste Monate (vgl. Abb. 4-2-b und -c). Da eine einheitliche Methode anzuwenden ist, sind 10%- und 90%-Perzentile geeignete Lagemaße zur Beschreibung eindeutiger Werte.

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass die Grenzwerte als zentrierte gleitende Lagemaße festgelegt werden und die drei Fuzzy-Sets über das 10%-, 50%-, 90%-Perzentil mit einer 90-Tage Zeitspanne definiert werden. Während sich die ersten und dritten Fuzzy-Sets ausschließen und nach unten mit 0 festgelegt bzw. nach oben offen sind, kommt es für das zweite Fuzzy-Set zu Überschneidungen mit den angrenzenden Sets. Neben der eindeutigen Beschreibung einer Konzentration über den Median mit der Zugehörigkeit 1 ist diese Menge über den oberen Grenzwert des ersten Sets und den unteren Grenzwert des dritten Sets abzubilden.

Für die Fuzzy-Sets werden die scharfen Grenzwerte als zentrierte Lagemaße mit einer Zeitspanne von 90 Tagen wie folgt festgelegt:

1. Fuzzy-Set low:  
10%-Perzentile, 50%-Perzentile (vgl. Abb. 4-3-a).
2. Fuzzy-Set medium:  
10%-Perzentile, 50%-Perzentile, 90%-Perzentile (vgl. Abb. 4-3-b).
3. Fuzzy-Set high:  
50%-Perzentile, 90%-Perzentile (vgl. Abb. 4-3-c).

Die definierten Grenzwerte der einzelnen Fuzzy-Sets bilden die Eckpunkte für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktionen (vgl. Abb. 4-3-a-b-c). Mit anschließender Zusammenführung der drei Sets wird die Grundlage für die Fuzzifizierung der Filterparameter Messgröße grafisch in Abb. 4-3-d beschrieben.

Die meteorologische Messgröße der Relativen Feuchte erfordert eine abweichende Ermittlung der festen Grenzwerte für die drei Fuzzy-Sets. Wie in Kapitel 2.3.4 (vgl. Seite 21) dargestellt, stört der jahreszeitliche Verlauf der Messgröße die Verwendung als Tracer für Luftmassen aus größeren Höhen. Für das Erkennen eines niedrigen Wertes der Relativen Feuchte aus der Messreihe der Station selbst bedeutet dies, dass die Ermittlung der Gleitenden Perzentile fix für einen Jahresgang sowie aus einer Datensequenz ohne Sommermonate erfolgen muss. Bereits im April sind die Werte der Relativen Feuchte sehr hoch, so dass die Perzentile für die ausgewählte Zeitspanne aus dem Winterhalbjahr der sechs Monate von Oktober bis Dezember und Januar bis März gebildet werden. Insgesamt liegen für den Filterparameter Relative Feuchte pro Jahr jeweils drei Werte für das 10%,- 50%- und 90%-Perzentil vor.

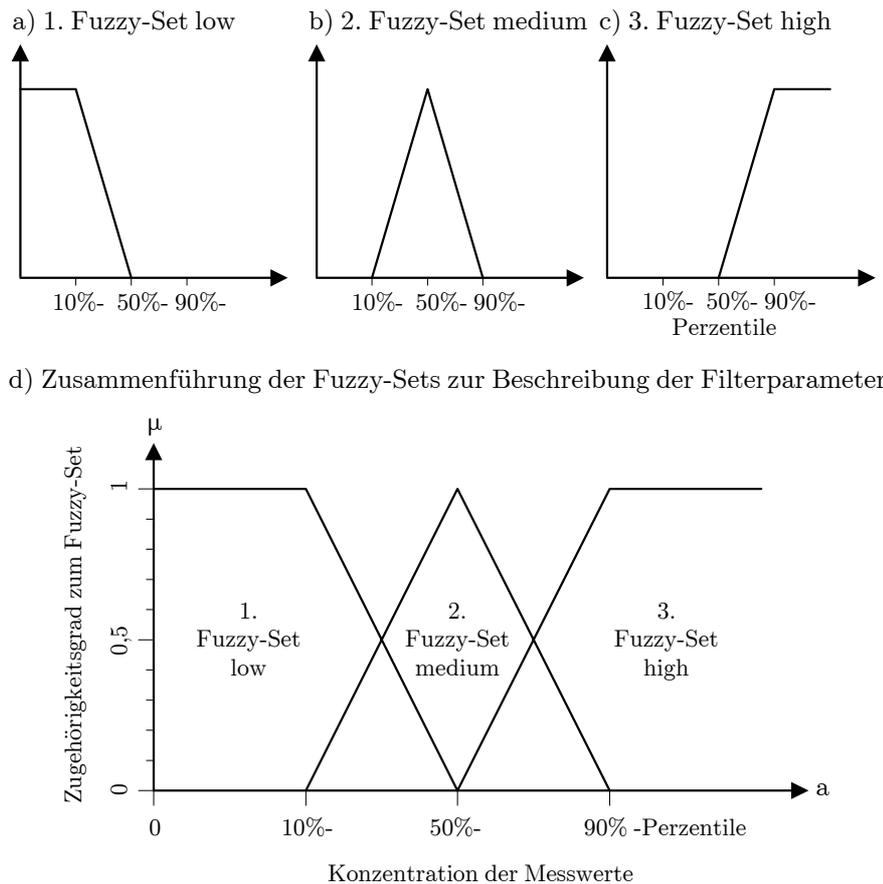


Abb. 4-3 Fuzzy-Sets für den Filterparameter Messgröße

Schematische Darstellung der Fuzzy-Sets mit zugehörigen Grenzwerten als Grundlage für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion

#### Zugehörigkeitsfunktion

Allgemein wird der quantitative Zusammenhang zwischen den Messwerten als scharfe Grundwerte und den linguistischen Variablenwerten durch die Zugehörigkeitsfunktion  $\mu(g, l)$  ausgedrückt. Die Funktion  $\mu(g, l)$  ist eine reelle Funktion der beiden Variablen  $g$  vom Typ Grundwert und  $l$  vom Typ linguistischer Wert, für die gilt:

$$0 \leq \mu(g, l) \leq 1, \text{ für jeden Wert von } g \text{ und } l. \quad (4.1)$$

Für die Abstrakte Größe  $A$  als Konzentration einer Messgröße wird im folgenden ihre Grundmenge mit  $A$  bezeichnet, die zugehörige linguistische Menge als  $S$ .

Die Messwerte - angegeben in Volumenkonzentration - stellen die Menge der Grundwerte  $\{a\}$  mit Werten  $\geq 0$  dar, so dass die

$$\text{Grundwertmenge } A = \{ a \text{ [ppbv]}; a \geq 0 \} \text{ lautet.} \quad (4.2)$$

Entsprechend der spezifischen Einheit für

Natürliche Radioaktivität:

$$\text{Grundwertmenge } A_{\text{Rad}} = \{ a_{\text{Rad}} \text{ [Bq/m}^3\text{]}; a_{\text{Rad}} \geq 0 \},$$

Beryllium-7:

$$\text{Grundwertmenge } A_{\text{Be7}} = \{ a_{\text{Be7}} \text{ [mBq/m}^3\text{]}; a_{\text{Be7}} \geq 0 \}.$$

Relative Feuchte:

$$\text{Grundwertmenge } A_{\text{Hum}} = \{ a_{\text{Hum}} \text{ [%]}; a_{\text{Hum}} \geq 0 \}.$$

Die linguistische Wertemenge  $S$  mit ihren Elementen  $\{s\}$  ist mit Benennung der Fuzzy-Sets festgelegt, so dass für die Abstrakte Größe  $A$  die

$$\text{Linguistische Wertemenge } S = \{ \text{low, medium, high} \} \text{ lautet.} \quad (4.3)$$

Die Messgrößen sind stetige Grundwerte und die Aufstellung ihrer Zugehörigkeitsfunktion  $\mu(a, s)$  wird mathematisch für jeden linguistischen Wert  $s$  definiert (vgl. hierzu grafische Darstellung in Abb. 4-3-a-b-c):

für den linguistischen Wert  $s_1 = \text{low}$

$$\mu(a_t, s_1) = \begin{cases} 1 & \text{für } a_t \leq p_{10,t} \\ \frac{p_{50,t} - a_t}{p_{50,t} - p_{10,t}} & \text{für } p_{10,t} < a_t < p_{50,t} \\ 0 & \text{für } a_t \geq p_{50,t} \end{cases} \quad (4.4)$$

für den linguistischen Wert  $s_2 = \text{medium}$

$$\mu(a_t, s_2) = \begin{cases} 1 & \text{für } a_t = p_{50,t} \\ \frac{a_t - p_{10,t}}{p_{50,t} - p_{10,t}} & \text{für } p_{10,t} < a_t < p_{50,t} \\ \frac{p_{90,t} - a_t}{p_{90,t} - p_{50,t}} & \text{für } p_{50,t} < a_t < p_{90,t} \\ 0 & \text{für } (a_t \leq p_{10,t}) \cup (a_t \geq p_{90,t}) \end{cases} \quad (4.5)$$

für den linguistischen Wert  $s_3 = \text{high}$

$$\mu(a_t, s_3) = \begin{cases} 1 & \text{für } a_t \geq p_{90,t} \\ \frac{a_t - p_{50,t}}{p_{90,t} - p_{50,t}} & \text{für } p_{50,t} < a_t < p_{90,t} \\ 0 & \text{für } a_t \leq p_{50,t} \end{cases} \quad (4.6)$$

mit

$a$	$\{a \text{ [ppbv]}; a_{\text{Rad}} \text{ [Bq/m}^3\text{]}; a_{\text{Be7}} \text{ [mBq/m}^3\text{]}; a_{\text{Hum}} \text{ [%]}\}$
$a_t$	Konzentration zum Zeitpunkt $t$
$p$	Zentrierte Gleitende Perzentile mit 90-Tage-Zeitspanne: (Rel.Feuchte als fixe Perzentile eines Winterhalbjahres !)
$p_{10t}$	10%-Perzentile zum Zeitpunkt $t$ ,
$p_{50t}$	50%-Perzentile (Median) zum Zeitpunkt $t$ ,
$p_{90t}$	90%-Perzentile zum Zeitpunkt $t$ .

Die aufgestellten Funktionen werden für jeden Halbstundenwert des Filterparameters Messgröße mit ihren zugehörigen gleitenden Perzentil-Werten durchlaufen, für den Filterparameter Beryllium-7 entsprechend seiner niedrigeren Auflösung für jeden Tagesmittelwert. Als Resultat der Fuzzifizierung der Filterparameter liegt für jeden Grundwert der Abstrakten Größe  $A$  eine graduelle Zuordnung von 0 bis 1 zu den formulierten Fuzzy-Sets vor, die die sogenannten Fuzzy-Inputs darstellen. Für jeden Halbstundenwert beträgt die Summe der Fuzzy-Inputs 1; es gilt:

$$\mu(a_t, s_1) + \mu(a_t, s_2) + \mu(a_t, s_3) = 1, \quad (4.7)$$

mit  $0 \leq \mu(a, s) \leq 1$ , für jeden Wert von  $a$  und  $s$ .

Das nachfolgende Beispiel verdeutlicht die Vorgehensweise der Fuzzifizierung, die für jeden Halbstundenwert der luftchemischen Messreihen durchlaufen wird.

#### Beispiel 4.1

Für den Datensatz Kohlenmonoxid mit Halbstundenwert 12.02.1996 12:30:

$t = \#12.02.1996\ 12:30\#$

$a_{CO_t} = 160,24\ \text{ppbv}$

$p_{10t} = 113,65\ \text{ppbv}$

$p_{50t} = 147,97\ \text{ppbv}$

$p_{90t} = 209,86\ \text{ppbv}$

beträgt die Zugehörigkeit  $\mu(a_{CO_t}, s)$  zu den drei linguistischen Wertemengen nach den Funktionen 4.4, 4.5, 4.6 zum Zeitpunkt  $t$ :

$\mu(160,24, s_1) = 0,0$

$\mu(160,24, s_2) = 0,802$

$\mu(160,24, s_3) = 0,198$

und die Fuzzy-Inputs für den Halbstundenwert  $\#12.02.1996\ 12:30\#$  von Kohlenmonoxid lauten:

Zugehörigkeit von 0,0 zum 1. Fuzzy-Set low,

Zugehörigkeit von 0,8 zum 2. Fuzzy-Set medium und

Zugehörigkeit von 0,2 zum 3. Fuzzy-Set high.

Für jeden Messwert wird nach den drei definierten Fuzzy-Sets eine Zugehörigkeit ermittelt und als Ergebnis drei Fuzzy-Inputs ausgegeben. Grafisch ist die mathematische Beschreibung für den aufgeführten Beispieldatensatz wie in Abb. 4-4 dargestellt zu verstehen.

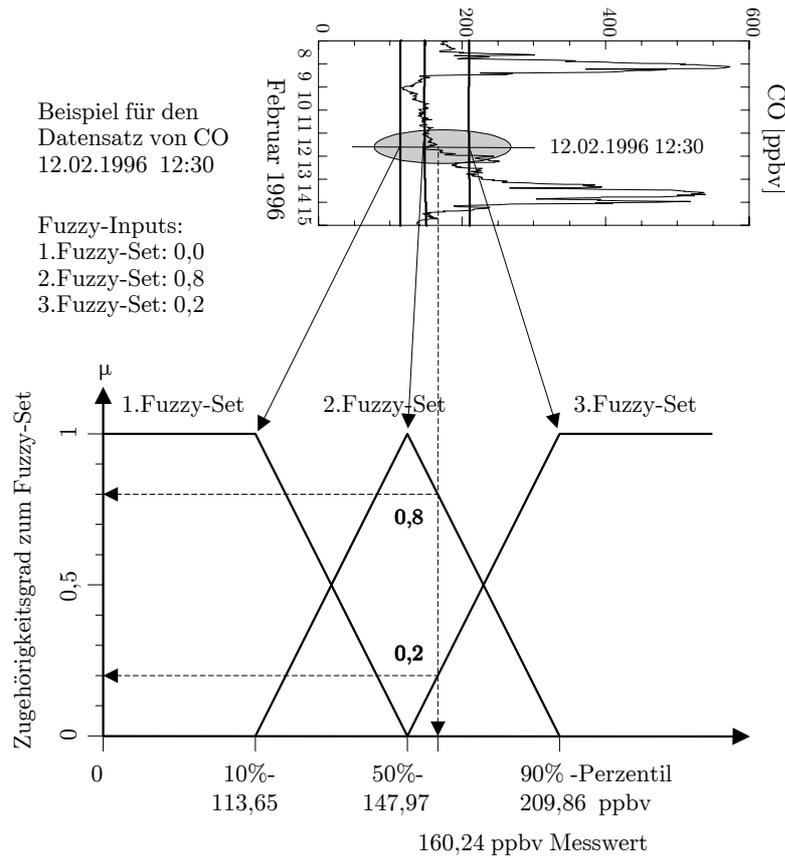


Abb. 4-4 Fuzzifizierung für den Filterparameter Messgröße

Schematische Beispiel-Darstellung für die Fuzzifizierung eines CO-Messwertes:  
Der Halbstundenwert der Kohlenmonoxid-Konzentration beträgt am 12.02.1996 12:30 MEZ 160,24 ppbv. Mit den zugehörigen zentrierten gleitenden 10%-, 50%- und 90%-Perzentilen von 113,65, 147,97 und 209,86 ppbv als eindeutig scharfe Grenzwerte werden die Eckpunkte der Fuzzy-Sets beschrieben. Für den Eintrag des Halbstundenwertes in die Funktionsgrafik ist die Skala der Konzentration linear zwischen den Perzentil-Werten zu interpolieren. Die Schnittpunkte der eingetragenen Geraden des Messwertes mit den Funktionsgraphen der Fuzzy-Sets zeigen die Zugehörigkeit zum entsprechenden Set an, die 0,8 zum 2. Fuzzy-Set und 0,2 zum 3. Fuzzy-Set beträgt.

### 4.3.2 Filterparameter Trajektorienverlauf

Eine Beeinflussung der Messungen an der Station durch synoptisch bedingte Hebungsvorgänge ist in Verbindung mit einem Aufenthalt der zurückverfolgten Luftmassen in der Grundsicht und einer für die Station relevanten Konzentrationsaufnahme zu setzen. Das Ziel, die synoptisch bedingten Hebungsprozesse im zurückliegenden Verlauf der an die Station herantransportierten Luftmassen über Rückwärtstrajektorien abzuleiten, beinhaltet die Analyse des vertikalen Trajektorien-Verlaufs hinsichtlich eines Aufenthalts in der Grundsicht. Die zusätzliche Bewertung eines Aufenthalts in der Grundsicht im Hinblick auf eine mögliche Schadstoffaufnahme, die zu einer Veränderung der Konzentration an der Station zugspitze führen könnte, erfolgt über eine räumliche Auswertung in Verbindung mit einem Emissions-Inventar. Die unscharfe Formulierung eines Trajektorienverlaufs beinhaltet folglich die zwei Kriterien Konzentrationsänderung und Aufenthaltshöhe und ist aufgrund der Datenstruktur einer Trajektorie komplexer als die unscharfe Beschreibung einer Messgröße. Nach Formulierung der Fuzzy-Sets ist zunächst eine Fuzzifizierung der beiden Kriterien erforderlich, die mit ihren Fuzzy-Inputs als Grundlage in die Zugehörigkeitsfunktion eingehen.

Eine mögliche Konzentrationsänderung an der Station durch synoptisch bedingte Hebungsvorgänge erfordert die Betrachtung des gesamten zurückliegenden Verlaufs der Luftmassen hinsichtlich eines Aufenthalts in Höhen der Grundsicht in Verbindung mit einer für die Station potentiell relevanten Konzentrationsaufnahme. Mit einer bis zu 4-tägigen Rückverfolgung in stündlicher Auflösung liegen für eine Trajektorie maximal 96 Datensätze vor. Diese Datensätze beschreiben den Verlauf der zurückverfolgten Luftmassen und werden in ihrer Summe als Trajektorienverlauf bezeichnet, ihre einzelnen Stundenangaben als Trajektorienverlauf-Stunden.

Die Beschreibung der Fuzzy-Sets eines Trajektorienverlaufs basiert auf den zwei Kriterien Konzentrationsänderung und Aufenthaltshöhe. Aufgrund des direkten Zusammenhangs zwischen Aufenthaltshöhe und einer damit verbundenen Konzentrationsänderung ist der Prozess der Fuzzifizierung eines Trajektorienverlaufs auf der Ebene der Trajektorienverlauf-Stunden durchzuführen und stellt die Grundlage für die zweite Ebene mit der Beschreibung eines Trajektorienverlaufs dar. Für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion der zuvor aufgeführten Fuzzy-Sets ist die Ermittlung einer Konzentrationsänderung auf Basis eines Emissions-Inventars mit anschließender unscharfer Formulierung und die Fuzzifizierung der Aufenthaltshöhe voranzustellen.

Die Zugehörigkeitsfunktion für die formulierten Fuzzy-Sets eines Trajektorienverlaufs ergibt sich aus den Fuzzy-Inputs der beiden unscharf formulierten Kriterien. Nach Berücksichtigung der bedingten Formulierung der beiden Kriterien auf Ebene der Trajektorienverlauf-Stunden erfolgt die Zusammenführung für einen jeweiligen Trajektorienverlauf, wobei die Methodik der Zusammenführung aus dem inhaltlichen Zusammenhang heraus folgt.

#### Fuzzy-Sets Trajektorienverlauf

Die Festlegung der Fuzzy-Sets für einen Trajektorienverlauf orientiert sich an der formulierten Forderung nach einem Aufenthalt in der Grundsicht und einer damit potentiellen verbundenen Konzentrationsaufnahme in Bezug zur Station.

Für die Filterparameter Trajektorienverlauf mit Aufenthalt in Höhen der Grundsicht und einer damit verbundenen möglichen Konzentrationsänderung, nachfolgend als Abstrakte Größe B bezeichnet, lauten die zugehörigen Fuzzy-Sets:

1. Fuzzy-Set BL\_nonPeak: Menge der Trajektorienverläufe mit Aufenthalt in Höhen der Grundsicht (BoundaryLayer) und einer damit verbundenen Konzentrationsänderung in der Größenordnung einer nicht nachweisbaren Konzentrationsänderung (nonPeak) an der Station,
2. Fuzzy-Set BL\_Peak: Menge der Trajektorienverläufe mit Aufenthalt in Höhen der Grundsicht (BoundaryLayer) und einer damit verbundenen Konzentrationsaufnahme in der Größenordnung einer nachweisbaren Störung in der Messreihe (Peak) an der Station.

Die Abstrakte Größe B setzt sich aus der Abstrakten Größe C (Kriterium Konzentrationsänderung) und der Abstrakten Größe D (Kriterium Aufenthaltshöhe) zusammen, die nachfolgend dargestellt werden.

#### 4.3.2.1 Kriterium Konzentrationsänderung

Das Kriterium Konzentrationsänderung, nachfolgend als Abstrakte Größe C bezeichnet, beinhaltet eine räumliche Auswertung und erfordert zunächst die Ermittlung der generellen Möglichkeit einer Konzentrationsaufnahme. Eine Möglichkeit, die Konzentrationsaufnahme abzuschätzen, ist die Verbindung der räumlichen Lagekoordinaten von Trajektorienverlauf-Stunden mit dem in Kapitel 2.3.3 vorgestellten kombinierten Emissions-Inventar. Weiter ist die auf Basis des Emissions-Inventars ermittelte Konzentrationsaufnahme als potentielle Konzentrationsänderung in Bezug zur Station zu setzen, da mit dem Transport der Luftmassen an die Station hinsichtlich Zeit und Entfernung eine Verdünnung der aufgenommenen Konzentration verbunden ist. Da die Verfahren zur Abschätzung einer potentiellen Konzentrationsänderung gewisse Unsicherheiten beinhalten, wird das Kriterium qualitativ mit einer unscharfen Formulierung einer Konzentrationsänderung an der Station beschrieben. Die anschließende unscharfe Formulierung einer möglichen Konzentrationsänderung an der Station erfolgt vor dem Hintergrund einer nachweisbaren Störung in der Messreihe.

##### Ermittlung einer Konzentrationsänderung

Die Ermittlung einer möglichen Konzentrationsänderung bei Aufenthalt der zurückverfolgten Luftmassen in der Grundsicht erfolgt in Verbindung mit dem in Kapitel 2.3.3 (vgl. Seite 18) vorgestellten kombinierten Emissions-Inventar COARSE2-EMEP50-Grid. Das äquidistante Grid enthält Angaben über Quellstärken bodennah emittierter Spurengase aus dem hochauflösenden COARSE-Grid in Ergänzung um Angaben aus dem EMEP-Grid für Randbereiche und ist den Trajektorienverlauf-Stunden über die geographische Lagekoordinaten mit einer Genauigkeit von 1/10 Gradangabe zuzuordnen. Mit der Forderung nach einer potentiellen Konzentrationsänderung an der Station ist für die Angabe aus dem Emissions-Inventar der chemische Abbau und die Verdünnung entlang des Transportweges zu berücksichtigen.

Die Abschätzung einer möglichen Konzentrationsänderung über die Gridinformationen aus einem Emissions-Inventar erfolgt in Anlehnung an die methodischen Grundlagen von dem Modell „Ecosense - an Integrated Environmental Impact Assessment Model“, dass in [KREWITT ET AL., 1995] beschrieben ist. Mit Verwendung des EMEP-Inventars als Modellbasis für die Ermittlung einer Konzentrationsaufnahme sind diesbezüglich die in dem Modell getroffenen Annahmen übertragbar:

- die Ausbreitung der bodennah emittierten Spurengase erfolgt als homogene Vermischung innerhalb der Grundsicht,
- die Betrachtung der zurückverfolgten Luftmassen erfolgt von Punkt zu Punkt unter additivem Aufsammeln von Emissionen,
- der zeitliche Abstand zwischen den betrachteten Punkten beträgt aufgrund der Angabe der Lagekoordinaten einer Trajektorie jeweils eine Stunde,
- die Berücksichtigung des chemischen Abbaus der Spurengase auf dem Transportweg wird über die zugehörige atmosphärische Verweilzeit angenähert,
- für Spurengase mit einer höheren atmosphärischen Verweilzeit als der Zeitraum der betrachteten Zurückverfolgung wird ohne Annahme einer Hintergrundkonzentration eine Konzentrationsänderung ermittelt.

Da die Bewertung eines Aufenthalts in der Grundsicht unter Einbezug von Fuzzy-Logic und unter Berücksichtigung des zweiten Kriteriums der Aufenthaltshöhe durchgeführt wird, erfolgt das additive Aufsammeln der Emissionen erst in der Bewertung eines Trajektorienverlaufs. Hierfür sind zunächst die mit dem Emissions-Inventar ermittelten Quellstärken für die einzelnen Trajektorienverlauf-Stunden separat in Bezug zu einer möglichen Konzentrationsänderung zur Station zu bestimmen.

Mit einer stündlichen Betrachtung von Punkt zu Punkt ist die Quellstärke mit Angabe in Tonnen pro  $\text{km}^2$  und Jahr als Information aus dem Emissions-Inventar auf die zeitliche Einheit eines stündlichen Aufenthalts zu setzen. Da der Zeitbezug des Inventars für einen stündlichen Aufenthalt der zurückverfolgten Luftmassen höher aufgelöst werden muss, ist die ermittelte Emissionsangabe für die Trajektorienverlauf-Stunden aufgrund einer gewissen Unsicherheit zur tatsächlichen Emission insgesamt nur als Potential einer Emissionsaufnahme zu bewerten. Für die Abschätzung einer möglichen Konzentrationsänderung wird ein konservativer Ansatz gewählt, der zugrunde legt, dass Spurengase zeitlich betrachtet nicht gleichmäßig, sondern während eines 8-stündigen Zeitraumes pro Tag emittiert werden, was insbesondere für verkehrsbedingte Emissionen bedeutend ist.

Zusätzlich ist für Spurengase mit einer relativ hohen atmosphärischen Verweilzeit, wie für das Tracergas Kohlenmonoxid, die zunehmende Bedeutung advektiver Transportvorgänge mit der Entfernung zur Station zu berücksichtigen. Eine Abschätzung der mit dem Transportweg verbundenen Verdünnung einer Konzentration erfolgt unter Verwendung einer Gauss'schen Ausbreitungsberechnung in Anlehnung an die [VDI-RICHTLINIE 3782, 2000]. Die Gauss'sche Ausbreitungsgleichung folgt aus der statistischen Theorie der Turbulenz und simuliert allgemein den Prozess der Diffusion und des advektiven Transports von emittierten Stoffen. Das Berechnungsverfahren basiert auf der Annahme einer Gauss'schen Diffusion und beinhaltet die analytische Lösung einer stark vereinfachten Form der Advektions-Diffusionsgleichung.

Voraussetzung zur Ermittlung einer Konzentration durch Beschreibung einer zweidimensionalen Gauss-Verteilung ist das Überwiegen der Advektion in x-Richtung gegenüber den turbulenzbedingten Vorgängen, so dass Diffusionseffekte in dieser Richtung vernachlässigt werden können. Darüber hinaus wird mit dem Ansatz vereinfacht angenommen, dass die in y- und z-Richtung verlaufenden Diffusionsbewegungen einer Gauss-Verteilung folgen. Die Streuungsparameter  $\sigma_y$  und  $\sigma_z$  der zweidimensionalen gaussförmigen Konzentrationsverteilung beschreiben die mit der Entfernung von der Quelle zunehmende Aufweitung der Abgasfahne, wobei die Abhängigkeit von der Entfernung durch Potenzansätze beschrieben werden, die auf empirisch ermittelten Diffusionsexperimenten basieren. Mit Anpassung der Eingangparameter, wie die der Diffusionsparameter, kann das zum Teil eingeschränkte Anwendungsgebiet der Gauss-Gleichung für ursprünglich geringe Entfernungen kompensiert werden.

Eine Ableitung der empirisch ermittelten Ausbreitungsparameter erfolgt nach einer Studie von [PFEIFFER, WINKLER, 2001], in der Transportmechanismen eines inerten Spurenstoffes mit einem regionalen Meteorologie- und Transportmodell simuliert wurden und eine Abschätzung für die Größenordnung einer Verdünnung des betrachteten Tracers als relative Konzentrationen zulassen.

Daneben ist für die Anwendung der Gauss'schen Diffusionsgleichung die Bestimmung der x-Richtung notwendig. Die Entfernung zwischen einer Trajektorienverlauf-Stunde und der Station ergibt sich aus dem zurückliegenden Trajektorienverlauf und erfordert eine Punkt-zu-Punkt-Betrachtung entlang einer Trajektorie. Die Berechnung der euklidischen Distanz zwischen zwei Punkten mit geographischen Lagekoordinaten in Dezimalangabe erfolgt in einer Ableitung nach [KUNTZ, 1983]:

$$L_d = \arccos\left(\sin\left(b_1 \times \frac{\pi}{180}\right) \times \sin\left(b_2 \times \frac{\pi}{180}\right) + \right. \quad (4.8)$$

$$\left. \cos\left(b_1 \times \frac{\pi}{180}\right) \times \cos\left(b_2 \times \frac{\pi}{180}\right) \times \cos\left(\left(l_2 \times \frac{\pi}{180}\right) - \left(l_1 \times \frac{\pi}{180}\right)\right)\right) \times r_a$$

mit

$L_d$	Distanz zwischen Punkt 1 und Punkt 2 in [km]
$b_1, b_2$	geographische Breite von Punkt 1 und Punkt 2
$l_1, l_2$	geographische Länge von Punkt 1 und Punkt 2
$r_a$	Erdradius [km]

Die Berücksichtigung des chemischen Abbaus erfolgt aus der atmosphärischen Verweilzeit des betrachteten Spurengases und der effektiven Reisezeit über die Angabe der zurückverfolgten Stunde des Trajektorien-Datensatzes. Hierfür ist nach der [VDI-RICHTLINIE 3782, 2000] die Gauss'sche Formel um die Abbaurrate durch Multiplikation des rechten Terms zu ergänzen, wobei die Exponentialfunktion wiederum als analytische Auflösung der impliziten Abhängigkeit ingeht.

Mit Anpassung der Ausbreitungsparameter für die Gauss-Streuung wird für jede Trajektorienverlauf-Stunde in Verbindung mit dem Emissions-Inventar für einen Aufenthalt in der Grundschicht unterhalb der angenommenen maximalen Grundschichthöhe eine mögliche Konzentrationsänderung in Bezug zur Station durch eine zweidimensionale Gauss-Verteilung nach [VDI-RICHTLINIE 3782, 2000] beschrieben:

$$c(x, y, z, t) = \frac{Q_0}{2\pi u \sigma(x)_y \sigma(x)_z} \exp\left[-\frac{y^2}{2\sigma(x)_y^2}\right] \times \left(\exp\left[-\frac{(z-H)^2}{2\sigma(x)_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+H)^2}{2\sigma(x)_z^2}\right]\right) \exp\left(-\frac{1}{\tau}t\right) \quad (4.9)$$

mit

$c(x,y,z,t)$	Massenkonzentration [ $\text{tkm}^{-3}$ ] des Spurengases zum Zeitpunkt $t$ an der Station einer Trajektorienverlaufstunde
$x, y, z$	kartesische Koordinaten des Aufpunktes, $x$ zeigt die Windrichtung, $z$ in die vertikale, $y$ ist die horizontale Koordinate quer zur Windrichtung.
$z$	Höhe des Aufpunktes [km]
$Q_0$	Emissionsmassenstrom [ $\text{th}^{-1}$ ]
$H$	effektive Quellhöhe [km]
$\sigma_y, \sigma_z$	horizontale und vertikale Ausbreitungsparameter Streuung der Gauss-Verteilung
$u$	repräsentative Transportgeschwindigkeit [ $\text{kmh}^{-1}$ ]
$t$	effektive Reisezeit [h]
$\tau$	atmosphärische Verweilzeit [h] des Spurengases

Für Spurengase wie Kohlenmonoxid mit einer hohen atmosphärischen Verweilzeit größer als der Zeitraum der Zurückverfolgung entspricht die ermittelte Konzentration ohne Annahme einer Hintergrund-Konzentration einer Konzentrationsänderung.

$$c(x,y,z,t) = \Delta c(x,y,z,t) \text{ für Spurengase mit } \tau > t$$

Die Umrechnung der ermittelten Angabe als Massenkonzentrationen mit der Einheit t pro km<sup>3</sup> in Volumenkonzentrationen (Parts per Million) erfolgt aus der allgemeinen Gasgleichung für den Umgebungszustand mit 1013 hPa Umgebungsdruck und 10°C Umgebungstemperatur nach [MLUS, 1996]:

$$c_i[\text{ppmv}] = 23,53 \times \frac{K_i \left[ \frac{\text{mg} \times \text{m}^{-3}}{\text{kg} \times \text{kmol}^{-1}} \right]}{M_i} \times 1000 \quad (4.10)$$

mit

$c_i$	Volumenkonzentration in ppmv, 10 <sup>9</sup> Raumteile eines Gases i
$K_i$	Massenkonzentration des Stoffes i [kg/m <sup>3</sup> ]
$M_i$	Molmasse des Stoffes i [kg/kmol]

Ergebnis der Auswertung des räumlichen Bezugs der Trajektorienverlauf-Stunden unter Zusammenführung der Angaben des Emissions-Inventars ist eine Konzentrationsangabe in ppbv, die eine mögliche Änderung der luftchemischen Messgröße beinhaltet.

Der Datensatz der Rückwärtstrajektorien wird für jede zurückverfolgte Stunde eines Trajektorienverlaufs um die Information einer möglichen Konzentrationsänderung bei Aufenthalt in der Grundschicht ergänzt.

#### Fuzzy-Sets Kriterium Konzentrationsänderung

Vor dem Hintergrund der linguistischen Formulierung der Filterparameter Trajektorienverlauf ist für die ermittelten Konzentrationsänderungen  $\Delta c$  im Zusammenhang einer Trajektorienverlauf-Stunde eine Fuzzifizierung durchzuführen. Eine Beeinflussung der Messungen bei Aufenthalt der zurückverfolgten Luftmassen unterhalb der angenommen maximalen Grundschichthöhe findet erst statt, wenn die ermittelte Konzentrationsänderung  $\Delta c$  eine bestimmte Größenordnung erreicht. Während Konzentrationsänderungen in Höhe der Nachweisgrenze nicht auf eine messbare Beeinflussung der Werte zurückzuführen sind, sind solche Konzentrationsänderungen entscheidend, die zu einer Störung in der Messreihe führen können.

In Anlehnung an die formulierten Fuzzy-Sets für die Abstrakte Größe B lauten die Fuzzy-Sets für das nachfolgend als Abstrakte Größe C bezeichnete Kriterium potentielle Konzentrationsänderung an der Station im Zusammenhang einer Trajektorienverlauf-Stunde:

1. Fuzzy-Set nonPeak: Menge der Konzentrationsänderungen  $\Delta c$  im Zusammenhang mit Trajektorienverlauf-Stunden in der Größenordnung einer nicht nachweisbaren Beeinflussung der Messung (nonPeak).
2. Fuzzy-Set Peak: Menge der Konzentrationsänderungen  $\Delta c$  im Zusammenhang mit Trajektorienverlauf-Stunden in der Größenordnung einer nachweisbaren Störung in der Messreihe (Peak).

Die Festlegung des unteren und oberen Grenzwertes für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion orientiert sich an einer möglichen Ausprägung in der Messreihe. Nicht nachweisbare Konzentrationsänderungen sind solche, die unterhalb der Nachweisgrenze des Spurengases liegen und beschreiben in der Zugehörigkeitsfunktion den unteren scharfen Grenzwert. Das Erkennen einer Störung in der Messreihe selbst ist im Rahmen der Filterparameter Messgröße formuliert worden. Mit der Annahme einer mittleren Hintergrund-Konzentration ist eine Messreihe dann durch eine Konzentrationsänderung gestört, wenn die zusätzliche Konzentration  $\Delta c$  zur Registrierung einer hohen Konzentration als Peak in der Messreihe führt. Hiernach ergibt sich der obere scharfe Grenzwert für die Zugehörigkeitsfunktion aus der Differenz zwischen dem Median und dem 90%-Perzentil-Wert, der zuvor für die Filterparameter Messgröße als Messwert mit hoher Konzentration definiert wurde.

Für die Fuzzy-Sets werden die scharfen Grenzwerte wie folgt festgelegt:

1. Fuzzy-Set nonPeak:  
Nachweisgrenze, Differenz zwischen 90%- und 50%-Perzentil.
2. Fuzzy-Set Peak:  
Nachweisgrenze, Differenz zwischen 90%- und 50%-Perzentil.

Die definierten Grenzwerte der beiden Fuzzy-Sets bilden die Eckpunkte für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktionen (vgl. Abb. 4-5-a-b). Mit anschließender Zusammenführung der zwei Sets wird die Grundlage für die Fuzzifizierung der Konzentrationsänderung einer Trajektorienverlauf-Stunde grafisch in Abb. 4-5-c beschrieben.

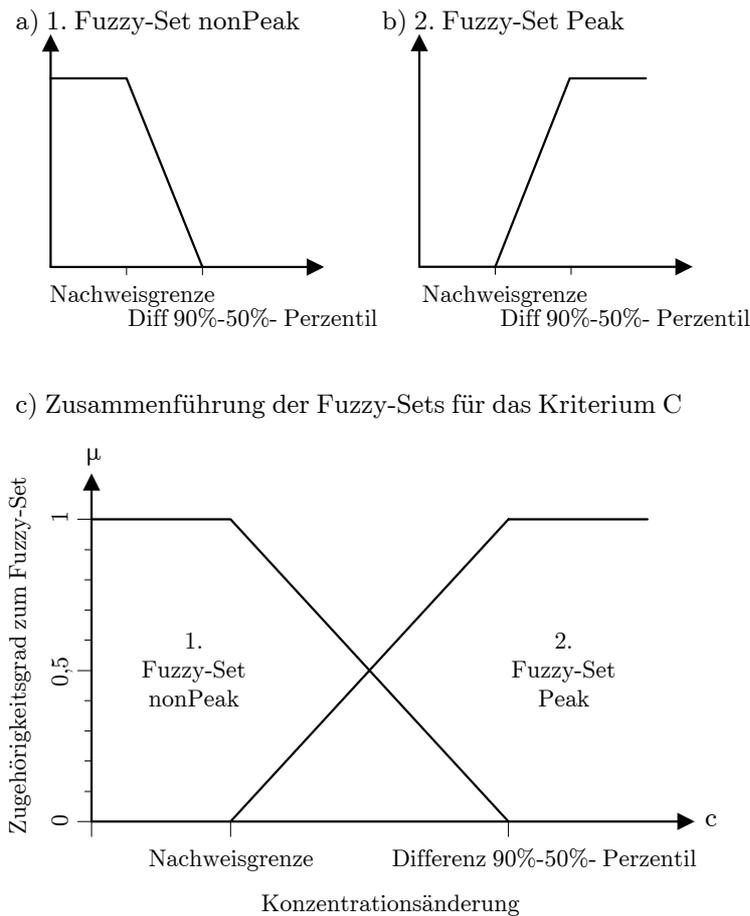


Abb. 4-5 Fuzzy-Sets - Filterparameter-Kriterium Konzentrationsänderung  
Schematische Darstellung der Fuzzy-Sets mit zugehörigen Grenzwerten als Grundlage für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion.

#### Zugehörigkeitsfunktion Kriterium Konzentrationsänderung

Im folgenden wird für die Abstrakte Größe C die Grundmenge der Konzentrationsänderungen  $\Delta c$  im Zusammenhang mit Trajektorienverlauf-Stunden mit C bezeichnet, die zugehörige linguistische Menge als V.

Die für die in Verbindung mit Trajektorienverlauf-Stunden ermittelten Konzentrationsänderungen angegeben in Volumenkonzentration stellen die Menge der Grundwerte  $\{c\}$  mit Werten  $\geq 0$  dar, so dass die

$$\text{Grundwertmenge } C = \{ c \text{ [ppbv]}; c \geq 0 \} \text{ lautet.} \quad (4.11)$$

Die linguistische Wertemenge  $V$  mit ihren Elementen  $\{v\}$  ist mit den Fuzzy-Sets beschrieben und lautet für die Abstrakte Größe  $C$ :

$$\text{Linguistische Wertemenge } V = \{\text{nonPeak}, \text{Peak}\}. \quad (4.12)$$

Die Angaben der Konzentrationsänderung sind stetige Grundwerte und die Aufstellung ihrer Zugehörigkeitsfunktion  $\mu(c, v)$  wird mathematisch für jeden linguistischen Wert  $v$  definiert:

für den linguistischen Wert  $v_1 = \text{nonPeak}$

$$\mu(c_t, v_1) = \begin{cases} 1 & \text{für } c_t \leq g_i \\ \frac{d_t - c_t}{d_t - g_i} & \text{für } g_i < c_t < d_t \\ 0 & \text{für } c_t \geq d_t \end{cases} \quad (4.13)$$

für den linguistischen Wert  $v_2 = \text{Peak}$

$$\mu(c_t, v_2) = \begin{cases} 1 & \text{für } c_t \geq d_t \\ \frac{c_t - g_i}{d_t - g_i} & \text{für } g_i < c_t < d_t \\ 0 & \text{für } c_t \leq g_i \end{cases} \quad (4.14)$$

mit

$c$	$\{c \text{ [ppbv]}; c \geq 0\}$
$c_t$	Konzentrationsänderung zum Zeitpunkt $t$
$d_t = p90_t - p50_t$	Störung in der Messreihe, als Differenz von 90%- und 50%-Perzentil
$g_i$	Nachweisgrenze der Messgröße $i = \text{Kohlenmonoxid (5 ppbv)}$

Als Ergebnis der Fuzzifizierung der Konzentrationsänderungen im Zusammenhang mit Trajektorienverlauf-Stunden liegt eine graduelle Zuordnung von 0 und 1 zu den formulierten Fuzzy-Sets vor, es gilt analog zu (4.7):

$$\begin{aligned} \mu(c_t, v_1) + \mu(c_t, v_2) &= 1, \\ \text{mit } 0 \leq \mu(c, v) &\leq 1, \text{ für jeden Wert von } c \text{ und } v. \end{aligned} \quad (4.15)$$

Das folgende Beispiel verdeutlicht den Prozess der Fuzzifizierung einer ermittelten Konzentrationsänderung, die für alle Trajektorienverlauf-Stunden angewendet wird.

#### Beispiel 4.2

Für den Datensatz der 800 hPa-Rückwärtstrajektorie 23.02.1996 12:00 UTC, 29. Stunde der Rückverfolgung (29. Trajektorienverlauf-Stunde):

$t = \#23.02.1996\ 12:00\ UTC,\ 29\ \#$   
 $c_{CO_t} = 46,15\ ppbv$   
 $d_{CO_t} = 64,38\ ppbv$

beträgt die Zugehörigkeit  $\mu(c_t, v)$  zu den zwei linguistischen Wertemengen nach den Funktionen 4.13, 4.14 zum Zeitpunkt  $t$ :

$\mu(46,15, v_1) = 0,307$   
 $\mu(46,15, v_2) = 0,693$

und die Fuzzy-Inputs für die 29. Stunde der Rückverfolgung der Trajektorie 800 hPa,  $\#23.02.1996\ 00:00\ UTC\ \#$  lauten:

Zugehörigkeit von 0,3 zum 1. Fuzzy-Set nonPeak,  
Zugehörigkeit von 0,7 zum 2. Fuzzy-Set Peak.

Für jede Trajektorienverlauf-Stunde wird für eine berechnete Konzentrationsänderung eine Zugehörigkeit zwischen 0 und 1 zu den zwei definierten Fuzzy-Sets ermittelt und als Ergebnis zwei Fuzzy-Inputs ausgegeben. Die grafische Umsetzung der mathematischen Beschreibung zeigt Abb. 4-6.

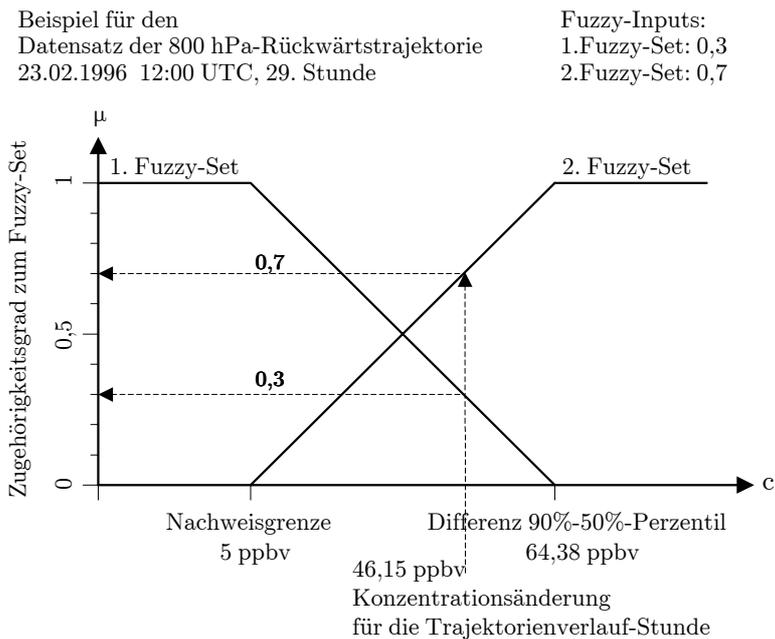


Abb. 4-6 Fuzzifizierung - Filterparameter-Kriterium Konzentrationsänderung

Schematische Beispiel-Darstellung für die Fuzzifizierung einer Konzentrationsänderung als Kriterium für den Filterparameter Trajektorienverlauf:

Die Konzentrationsänderung für die 800 hPa-Rückwärtstrajektorie mit Termin am 23.02.1996 12:00 UTC beträgt für die 29. Stunde der Rückverfolgung 46,15 ppbv. Mit der zugehörigen Differenz zwischen dem 50%- und 90%-Perzentil von 64,38 ppbv und der Nachweisgrenze von 5 ppbv als eindeutig scharfe Grenzwerte werden die Eckpunkte der Fuzzy-Sets beschrieben. Für den Eintrag der Konzentrationsänderung in die Funktionsgrafik ist die Skala der Konzentration linear zu interpolieren. Die Schnittpunkte der eingezeichneten Geraden der Konzentrationsänderung mit den Funktionsgraphen der Fuzzy-Sets zeigen die Zugehörigkeit zum entsprechenden Set an, die 0,3 zum 1. Fuzzy-Set und 0,7 zum 2. Fuzzy-Set beträgt.

#### 4.3.2.2 Kriterium Aufenthaltshöhe

Das Kriterium Aufenthaltshöhe wird nachfolgend als Abstrakte Größe D bezeichnet und erfordert eine Auswertung des vertikalen Trajektorienverlaufs. Für die Bedingung eines Aufenthaltes der zurückverfolgten Luftmassen in Höhen der Grundschicht ist die Festlegung einer Grundschichthöhe aus der Höhenangabe ohne atmosphärische Stabilitätskriterien mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Mit Fuzzifizierung der Aufenthaltshöhe einer Trajektorienverlauf-Stunde wird ein Aufenthalt in der Grundschicht unscharf formuliert und ist mit Verwendung einer Häufigkeitsstatistik für Grundschichthöhen für eine hohe Anzahl meteorologischer Situationen repräsentativ.

### Fuzzy-Sets Aufenthaltshöhe

Mit den Angaben der Rückwärtstrajektorien ist ein möglicher Aufenthalt der Luftmassen in der Grundschicht über die Höhenangabe der Trajektorienverlauf-Stunden abzuleiten und stellt die Grundlage für die Formulierung der Fuzzy-Sets für die Höhenangabe der Rückwärtstrajektorien.

In Anlehnung an die eingangs formulierten Fuzzy-Sets der Abstrakten Größe B Trajektorienverlauf lauten die Fuzzy-Sets für das Kriterium Aufenthaltshöhe der einzelnen Trajektorienverlauf-Stunden:

1. Fuzzy-Set BL: Menge der Trajektorienverlauf-Stunden mit Aufenthalt in Höhen der Grundschicht (BoundaryLayer),
2. Fuzzy-Set FT: Menge der Trajektorienverlauf-Stunden mit Aufenthalt in Höhen der Freien Troposphäre.

Wie in Kapitel 2.3 erläutert, zeigt der Aufbau der Grundschicht neben einem tagesperiodischen Verhalten eine Abhängigkeit von der Jahreszeit. Die thermisch instabile und vertikal gut durchmischte Grundschicht bzw. Mischungsschicht erreicht am Nachmittag ihre maximale Mächtigkeit, nachts beträgt die Mächtigkeit der Grundschicht nur wenige hundert Meter, wobei die darüber liegende Residualschicht als Rest der konvektiven Mischungsschicht vom Tag auch noch Grundschicht typische Konzentrationsverhältnisse beinhaltet.

Mit der Fuzzifizierung wird die konventionelle Festlegung eines Grenzwertes für die Grundschichthöhe mit anschließender binärer Zuordnung zu den beiden Mengen aufgehoben. Dies ist insbesondere für solche Höhenangaben bedeutend, die in direkter Nähe zum konventionellen Grenzwert liegen. Beispielsweise würde mit einem Grenzwert von 2000 m für die Grundschicht demnach eine Höhenangabe von 1999 m in die Menge der Grundschichthöhe und eine Höhenangabe von 2001 m hingegen in die Menge der Höhen für die freie Troposphäre eingeordnet werden.

Für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion mit Zuordnung der Höhenangabe zu den formulierten Fuzzy-Sets sind ein unterer und ein oberer scharfer Grenzwert zu definieren, der jeweils noch eindeutig einer Menge zu zuordnen ist. Der untere scharfe Grenzwert beschreibt die Höhe, die eindeutig der Höhe der Grundschicht und nicht mehr der Höhe der freien Troposphäre entspricht. Der obere scharfe Grenzwert ist diejenige Höhe, ab der die Höhe der Grundschicht eindeutig aufhört und die Höhe der freien Troposphäre erreicht wird.

Die Festlegung des oberen und unteren scharfen Grenzwertes erfolgt unter Berücksichtigung der tages- sowie jahreszeitlichen Periodizität und basiert auf einer empirischen Untersuchung über die relative Häufigkeit der Mischungsschichthöhe nach [GUTSCHE, LEFEBVRE, 1981]. Grundlage der Studie ist die Auswertung von Radiosondenaufstiegen und synoptischen Meldungen an den aerologischen Stationen des Deutschen Wetterdienstes eines 15-jährigen Zeitraums. In Tab. 4-1 sind die aus der Studie abgeleiteten scharfen Grenzwerte für die Fuzzy-Sets differenziert nach Tag- und Nachtwert sowie nach der Jahreszeit aufgeführt.

Die maximale Höhe der Grundschicht beschreibt die Höhe, die von der Grundschicht nicht überschritten wird und der Höhe der freien unteren Troposphäre entspricht. Die minimale Grundschichthöhe ist diejenige Höhe, die eindeutig nicht der

freien Troposphäre entspricht und eine Mächtigkeit als Mindesthöhe der Grundsicht beschreibt. Mit der Angabe der zurückverfolgten Stunde kann die Tageszeit der Trajektorien bestimmt werden. Die Tagesperiodizität wird aus den Höhenangaben des Tageswertes um 15:00 MEZ und des Nachtwertes um 05:00 MEZ linear interpoliert. Beispielsweise beträgt der eindeutig obere Grenzwert für 12:00 MEZ im Juni für die Grundsicht 2600 m, der eindeutig unterer Grenzwert 1350 m.

Mit Verwendung einer Häufigkeitsstatistik als Grundlage für die Festlegung der scharfen Grenzwerte wird eine hohe Anzahl von Grundsichthöhen erfasst, während beispielsweise wenige atypische jahreszeitliche Ausprägungen der Grundsicht unter Umständen nicht ausreichend beschrieben werden.

Tab. 4-1 Grenzwerte für das Filterparameter-Kriterium Aufenthaltshöhe

	Grundsichthöhe [m] Tags (15:00 MEZ)		Grundsichthöhe [m] Nachts (05:00 MEZ)	
	Minimum	Maximum	Minimum	Maximum
Sommer	1000	3000	500	2000
Übergangsmonate	500	2500	250	1500
Winter	250	2000	125	1000
Sommer: Mai, Juni, Juli, August Übergangsmonate: März, April, September, Oktober Winter: Januar, Februar, November, Dezember				

Für die Fuzzy-Sets werden die scharfen Grenzwerte in Abhängigkeit von der Jahres- und Tageszeit nach der in Tab. 4-1 aufgeführten Höhen allgemein wie folgt festgelegt:

1. Fuzzy-Set BL:  
Minimum, Maximum der Grundsichthöhe (vgl. Abb. 4-7-a).
2. Fuzzy-Set FT:  
Minimum, Maximum der Grundsichthöhe (vgl. Abb. 4-7-b).

Die definierten Grenzwerte der beiden Fuzzy-Sets bilden die Eckpunkte für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktionen (vgl. Abb. 4-7-a-b). Mit anschließender Zusammenführung der zwei Sets wird die Grundlage für die Fuzzifizierung der Höhenangabe der Trajektorienverlauf-Stunden grafisch in Abb. 4-7-c beschrieben.

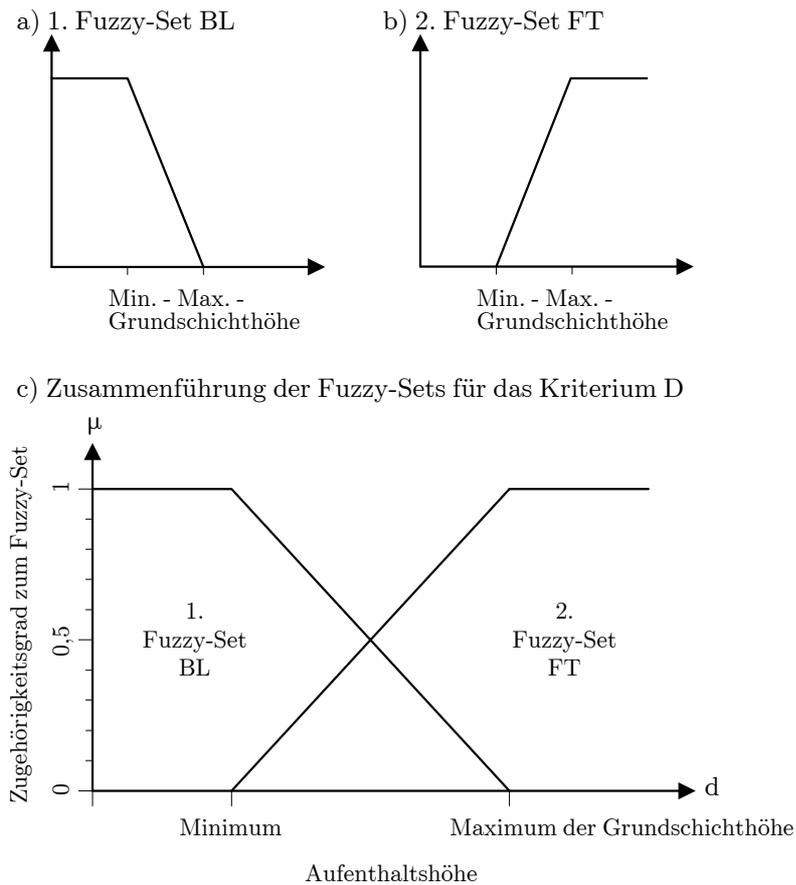


Abb. 4-7 Fuzzy-Sets für das Filterparameter-Kriterium Aufenthaltshöhe  
Schematische Darstellung der Fuzzy-Sets mit zugehörigen Grenzwerten als Grundlage für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion.

#### Zugehörigkeitsfunktion Kriterium Aufenthaltshöhe

Im folgenden wird die Grundmenge der Aufenthaltshöhe für die Trajektorienverlauf-Stunden mit  $D$  bezeichnet, die zugehörige linguistische Menge als  $W$ .

Abstrakte Größe  $D$ : Aufenthaltshöhe der Trajektorienverlauf-Stunden

Die Aufenthaltshöhe der Trajektorienverlauf-Stunden angegeben in Meter stellen die Menge der Grundwerte  $\{d\}$  mit Werten  $\geq 0$  dar, so dass die

$$\text{Grundwertmenge } D = \{ d \text{ [m]}; d \geq 0 \} \text{ lautet.} \quad (4.16)$$

Die linguistische Wertemenge  $W$  mit ihren Elementen  $\{w\}$  ist mit den Fuzzy-Sets beschrieben und lautet für die Abstrakte Größe  $D$ :

$$\text{Linguistische Wertemenge } W = \{\text{BL}, \text{FT}\}. \quad (4.17)$$

Die Angaben der Aufenthaltshöhe sind stetige Grundwerte und die Aufstellung ihrer Zugehörigkeitsfunktion  $\mu(d, w)$  wird mathematisch für jeden linguistischen Wert  $w$  definiert; vgl. hierzu grafische Darstellung in Abb. 4-7:

für den linguistischen Wert  $w_1 = \text{BL}$

$$\mu(d_t, w_1) = \begin{cases} 1 & \text{für } d_t \leq g_{\min, t} \\ \frac{g_{\max, t} - d_t}{g_{\max, t} - g_{\min, t}} & \text{für } g_{\min, t} < d_t < g_{\max, t} \\ 0 & \text{für } d_t \geq g_{\max, t} \end{cases} \quad (4.18)$$

für den linguistischen Wert  $w_2 = \text{FT}$

$$\mu(d_t, w_2) = \begin{cases} 1 & \text{für } d_t \geq g_{\max, t} \\ \frac{d_t - g_{\min, t}}{g_{\max, t} - g_{\min, t}} & \text{für } g_{\min, t} < d_t < g_{\max, t} \\ 0 & \text{für } d_t \leq g_{\min, t} \end{cases} \quad (4.19)$$

mit

$d$	$\{d \text{ [m]}; d \geq 0\}$ ,
$d_t$	Höhe [m] Trajektorienverlauf-Stunde zum Zeitpunkt $t$ ,
$g_{\min, t}$	minimale Höhe Grundsicht zum Zeitpunkt $t$ ,
$g_{\max, t}$	maximale Höhe Grundsicht zum Zeitpunkt $t$ .

Als Ergebnis der Fuzzifizierung der Höhenangabe einer Trajektorienverlauf-Stunde liegt eine graduelle Zuordnung von 0 und 1 zu den formulierten Fuzzy-Sets vor, es gilt analog zu (4.7):

$$\mu(d_t, w_1) + \mu(d_t, w_2) = 1, \\ \text{mit } 0 \leq \mu(d, w) \leq 1, \text{ für jeden Wert von } d \text{ und } w. \quad (4.20)$$

Das folgende Beispiel verdeutlicht den Prozess der Fuzzifizierung der Höhenangabe, die für alle Trajektorienverlauf-Stunden jeder Rückwärtstrajektorie durchlaufen wird.

#### Beispiel 4.3

Für den Datensatz der 800 hPa-Rückwärtstrajektorie 12.02.1996 00:00 UTC, 34. Stunde der Rückverfolgung (34. Trajektorienverlauf-Stunde):

$t = \#12.02.1996\ 00:00\ UTC, 34\ \#$

$d_t = 946\ m$

$g_{\min, t} = 250\ m$

$g_{\max, t} = 2000\ m$

beträgt die Zugehörigkeit  $\mu(d_t, w)$  zu den zwei linguistischen Wertemengen nach den Funktionen 4.18, 4.19 zum Zeitpunkt  $t$ :

$\mu(946, w_1) = 0,602$

$\mu(946, w_2) = 0,398$

und die Fuzzy-Inputs für die 34. Stunde der Rückverfolgung der Trajektorie 800 hPa,  $\#12.02.1996\ 00:00\ UTC\ \#$  lauten:

Zugehörigkeit von 0,6 zum 1. Fuzzy-Set BL,

Zugehörigkeit von 0,4 zum 2. Fuzzy-Set FT.

Für jede zurückverfolgte Stunde eines Trajektorienverlaufs wird nach den zwei definierten Fuzzy-Sets eine Zugehörigkeit ermittelt und als Ergebnis zwei Fuzzy-Inputs ausgegeben. Abb. 4-8 zeigt die grafische Umsetzung der mathematischen Beschreibung für das aufgeführte Beispiel.

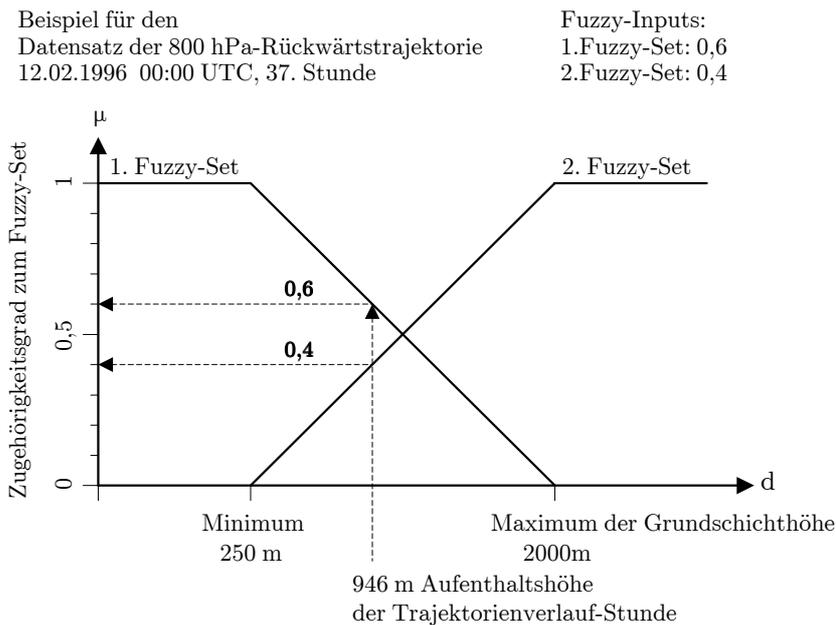


Abb. 4-8 Fuzzifizierung für das Filterparameter-Kriterium Aufenthaltshöhe  
Schematische Beispiel-Darstellung für die Fuzzifizierung einer Aufenthaltshöhe als Kriterium für den Filterparameter Trajektorienverlauf:

Die Aufenthaltshöhe beträgt für die 800 hPa-Rückwärtstrajektorie mit Termin am 12.02.1996 00:00 UTC für die 37. Stunde der Rückverfolgung 946 m. Mit der zugehörigen minimalen und maximalen Höhe der Grundsicht von 250 m und 2000 m als eindeutig scharfe Grenzwerte werden die Eckpunkte der Fuzzy-Sets beschrieben. Für den Eintrag der Aufenthaltshöhe in die Funktionsgrafik ist die Skala der Höhe linear zwischen den beiden Grenzwert Höhen zu interpolieren. Die Schnittpunkte der eingetragenen Geraden der Aufenthaltshöhe der Trajektorienverlauf-Stunde mit den Funktionsgraphen der Fuzzy-Sets zeigt die Zugehörigkeit zum entsprechenden Set an, die 0,6 zum 1. Fuzzy-Set und 0,4 zum 2. Fuzzy-Set beträgt.

#### 4.3.2.3 Verknüpfung der Kriterien

Die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion für die eingangs formulierten Fuzzy-Sets der Abstrakten Größe B Trajektorienverlauf basiert auf ihren zwei Kriterien Konzentrationsänderung und Aufenthaltshöhe. Da eine mögliche Konzentrationsänderung die Bedingung eines Aufenthalts in der Grundsicht voraussetzt, muss die Zusammenführung der beiden Kriterien auf der Ebene der Trajektorienverlauf-Stunden erfolgen. In die Ermittlung einer potentiellen Konzentrationsänderung  $\Delta c$  in Verbindung einer Trajektorienverlauf-Stunde ist bislang die tatsächliche Höhenangabe der Trajektorienverlauf-Stunden als konkreter Grundwert eingegangen (vgl. Gleichung 4.9), ohne dass ein Aufenthalt in der Grundsicht geprüft wurde. Für die Abbildung der Bedingung nach einem Aufenthalt in der Grundsicht ist die ermittelte Konzentrationsänderung um das Kriterium der Aufenthaltshöhe zu ergänzen.

Der direkte Zusammenhang zwischen unscharf formulierter Aufenthaltshöhe in der Grundsicht und einer damit verbundenen Konzentrationsänderung wird mit der Zusammenführung der Fuzzy-Inputs der beiden Teilkriterien für die Trajektorienverlauf-Stunden abgebildet. Hierfür sind die ermittelten Fuzzy-Inputs der Abstrakten Größen C mit dem Set Peak und den Fuzzy-Inputs des Set BL der Abstrakten Größe D miteinander zu verknüpfen. Bei der Verknüpfung der Fuzzy-Inputs handelt es sich im Gegensatz zu der binären klassischen Mengenlehre um eine mehrwertige Mengenverknüpfung, die über Fuzzy-Operatoren realisiert wird. Für die Auswahl der geeigneten Mengenverknüpfungs-Methode muss an dieser Stelle auf die Diskussion der Operatoren vorgegriffen werden, die nachstehend im Teilprozess der Fuzzy-Inferenz erfolgt (vgl. Kapitel 4.4, Seite 92). Im Rahmen des abzubildenden Prozesses eines Luftmassen-Einflusses wird der Ky-Kompensations-Operator verwendet, der im Falle der Verknüpfung zweier Fuzzy-Inputs dem Geometrischen Mittel entspricht.

Mit Beschreibung einer potentiellen nachweisbaren Konzentrationsänderung in der Größenordnung einer Störung in der Messreihe über die Abstrakte Größe C mit dem Fuzzy-Set für den linguistischen Wert  $v_2 = \text{Peak}$  mit  $\mu(c_t, v_2)$  und der Aufenthaltshöhe in Höhen der Grundsicht über die Abstrakten Größe D mit dem Fuzzy-Set für den linguistischen Wert  $w_1 = \text{BL}$  mit  $\mu(d_t, w_1)$  lautet die Verknüpfung der beiden Mengen:

$$(\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1)) = (\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5} \quad (4.21)$$

#### Zugehörigkeitsfunktion Trajektorienverlauf

Für den Rückschluss auf eine potentielle Konzentrationsänderung an der Station durch synoptisch bedingte Hebungsprozesse über die Ableitung eines Trajektorienverlaufs ist die Größe der Konzentrationsänderung eines gesamten Trajektorienverlaufs entscheidend. Die Zusammenführung der ermittelten möglichen Konzentrationsänderungen einer Trajektorienverlauf-Stunde für die zurückverfolgten Luftmassen entspricht der zugrundegelegten Modellannahme mit additiven Aufsammlern entlang eines Trajektorienverlaufs. Aus dem inhaltlichen Zusammenhang heraus ist hierfür die Summe der möglichen Konzentrationsänderungen der einer Trajektorie zugehörigen Trajektorienverlauf-Stunden zu bilden.

Der methodischen Umsetzung folgend sind hierfür die unscharf formulierten Konzentrationsänderung mit Berücksichtigung der Aufenthaltshöhe einer Trajektorie nach Gleichung 4.21 additiv zusammenzufassen. Die Ermittlung der Zugehörigkeit zu den Sets orientiert sich dabei an der aufgeführten unscharfen Formulierung für das Kriterium Konzentrationsänderung. Eine Summe von 0,1 bedeutet, dass die mit einem Trajektorienverlauf ermittelte Konzentrationsänderung lediglich in der Größenordnung der Nachweisgrenze liegt. Eine Summe von mindestens 1 entspricht einer Konzentrationsänderung in der Größenordnung einer Störung als Peak in der Messreihe, die auf eine oder mehrere Trajektorienverlauf-Stunden mit entsprechenden unscharf formulierten Konzentrationsänderungen zurückzuführen sind.

Im folgenden wird für die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion die Grundmenge der Abstrakten Größe B Trajektorienverlauf mit möglicher Konzentrationsaufnahme als B bezeichnet, die zugehörige linguistische Wertemenge als U.

Die für die Trajektorienverlauf-Stunden ermittelten verknüpften Fuzzy-Inputs  $(\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1))$  der Kriterien Aufenthaltshöhe und Konzentrationsänderung stellen die Menge der Grundwerte  $\{b\}$  mit Werten zwischen 0 und 1 dar, so dass die

$$\text{Grundwertemenge } B = \{0 \leq (\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1)) \leq 1\} \text{ lautet.} \quad (4.22)$$

Die linguistische Wertemenge U mit ihren Elementen  $\{u\}$  ist mit den Fuzzy-Sets beschrieben und lautet für die Abstrakte Größe B:

$$\text{Linguistische Wertemenge } U = \{BL\_nonPeak, BL\_Peak\} \quad (4.23)$$

Die Zugehörigkeitsfunktion  $\mu_T((\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1)), u)$  für die Abstrakte Größe B Trajektorienverlauf T folgt aus der Summe ihrer zugehörigen Trajektorienverlauf-Stunden über die Fuzzy-Inputs des verknüpften Sets Aufenthaltshöhe und Konzentrationsänderung  $(\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1))$  und werden für die linguistischen Werte w definiert:

für den linguistischen Wert  $u_1 = BL\_nonPeak$  als Menge der Trajektorienverläufe mit Aufenthalt in Höhen der Grundsicht und einer damit verbundenen Konzentrationsänderung in der Größenordnung einer nicht nachweisbaren Konzentration an der Station:

$$\mu_T((\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1)), u_1) = \begin{cases} 1 & \dots \\ 1 - \Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}) & \dots \\ 0 & \dots \end{cases} \quad (4.24)$$

$$\dots \text{für } \Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}) = 0$$

$$\dots \text{für } 0 < \Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}) < 1$$

$$\dots \text{für } \Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}) \geq 1$$

für den linguistischen Wert  $u_2 = \text{BL\_Peak}$  als Menge der Trajektorienverläufe mit Aufenthalt in Höhen der Grundsicht und einer damit verbunden Konzentrationsänderung in der Größenordnung einer Störung (Peak) in der Messreihe an der Station:

$$\mu_T((\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1)), u_2) = \begin{cases} 1 & \dots \\ \Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}) & \dots \\ 0 & \dots \end{cases} \quad (4.25)$$

$$\dots \text{für } \Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}) \geq 1$$

$$\dots \text{für } 0 < \Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}) < 1$$

$$\dots \text{für } \Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}) = 0$$

mit

	$\{\Sigma_T((\mu(c_t, v_2))^{0,5} \times (\mu(d_t, w_1))^{0,5}); \geq 0\}$
	Summe der verknüpften Fuzzy-Inputs
	für einen Trajektorienverlauf T, $\{0 \leq T \leq 96\}$
$\mu(c_t, v_2)$	Fuzzy-Input zum Set Peak
	Filterparameter-Kriterium Konzentrationsänderung
$\mu(d_t, w_1)$	Fuzzy-Input zum Set BL
	Filterparameter-Kriterium Aufenthaltshöhe

Für jeden Trajektorienverlauf wird eine Zugehörigkeit zum Fuzzy-Set BL\_nonPeak und BL\_Peak nach den zuvor aufgeführten Gleichungen ermittelt. Als Ergebnis der Fuzzifizierung eines Trajektorienverlaufs liegt eine graduelle Zuordnung von 0 und 1 zu den formulierten Fuzzy-Sets vor, es gilt für jeden Trajektorienverlauf analog zu (4.7):

$$\mu_T((\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1)), u_1) + \mu_T((\mu(c_t, v_2) \wedge \mu(d_t, w_1)), u_2) = 1 \quad (4.26)$$

Das Ergebnis der Fuzzifizierung ist die Ermittlung der sogenannten Fuzzy-Inputs, die eine Zugehörigkeit zwischen den Grundwerten der Abstrakten Größen und den linguistischen formulierten Fuzzy-Sets beschreiben. In der Fuzzy-Inferenz erfolgt das unscharfe Schließen der jeweiligen Fuzzy-Inputs entsprechend der Regelbasis, d.h. dass die Fuzzy-Inputs jeder Regel für die Ermittlung einer Schlussfolgerung zu verknüpfen sind.

## 4.4 Fuzzy-Inferenz

Die Inferenz als Auswertung der Regelbasis ist der Verarbeitungsschritt, der für eine aktuelle Bedingung (Faktum) eine entsprechende Schlussfolgerung zieht, unter der Voraussetzung, dass eine If...-Then...-Regel gegeben ist. Eine aktuelle Bedingung ist eine bestimmte Situation im abzubildenden Prozess, die über die linguistisch formulierten Abstrakten Größen beschrieben und über die in der Regelbasis aufgestellten Implikationen angesprochen wird. Mit der Fuzzy-Inferenz wird das unscharfe Schließen der Bedingungen mathematisch beschrieben, mit dem Ziel, eine Zugehörigkeit zu einer Ergebnismenge dem sogenannten Fuzzy-Set für die Schlussfolgerung (Konklusion) zu ermitteln. Als Ergebnis der Fuzzy-Inferenz wird für die durch die Regeln angesprochenen Situationen der sogenannte Fuzzy-Output ermittelt. Hierfür ist zunächst im Hinblick auf die aufgestellte Regelbasis die Konklusion und die Implikation zu formulieren. Anschließend erfolgt unter Einbezug der im Kapitel 4.3 ermittelten Fuzzy-Inputs die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion für jede Implikation.

Allgemein wird eine If...-Then...-Regel dann als vollständig bezeichnet, wenn alle möglichen Verknüpfungen zwischen Prämisse und Konklusion erfasst werden, so dass die Anzahl der möglichen linguistischen Terme die Anzahl der Einzelregeln bestimmt. Hierbei ist zu beachten, dass bei einer Vielzahl von linguistischen Termen für die verwendeten Abstrakten Größen eine Vielzahl möglicher Kombinationen zu nahezu beliebig vielen Regeln führt. Deshalb erfolgt aus dem inhaltlichen Zusammenhang heraus eine Reduzierung auf die wesentlichen mit der Regelbasis festgelegten Implikationen, um mögliche Prozess-Situationen der Abstrakten Größen mathematisch zwar nicht vollständig jedoch für den abzubildenden Prozess eines Luftmassen-Einflusses hinreichend genau abzubilden. Dies bedeutet, dass nicht jede Situation eines Datensatzes der luftchemischen Halbstunden-Datenbasis beschrieben wird, sondern nur die im Hinblick auf die Fragestellung zur Kennzeichnung eines möglichen Luftmassen-Einflusses in den Messreihen an der Station.

Die Konklusion der Implikationen als Schluss der Bedingungen hinsichtlich eines Luftmassen-Einflusses wird nachfolgend als Abstrakte Größe X bezeichnet, ihre linguistische Wertemenge als R. Die Fuzzy-Sets lauten in Anlehnung an die eingangs formulierten Konklusionen der drei Implikationen:

1. Fuzzy-Set Local: Menge der Datensätze mit einem Luftmassen-Einfluss aus der Grundsicht infolge lokal induzierter Vertikaltransporte,
2. Fuzzy-Set Synop: Menge der Datensätze mit einem Luftmassen-Einfluss aus der Grundsicht infolge synoptisch bedingter Transportprozesse,
3. Fuzzy-Set Intrusion: Menge der Datensätze mit einem Luftmassen-Einfluss aus der Stratosphäre infolge Intrusionen.

Die zugehörige linguistische Wertemenge R mit ihren Elementen {r} lautet für die Abstrakte Größe X :

$$\text{Linguistische Wertemenge } R = \{\text{Local, Synop, Intrusion}\} \quad (4.27)$$

Die Formulierung der Implikation zur Auswertung der If...-Then...-Regeln erfolgt mit der Konklusion als Then-Teil der Abstrakten Größe X und mit der Prämisse als If-Teil über die konkreten Zustände der Abstrakten Größen A (Messgröße) und B (Trajektorienverlauf), die über die jeweiligen spezifischen linguistischen Terme angegeben werden.

Die Filterregel 1 für Luftmassen-Einfluss aus der Grundsicht infolge lokal induzierter Vertikaltransporte beinhaltet folgende Abstrakte Größen:

Prämisse	
$A_{CO}$	für die Messgröße Kohlenmonoxid mit $s_3 = \text{high}$
$A_{Rad}$	für die Messgröße Natürliche Radioaktivität $s_3 = \text{high}$
Konklusion	
X	mit $r_1 = \text{Local}$

Die Implikation für die Filterregel 1 lautet:

$$\text{If } A_{CO} = s_3 \text{ And } A_{N.Rad} = s_3 \text{ Then } X = r_1$$

oder kurz

$$\text{If } s_3(CO) \cap s_3(N.Rad) \text{ Then } r_1 \quad (4.28)$$

Die Filterregel 2 für Luftmassen-Einfluss aus der Grundsicht infolge synoptisch bedingter Transportprozesse beinhaltet folgende Abstrakte Größen:

Prämisse	
$A_{CO}$	für die Messgröße Kohlenmonoxid mit $s_3 = \text{high}$
B	für den Datensatz eines Trajektorienverlaufs mit $u_2 = \text{BL\_Peak}$
Konklusion	
X	mit $r_2 = \text{Synop}$

Die Implikation für die Filterregel 2 lautet:

$$\text{If } A_{CO} = s_3 \text{ And } B = u_2 \text{ Then } X = r_2$$

oder kurz

$$\text{If } s_3(CO) \cap u_2 \text{ Then } r_2 \quad (4.29)$$

Die Filterregel 3 für Luftmassen-Einfluss aus der Stratosphäre infolge Intrusionen beinhaltet folgende Abstrakte Größen:

Prämisse	
$A_{O_3}$	für die Messgröße Ozon mit $s_3 = \text{high}$
$A_{Be7}$	für die Messgröße Beryllium-7 mit $s_3 = \text{high}$
$A_{CO}$	für die Messgröße Kohlenmonoxid mit $s_1 = \text{low}$
$A_{Hum}$	für die Messgröße Relative Feuchte $s_1 = \text{low}$
Konklusion	
$X$	mit $r_3 = \text{Intrusion}$

Die Implikation für die Filterregel 3 lautet:

$$\text{If } A_{O_3} = s_3 \text{ And } A_{Be7} = s_3 \text{ And } A_{CO} = s_1 \text{ And } A_{R.Hum} = s_1 \text{ Then } X = r_3$$

oder kurz

$$\text{If } s_{3(Ozon)} \cap s_{3(Be7)} \cap s_{1(CO)} \cap s_{1(Hum)} \text{ Then } r_3 \quad (4.30)$$

Für die Lösung der Gleichungen 4.28 bis 4.30 mit Ermittlung der Konklusion  $X$  ( $r_1, r_2, r_3$ ) sind die Werte der Fuzzy-Inputs über sogenannte Fuzzy-Operatoren zu verknüpfen. Die Funktion der Implikation ist wiederum von den Zugehörigkeitsfunktionen der Prämissen abhängig, die mit den ermittelten Fuzzy-Inputs beschrieben sind und beinhaltet bei mehr als einer Prämisse eine Mengen-Verknüpfung. Während in der booleschen Algebra die formalen Aspekte der logischen Verknüpfung von Mengen mit den Operatoren UND und ODER eindeutig sind, so entspricht die Abbildung auch unscharfer Aussagen gerade der Grundidee von Fuzzy-Logic und erfordert Verknüpfungsmethoden, die die fuzzy-logische Implikation umsetzen. Die Eigenschaften von Operatoren hinsichtlich Aspekten von Kommutativität, Assoziativität, Stetigkeit und Stabilität sind nach der Mengentheorie zwar wünschenswert, jedoch für die Auswahl eines Operators nicht allein entscheiden. Als minimale Anforderung an eine Verknüpfungsmethode gilt die Normierung und die Kompatibilität zur Booleschen Algebra, womit die Zugehörigkeitsfunktion  $\beta \in \{0, 1\}$  ist und bei zweiwertigen Zugehörigkeitsfunktionen mit  $\mu = 0$  oder  $\mu = 1$  die fuzzy-logische Algebra identisch mit der Booleschen Algebra ist.

Im Rahmen der Entwurfsfreiheit eines Fuzzy-Prozesses wird die Auswahl der Verknüpfungsmethode aus der Vielzahl bestehender sogenannter Fuzzy-Operatoren stets aus dem inhaltlichen Zusammenhang heraus und im Kontext von Fuzzifizierung und Defuzzifizierung getroffen. In der Tab. 4-2 sind die wichtigsten und häufig verwendeten Fuzzy-Operatoren mit zugehöriger Formel aufgelistet, die nachfolgend diskutiert werden. Weitere Fuzzy-Operatoren sowie deren mathematische Herleitung geben [BÖRCSÖK, 2000] und [ZIMMERMANN, 2001]. Die Wirkungsweise und der Einfluss verschiedener Operatoren auf abzubildende Prozesse beschreibt [ROß, 2001].

In der klassischen Mengenlehre sind die Verknüpfungsmethoden nach der sogenannten t-Norm als UND-Verknüpfung für Schnittmengen und der s-Norm als ODER-Verknüpfung für Vereinigungsmengen zu gliedern. Für die t-Norm ist der

Min-Operator und für die s-Norm der Max-Operator zu nennen, die von Zadeh selbst vorgeschlagen werden und im Bereich der Fuzzy-Controller eine häufige Anwendung finden. Hierbei ist das Ergebnis einer t-Norm-Verknüpfung stets kleiner als das einer s-Norm-Verknüpfung. Je nach abzubildenden Prozess sind diese Operatoren jedoch nachteilig, da sie aufgrund der Berücksichtigung von lediglich einem Fuzzy-Input mit einem Informationsverlust der weiteren Fuzzy-Inputs verbunden sind und zu einem un stetigen Verlauf der Verknüpfungen führen (vgl. Abb. 4-9-a-b). Zu den weiteren t-Normen zählen das Hamacher-, das Einstein- und das Algebraische Produkt, die sich hinsichtlich der Bewertung der Änderung der Fuzzy-Inputs unterscheiden und je nach Implikation kleine oder größere Fuzzy-Inputs mehr bzw. weniger bewerten. Das verbreitet eingesetzte Algebraische Produkt zeigt eine linear gewichtete Wertung über den gesamten Bereich, das Hamacher-Produkt einen progressiven und das Einstein-Produkt mit einer Anwendungsempfehlung für vorsichtige Entscheidungsprozesse einen degressiven Charakter. Durch die multiplikative Verknüpfung wird für diese Operatoren bei Vorliegen eines niedrigen Fuzzy-Inputs stets ein sehr kleiner Fuzzy-Output ermittelt. Zudem entsprechen die Operatoren zwar dem Kriterium der Assoziativität, nicht jedoch der Stabilität, da mit Zunahme der Anzahl der Fuzzy-Inputs einer Implikation der Fuzzy-Output kleiner wird und damit eine Auswertung im Rahmen der Defuzzifizierung erschweren.

Neben reinen UND- bzw. ODER-Verknüpfungen wird die Grundidee eines fuzzy-logischen Schließens insbesondere mit der Verbindung der beiden Operatoren in sogenannten Kompensations-Operatoren erzielt. Mit Kompensations-Operatoren wird zum Ausdruck gebracht, dass für eine Implikation auch Kompromisse eingegangen werden können und dadurch fehlende Informationen zu kompensieren versucht werden. Zu den am meisten verbreiteten Fuzzy-Operatoren zählt der min-max-Kompensations-Operator  $K_\gamma$ -Operator als spezielle Form des  $\gamma$ -Operators, wobei die Verknüpfungscharakteristik über den Parameterwert  $\gamma$  variiert wird. Der Parameter  $\gamma \in [0, 1]$  ermöglicht als Gewicht zwischen dem eingehenden ODER- ( $\gamma = 1$ ) und dem entsprechenden UND-Operator ( $\gamma = 0$ ) die Einstellung eines Grades mehr zu einer ODER- bzw. UND-Verknüpfung. Insgesamt bilden derartige Verknüpfungen das menschliche Verständnis einer UND-Verknüpfung am nächsten ab, die folgend mit dem Verknüpfungssymbol  $\wedge$  dargestellt werden. Aus mengentheoretischer Sicht entsprechen Kompensations-Operatoren dem Aspekt der Stabilität.

Tab. 4-2 Fuzzy-logische Verknüpfungs-Operatoren

Auswahl häufig eingesetzter Fuzzy-Operatoren, nach [BÖRCSÖK, 2000], [ZIMMERMANN, 2001].

Operator	Formel bei zwei gegebenen Mengen $\mu_1$ und $\mu_2$
max	$\max(\mu_1, \mu_2)$
min	$\min(\mu_1, \mu_2)$
Algebraisches Produkt	$\mu_1 \times \mu_2$
Hamacher-Produkt	$\frac{\mu_1 \times \mu_2}{\mu_1 + \mu_2 - \mu_1 \times \mu_2}$
Einstein-Produkt	$\frac{\mu_1 \times \mu_2}{2 - (\mu_1 + \mu_2 - \mu_1 \times \mu_2)}$
K $\gamma$ -Kompensation	$[\min(\mu_1, \mu_2)]^{1-\gamma} \times [\max(\mu_1, \mu_2)]^\gamma$
Arithmetische Mittelung	$\frac{\mu_1 + \mu_2}{2}$

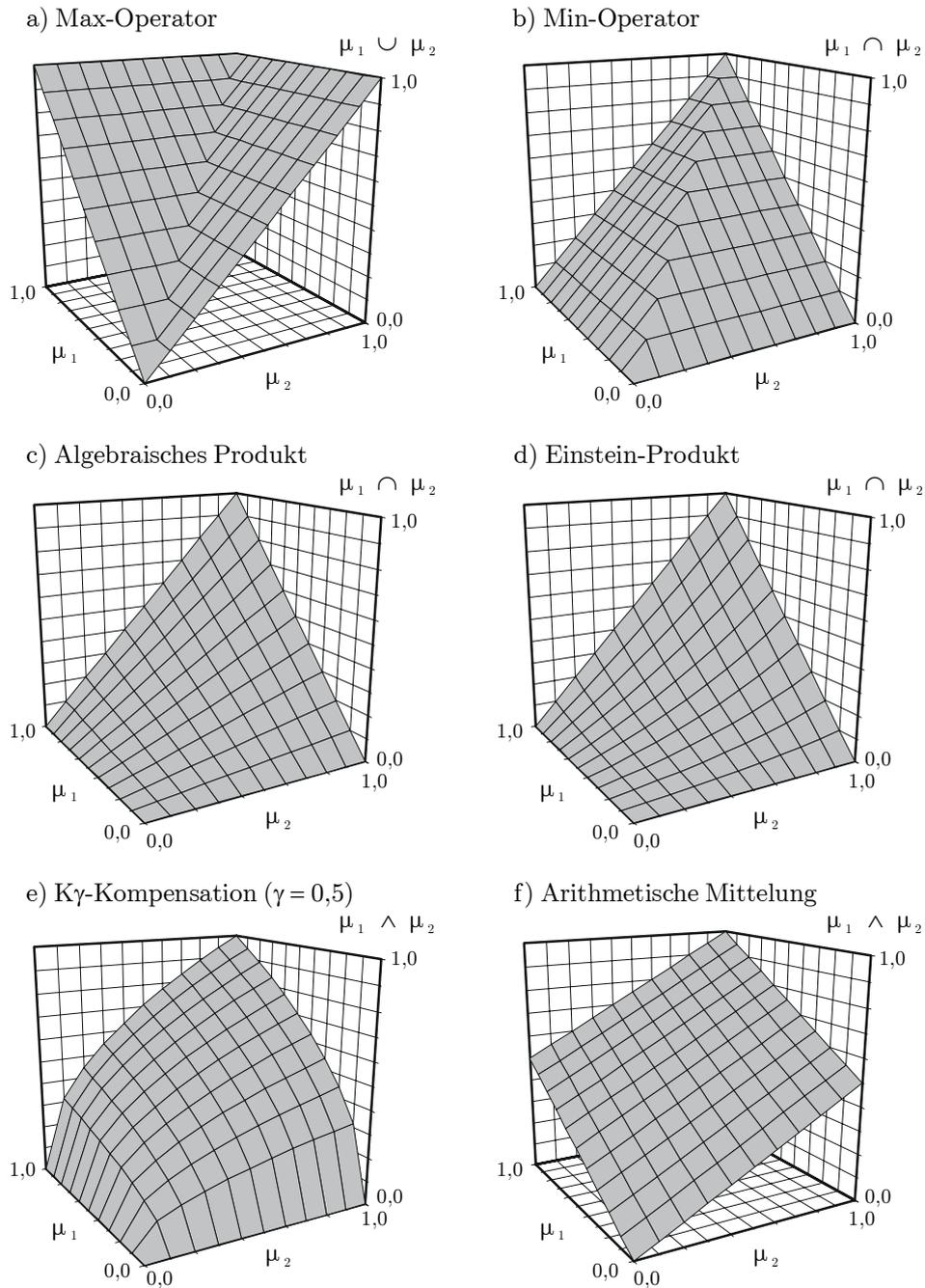


Abb. 4-9 Fuzzy-logische Verknüpfungs-Operatoren

Graphische Umsetzung der aufgeführten Fuzzy-Operatoren. Die Operatoren für die Verknüpfung von  $\mu_1$  und  $\mu_2$  ergeben unterschiedliche Zugehörigkeitsgrade für die Implikation.

Typ der Mengenverknüpfung:  $\cup$  : ODER,  $\cap$  : UND,  $\wedge$  : Fuzzy-UND

Für das Ergebnis der Verknüpfung gilt:

für  $\mu_1 \neq \mu_2$  a) > b) > f) > e) > c) > d); für  $\mu_1 = \mu_2$  a) = b) = e) = f).

Ein Luftmassen-Einfluss an der Station ist nur über die kombinierte Ausprägung der Abstrakten Größen identifizierbar, so dass die mit den Gleichungen 4.28, 4.29, 4.30 beschriebenen Implikationen von der t-Norm sind und eine UND-Verknüpfung von zwei bzw. vier Zugehörigkeitsfunktionen beinhalten. Von den dargestellten Verknüpfungsoperatoren beschreibt der Kompensations-Operator am besten die Herleitung einer Schlussfolgerung für den vorliegenden Prozess. Reine t-Normen wie der Min-Operator würden den abzubildenden Prozess nur unstetig abbilden und die Produkt-Operatoren sind neben den sehr kleinen Fuzzy-Outputs bei kleinen Fuzzy-Inputs wegen fehlender Stabilität insbesondere für die Filterregel 3 mit vier Fuzzy-Inputs nachteilig. Bei einem Fuzzy-Operator der  $K\gamma$ -Kompensation gehen genau zwei Fuzzy-Inputs mit Minimum und Maximum in die Zugehörigkeitsfunktion der Implikation ein. Mit dem häufig verwendeten  $\gamma$ -Wert von 0,5 wird zum Ausdruck gebracht, dass die Mittelwertbildung genau zwischen einer UND- und einer ODER-Verknüpfung liegt und dem geometrischen Mittel aus minimalem und maximalem Fuzzy-Input entspricht. Im Gegensatz zu der Mittelungsmethode des Arithmetischen Mittels wird bei Vorliegen eines Fuzzy-Inputs von 0 auch stets ein Fuzzy-Output von 0 ermittelt, was der Prozessbeschreibung entspricht, da für alle Fuzzy-Inputs eine Zugehörigkeit zu den mit der Implikation angesprochenen Fuzzy-Sets zu fordern ist. Allgemein entsprechen Mittelungsoperatoren der Idempotenz, d.h. dass zwei gleiche Zugehörigkeitsfunktionen  $\mu_i$  miteinander verknüpft den gleichen Wert für den Fuzzy-Output liefern, den auch die Zugehörigkeitsfunktion  $\mu_i$  besitzt, es gilt  $\beta(\mu_i, \mu_i) = \mu_i$ .

Im Falle der Filterregeln 1 und 2 mit je zwei Zugehörigkeitsfunktionen entspricht der  $K\gamma$ -Kompensations-Operator dem geometrischen Mittel. Für die Filterregel 3 mit vier Zugehörigkeitsfunktionen würde der Fuzzy-Operator mit Minimum und Maximum hingegen lediglich zwei Fuzzy-Inputs berücksichtigen. Dies bedeutet, dass beispielsweise für die Zugehörigkeitsfunktion  $\beta_1(0,1 \wedge 0,8 \wedge 0,8 \wedge 0,8)$  und  $\beta_2(0,1 \wedge 0,1 \wedge 0,1 \wedge 0,8)$  der gleiche Fuzzy-Output von 0,28 ermittelt wird, obwohl die mit den Filterparametern beschriebene Situation unterschiedlich ist und  $\beta_2$  einen deutlichen Hinweis auf einen Luftmassen-Einfluss enthält,  $\beta_1$  hingegen nicht. Eine hinreichende Abbildung erfordert einen Fuzzy-Operator, der für die Ermittlung des Fuzzy-Outputs alle Zugehörigkeitswerte berücksichtigt. Für die Filterregel 3 wird in Anlehnung an den  $K\gamma$ -Kompensations-Operator mit Anwendung auf zwei Zugehörigkeitsfunktionen eine Mittelungsmethode mit Geometrischem Mittel verwendet.

Die Zugehörigkeitsfunktion der Implikation formuliert als  $\beta(x, r)$  ist von den Zugehörigkeitsfunktionen der Prämisse (Fuzzy-Inputs) abhängig. Allgemein lautet die Zugehörigkeitsfunktion mit dem Verknüpfungsoperator  $K\gamma$ -Kompensation:

$$\beta_1((\mu_1 \wedge \mu_2 \wedge \dots \wedge \mu_n), r) = [\min(\mu_1, \mu_2, \dots, \mu_n)]^{1-\gamma} \times [\max(\mu_1, \mu_1, \dots, \mu_n)]^\gamma \quad (4.31)$$

wobei n die Anzahl der jeweiligen Fuzzy-Inputs der Implikation darstellt.

Mit  $n = 2$  und  $\gamma = 0,5$  entspricht der Kompensations-Operator dem geometrischen Mittel der beiden Zugehörigkeitsfunktionen, so dass die Zugehörigkeitsfunktion für die Implikation mit dem Fuzzy-Operator wie folgt geschrieben werden kann:

$$\beta_1((\mu_1 \wedge \mu_2), r) = (\mu_1)^{0,5} \times (\mu_2)^{0,5}$$

Im Gegensatz zu der verbreiteten Formel für das Geometrische Mittel mit Wurzelterm ist die Funktion auch für  $\mu_1, \mu_2 = 0$  definiert.

In Anlehnung an den Zusammenhang zwischen  $K\gamma$ -Kompensator und Geometrischem Mittel für zwei Zugehörigkeitsfunktionen ( $n = 2$ ) wird nachfolgend für mehr als zwei Zugehörigkeitsfunktionen ( $n > 2$ ) die Geometrische Mittelung als Fuzzy-Operator verwendet. Für  $n$ -beliebige Zugehörigkeitsfunktionen lautet die Zugehörigkeitsfunktion der Implikation mit einer geometrischen Mittelung:

$$\beta_1((\mu_1 \wedge \mu_2 \wedge \dots \wedge \mu_n), r) = (\mu_1)^{\frac{1}{n}} \times (\mu_2)^{\frac{1}{n}} \times \dots \times (\mu_n)^{\frac{1}{n}}$$

Die Zugehörigkeitsfunktion der Implikation ist für jeden linguistischen Term  $r$  der Abstrakten Größe  $X$  aufzustellen und die jeweilige Prämisse durch die Zugehörigkeitsfunktionen der jeweiligen Abstrakten Größen zu ersetzen.

Die mit den Prämissen angesprochenen Fuzzy-Inputs der Abstrakten Größen  $A$  bzw.  $B$  stellen mit ihren Zugehörigkeitsfunktionen die Grundwertmenge  $\{x\}$  dar, so dass die

Grundwertmenge  $X = \{\mu_A, \mu_B; 0 \leq \mu_A \leq 1, 0 \leq \mu_B \leq 1\}$  lautet.

Wie in Gleichung 4.27 erwähnt, lautet für die Abstrakte Größe  $X$  die linguistische Wertemenge  $R$  mit ihren Elementen  $\{r\}$ :

Linguistische Wertemenge  $R = \{\text{Local, Synop, Intrusion}\}$

Für die Filterregel 1 mit den Zugehörigkeitsfunktionen der Prämisse

$$\mu_1 = \mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_3)$$

$$\mu_2 = \mu_{A(\text{Rad})}(a_t, s_3)$$

und der Konklusion mit dem linguistischen Term  $r_1 = \text{Local}$  lautet die Zugehörigkeitsfunktion  $\beta_1(x_t, r_1)$  der Implikation:

$$\begin{aligned} \beta_1((\mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_3) \wedge \mu_{A(\text{Rad})}(a_t, s_3)), r_1) = \\ (\mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_3))^{0,5} \times (\mu_{A(\text{Rad})}(a_t, s_3))^{0,5} \end{aligned} \quad (4.32)$$

Für die Filterregel 2 mit den Zugehörigkeitsfunktionen der Prämisse

$$\begin{aligned} \mu_1 &= \mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_3) \\ \mu_2 &= \mu_B((\mu_C(c_t, v_2) \wedge \mu_D(d_t, w_1)), u_2) \end{aligned}$$

und der Konklusion mit dem linguistischen Term  $r_2 = \text{Synop}$  lautet die Zugehörigkeitsfunktion  $\beta_2(x_t, r_2)$  der Implikation:

$$\begin{aligned} \beta_2((\mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_3) \wedge \mu_B((\mu_C(c_t, v_2) \wedge \mu_D(d_t, w_1)), u_2)), r_2) = \\ (\mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_3))^{0,5} \times (\mu_B((\mu_C(c_t, v_2) \wedge \mu_D(d_t, w_1)), u_2))^{0,5} \end{aligned} \quad (4.33)$$

Für die Filterregel 3 mit den Zugehörigkeitsfunktionen der Prämisse

$$\begin{aligned} \mu_1 &= \mu_{A(O_3)}(a_t, s_3) \\ \mu_2 &= \mu_{A(\text{Be7})}(a_t, s_3) \\ \mu_3 &= \mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_1) \\ \mu_4 &= \mu_{A(\text{Hum})}(a_t, s_1) \end{aligned}$$

und der Konklusion mit dem linguistischen Term  $r_3 = \text{Intrusion}$  lautet die Zugehörigkeitsfunktion  $\beta_3(x_t, r_3)$  der Implikation:

$$\begin{aligned} \beta_3((\mu_{A(O_3)}(a_t, s_3) \wedge \mu_{A(\text{Be7})}(a_t, s_3) \wedge \mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_1) \wedge \mu_{A(\text{Hum})}(a_t, s_1)), r_3) = \\ (\mu_{A(O_3)}(a_t, s_3))^{0,25} \times (\mu_{A(\text{Be7})}(a_t, s_3))^{0,25} \times \\ (\mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_1))^{0,25} \times (\mu_{A(\text{Hum})}(a_t, s_1))^{0,25} \end{aligned} \quad (4.34)$$

Die aufgestellten Zugehörigkeitsfunktionen der Implikation werden von den Datensätzen der Halbstundenwerte mit den zuvor ermittelten Fuzzy-Inputs durchlaufen. Hierbei werden die von der Prämisse der Implikation angesprochenen Fuzzy-Inputs

nach der Verknüpfungsmethode zu einem Wert zusammengefasst. Dieser Wert ist das Ergebnis, das sich aus der Kombination und Schlussfolgerung der Fuzzy-Inputs ergibt und als Fuzzy-Output eine graduelle Zuordnung von 0 bis 1 zu den formulierten Fuzzy-Sets der Abstrakten Größe X angibt.

Das nachfolgende Beispiel verdeutlicht die Vorgehensweise der Fuzzy-Inferenz, die für jeden Datensatz der luftchemischen Messreihen durchgeführt wird.

#### Beispiel 4.4

Der Datensatz der Halbstundenwerte zum Zeitpunkt  $t = \#12.02.1996\ 12:00\#$  enthält folgende Fuzzy-Inputs für die durch die Implikation angesprochenen Abstrakten Größen:

$$t = \#12.02.1996\ 12:00\#$$

$$\mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_1) = 0,0$$

$$\mu_{A(\text{CO})}(a_t, s_3) = 0,5$$

$$\mu_{A(\text{Rad})}(a_t, s_3) = 0,9$$

$$\mu_{A(\text{O}_3)}(a_t, s_3) = 0,7$$

$$\mu_{A(\text{Be7})}(a_t, s_3) = 0,2$$

$$\mu_{A(\text{Hum})}(a_t, s_1) = 0,4$$

$$\mu_B((\mu_C(c_t, v_2) \wedge \mu_D(d_t, w_1)), u_2) = 0,1$$

Die Zugehörigkeit  $\beta(x_t, r)$  zu den drei linguistischen Wertemengen  $r$  beträgt nach den Funktionen 4.32, 4.33, 4.34 zum Zeitpunkt  $t$ :

$$\beta_1((0,5 \wedge 0,9), r_1) = 0,671$$

$$\beta_2((0,5 \wedge 0,1), r_2) = 0,224$$

$$\beta_3((0,7 \wedge 0,4 \wedge 0,0 \wedge 0,2), r_3) = 0,0$$

und die Fuzzy-Outputs für den Datensatz  $\#12.02.1996\ 12:30\#$  lauten:

Zugehörigkeit von 0,7 zum 1. Fuzzy-Set Local,

Zugehörigkeit von 0,2 zum 2. Fuzzy-Set Synop und

Zugehörigkeit von 0,0 zum 3. Fuzzy-Set Intrusion.

Für jeden Datensatz wird für die definierten Fuzzy-Sets der Schlussfolgerung eine Zugehörigkeit ermittelt und als Ergebnis der Inferenz drei Fuzzy-Outputs ausgegeben.

## 4.5 Defuzzifizierung

Die Fuzzy-Outputs als Ergebnis der Fuzzy-Inferenz geben mit der Angabe eines Zugehörigkeitsgrades zu der Schlussfolgerung bereits eine detaillierte Information über einen möglichen Luftmassen-Einfluss in den Messreihen an der Station. Hierbei vermittelt der Zugehörigkeitsgrad einen Sicherheitsgrad über die getroffene Schlussfolgerung und gibt zugleich den kausalen Zusammenhang an. Der letzte Abschnitt im Fuzzy-Ablaufschema ist die Defuzzifizierung, die auch als Delingualisierung bezeichnet wird und eine Umwandlung der Fuzzy-Outputs in scharfe Grundwerte beinhaltet. Das verfolgte Ziel, eine identifizierte Beeinflussung der Messreihen in den Datensätzen zu kennzeichnen, erfordert eine binäre Entscheidung nach der klassischen Logik. In der Defuzzifizierung sind die drei Implikationen zusammenzuführen und eine Entscheidung hinsichtlich einer Kennzeichnung der Datensätze zu treffen, die daraufhin mit einem sogenannten Data-Flag versehen werden. Indirekt ist dieser Abschnitt mit einem Informationsverlust der detaillierten Angabe hinsichtlich Zugehörigkeitsgrad und kausalem Zusammenhang verbunden, aber im Rahmen der Bereitstellung von repräsentativen Messreihen notwendig.

Unschärfe Mengen zu defuzzifizieren, d.h. aus den ermittelten Fuzzy-Outputs der Implikationen einen eindeutigen Wert zu ermitteln, basiert auf sogenannten Defuzzifizierungs-Methoden, die nach Maximum- und Mittelungs-Methoden unterschieden werden. Das Mean-of-Maximum (MOM) zählt zu den Maximum-Methoden und berücksichtigt den maximalen Wert der Zugehörigkeitsfunktion der Fuzzy-Menge, die im Ergebnis der Inferenz entsteht. Bei Mittelungs-Methoden hingegen fließen alle aktiven Regeln mit unterschiedlichen Schlussfolgerungen und Zugehörigkeitsgraden in das Ergebnis ein, hierzu gehören die Center-of-Maximum- (COM) und die Center-of-Area (COA) -Methode.

Die Vorgehensweise der Defuzzifizierung ist von dem abzubildenden Prozess sowie der zuvor durchgeführten Inferenz abhängig. Die formulierten Regeln beziehen sich auf Luftmassen-Einflüsse, die jeweils auf unterschiedliche kausale Zusammenhänge zurückzuführen sind. Die Filterregeln ergänzen sich hinsichtlich der Identifizierung eines Luftmassen-Einflusses und sind in ihrem Auftreten voneinander unabhängig, so dass mengentheoretisch eine ODER-Beziehung zwischen den Regeln besteht. Während in der Fuzzy-Inferenz eine Mittelungsmethode für die UND-Verbindung der Fuzzy-Inputs angewendet wurde, so entspricht eine Defuzzifizierung der ermittelten Fuzzy-Outputs einer ODER-Verknüpfung. Da synoptisch bedingte Transporte von lokal induzierten Vertikaltransporten oder Intrusionen überlagert werden können, folgt aber nicht der Rückschluss eines gegenseitigen Ausschließens. Vielmehr entspricht die Ermittlung eines Fuzzy-Outputs für mehrere Schlussfolgerungen dem Grundgedanken der Fuzzy-Logic, der zunächst widersprüchliche Ergebnisse vermuten lässt, aber durch die Zusammenführung der Implikationen eine konkrete Schlussfolgerung ermöglicht.

Für eine ODER-Verknüpfung gibt es die Maximum-Methode mit dem Mean-of-Maximum, die den maximalen Fuzzy-Output als zusammenfassende Schlussfolgerung für die drei formulierten Implikationen liefert. Für die Defuzzifizierung der Abstrakten Größe X für einen Luftmassen-Einfluss ist damit die unscharfe Schlussfolgerung in Grundwerten abzubilden. Eine Kennzeichnung der Datensätze erfordert die zwei binären Zustände Luftmassen-Einfluss (1) und kein Luftmassen-Einfluss (0), die die zweiwertige Grundwertmenge bilden. Während ein Fuzzy-Output von 0 oder 1 der booleschen Algebra entspricht, ist für die Zwischenwerte des Mean-of-Maximum,

mit der die Unschärfe eines Luftmassen-Einflusses beschrieben wird, eine Festlegung in Form eines Grenzwertes zu treffen, der eine Zuordnung der Zugehörigkeitsgrade in die zwei Zustände von 1 und 0 zulässt. Die Festlegung des Grenzwertes ist wiederum aus dem inhaltlichen Zusammenhang und den bisher angewendeten Methoden abzuleiten.

In der Fuzzifizierung ist für die Messgrößen eine Zugehörigkeit in die Fuzzy-Sets für niedrige, mittlere und hohe Werte formuliert worden. Während ein Zugehörigkeitsgrad von 1 einer eindeutigen Zuordnung entspricht, so entspricht ein Grad von 0 eindeutig nicht dem formulierten Fuzzy-Set, ein Wert von 0,5 würde genau zwischen den beiden formulierten Zuständen liegen und wohl als mittelhoch bewertet werden. Unter Einbezug der formulierten Filterregeln sind Zwischenwerte von 0,5 in Verbindung mit weiteren Messgrößen durchaus als Luftmassen-Einfluss zu bewerten, wenn auch die weiteren Filterparameter einen ähnlich hohen bzw. mittleren Wert zeigen. Dies bedeutet, dass die Auswertung der unscharfen Information eigentlich aus dem Gesamtkontext der Informationen der Filterparameter heraus erfolgt und ein Zwischenwert von 0,5 einer dem menschlichen Entscheidungsverhalten ähnelnde Vorgehensweise entspricht. Entsprechen alle durch eine Implikation angesprochenen Fuzzy-Inputs einem Zugehörigkeitsgrad von 0,5, so würde auch die damit beschriebene Situation - zwar als Grenzfall - aber dennoch als zu identifizierender Prozess eines Luftmassen-Einflusses bewertet werden.

Andererseits ist eine Situation mit einem Fuzzy-Input kleiner als 0,5 dann noch als Luftmassen-Einfluss zu werten, wenn die weiteren Filterparameter eine stärkere Ausprägung zeigen. Dieses unscharfe Schließen wird in der Fuzzy-Inferenz mit Verwendung einer Mittelungsmethode für die Implikation berücksichtigt, mit der zum Ausdruck gebracht werden soll, dass alle mit den Implikationen angesprochenen Abstrakten Größen in die Ermittlung des Zugehörigkeitsgrades der Schlussfolgerung als Fuzzy-Output eingehen. Mit der gewählten Methode eines Kompensations-Operators als Geometrisches Mittel wird gleichzeitig berücksichtigt, dass ein minimaler Zugehörigkeitsgrad zum Fuzzy-Set vorliegen muss, da sonst in der Inferenz ein Fuzzy-Output als Zugehörigkeit zur Schlussfolgerung von 0 ermittelt wird. Zeigen alle Fuzzy-Inputs der Implikationen einen Wert von 0,5, so wird nach der Eigenschaft der Idempotenz auch ein Fuzzy-Output von 0,5 ermittelt. Daneben entspricht das geometrische Mittel dem Arithmetischen Mittel der Logarithmen und führt bei einem kleinen Fuzzy-Input, der eine höhere Unschärfe der Zugehörigkeit beinhaltet, stets auch zu einem kleineren Ergebnis als die Arithmetische Mittelungs-Methode.

Auf die Defuzzifizierung übertragen folgt aus der inhaltlichen Ableitung, dass für die Auswertung des Mean-of-Maximum ein Fuzzy-Output von mindestens 0,5 zu fordern ist, damit ein Flag (1) zur Kennzeichnung der Datensätze mit der Information Luftmassen-Einfluss gesetzt wird. Für eine stärker degressive Bewertung wäre gegebenenfalls ein Zugehörigkeitsgrad größer als 0,5 zu wählen. Im Rahmen der Entwicklung von Filterfunktionen sind letztendlich die mit der Implementierung von Fuzzy-Logic erzielten Ergebnisse als iteratives Verfahren zu verstehen und es ist stets prüfen, womit gewählte Methoden oder der hier festgelegte Zugehörigkeitsgrad von 0,5 gegebenenfalls anzupassen sind.

Die Zusammenführung der drei Implikationen erfolgt nach der Mean-of-Maximum-Methode aus den Zugehörigkeitsfunktionen der Implikation  $\beta(x, r)$ . Mit der linguistische Termenmenge  $R = \{r_1, r_2, r_3\}$  ist die Funktion für die Defuzzifizierung  $\omega(x_D)$  der Abstrakten Größe  $X$  Luftmassen-Einfluss von den mit den Implikationen angespro-

chenen Zugehörigkeitsfunktionen der Fuzzy-Inputs abhängig. Mit der geforderten Mindestanforderung eines Mean-of-Maximum von 0,5 lautet die Funktion mit der binären Grundwertmenge  $\omega(x_D) = \{0, 1\}$ :

$$\omega(x_D) = \begin{cases} 1 & \text{für } \max[\beta_1(x_t, r_1), \beta_2(x_t, r_2), \beta_3(x_t, r_3)] \geq 0,5 \\ 0 & \text{für } \max[\beta_1(x_t, r_1), \beta_2(x_t, r_2), \beta_3(x_t, r_3)] < 0,5 \end{cases} \quad (4.35)$$

für  $\beta_1(x_t, r_1)$ ,  $\beta_2(x_t, r_2)$ ,  $\beta_3(x_t, r_3)$  vgl. Gleichung 4.32, 4.33, 4.34.

Das nachfolgende Beispiel verdeutlicht die Vorgehensweise der Defuzzifizierung, die für jeden Datensatz durchgeführt wird.

#### Beispiel 4.5

Für den Datensatz der Halbstundenwerte zum Zeitpunkt  $t = \#12.02.1996$  12:00# liegen für die drei Implikationen nach Beispiel 4.4 folgende Fuzzy-Outputs vor:

$$t = \#12.02.1996 \text{ 12:00\#}$$

$$\beta_1((0,5 \wedge 0,9), r_1) = 0,671$$

$$\beta_2((0,5 \wedge 0,1), r_2) = 0,224$$

$$\beta_3((0,7 \wedge 0,4 \wedge 0,0 \wedge 0,2), r_3) = 0,0$$

Nach Gleichung 4.35 liefert für den Zeitpunkt  $t$  die Implikation der Filterregel 1 für Luftmassen-Einfluss den maximalen Zugehörigkeitswert von 0,671, der über der geforderten Mindestanforderung von 0,5 liegt und zu einem Data-Flag der Datensätze führt:

$$\omega(x_D) = 1$$

mit  $x_D$                       Grundwert der Abstrakten Größe X  
Luftmassen-Einfluss

Der Datensatz der Halbstundenwerte für  $t = \#12.02.1996$  12:00# wird mit einem Flag von 1 gekennzeichnet.

Für jeden Datensatz wird nach Gleichung 4.35 für die Fuzzy-Outputs der drei Implikationen der Mean-of-Maximum bestimmt und als Ergebnis ein Data-Flag (0) oder (1) für einen zu kennzeichnenden Luftmassen-Einfluss ausgegeben.

## 4.6 Übersicht

Nachfolgende Abbildung gibt in Anlehnung an das eingangs allgemeingültige Strukturschema (vgl. Abb. 4-1) eine zusammengefasste Auflistung für die drei Teilprozesse mit angewandten Methoden und Formulierungen von Implikation, Prämisse und Konklusion sowie der linguistischen Wertemengen und Zugehörigkeitsfunktionen.

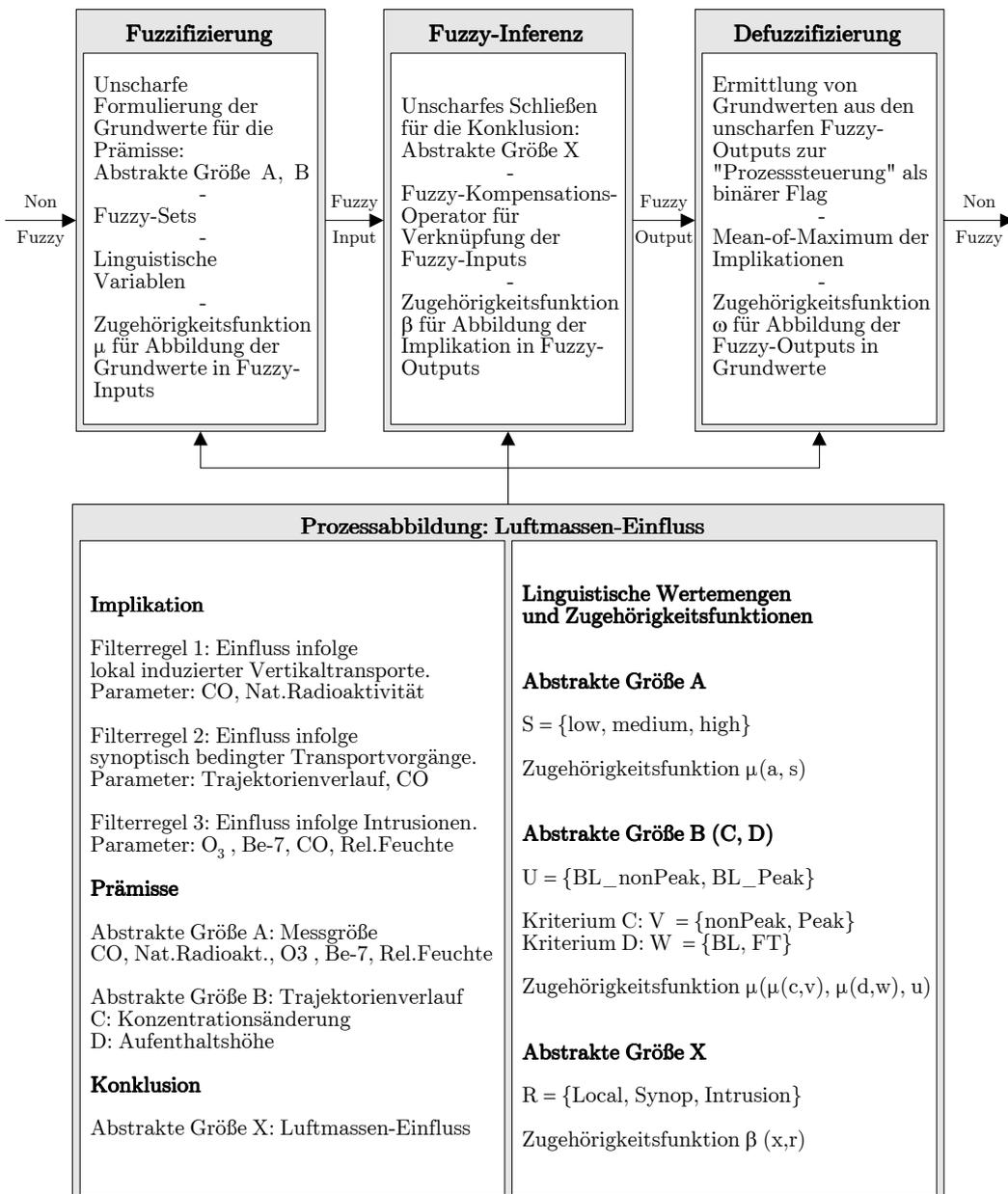


Abb. 4-10 Übersicht für den abzubildenden Fuzzy-Logic-Prozess



## 5 Datenbank-Tool mit Implementierung der Filterfunktionen

Zu der Entwicklung von Filterfunktionen mit der Modellvorstellung von Fuzzy-Logic gehört auch deren technische Realisierung als anwenderfreundliches Software-Tool für einen operationellen Einsatz im Rahmen des GAW Programms. Die Verarbeitung großer Datenmengen erfordert den Einsatz eines Datenbanksystems, das eine vollständige Datenhaltung mit Auswertung und Anwendung der Filterfunktionen ermöglicht. Mit der bisherigen Daten-Archivierung in Einzeldateien liegen die an der Station ermittelten und relevanten Daten zum Teil in unterschiedlichen Datenformaten vor. Erst eine Zusammenführung dieser Daten in ein Datenbanksystem ermöglicht eine vordergründig inhaltlich gesteuerte Messreihen-Auswertung sowie Filteranwendung. Für eine operationelle Anwendung der Filterfunktionen an der Globalstation Zugspitze wird ein datenbankgestütztes Software-Tool entwickelt. Dabei sind die Funktionen und Auswerte-Routinen derart formuliert, dass der Stationsbezug ausschließlich aus den Stationsdaten ausgelesen wird und unter gegebenen inhaltlichen Voraussetzungen eine Anwendung auch für andere Globalstationen über einen reinen Datenaustausch besteht.

Nachfolgend wird das zugrunde liegende Konzept, die Implementierung in das Datenbanksystem sowie die Menüstruktur für das Software-Tool vorgestellt. Informationen zu Bezug und Aktualisierung für das datenbankgestützte Software-Tool „Fuzzy-Logic Filter“ sind unter der URL <http://www.icara.de/geo/gawfilt.htm> zu finden.

### 5.1 Datenbankkonzept

Mit der Verwendung eines Datenbanksystems als Plattform für die Definition eigener Funktionalität wird die Möglichkeit für weitere Entwicklungen zusätzlicher Filter, Anpassungen oder Auswertungen nicht eingeschränkt und eine längerfristige sowie übersichtliche technische Basis gewährleistet. Für die Realisierung der Filterfunktionen als datenbankgestütztes Tool wird das PC-Datenbanksystem der Standard-Software Microsoft Access gewählt, das den Anforderungen einer relationalen Datenbank entspricht. Neben der Verfügbarkeit an Globalstationen wird die Wahl durch eine vergleichsweise bedienerfreundliche Benutzeroberfläche, eine Anpassung über die Programmierbarkeit sowie einen allgemein verbreiteten Einsatz als Front-End-Lösung gestützt. Die Möglichkeit zur Definition eigener Funktionalität erfolgt mit der prozedural arbeitenden Programmiersprache Visual Basic for Application (VBA). Darüber hinaus ist mit Integration eines Structured Query Language (SQL)-Servers ein Einsatz in Netzwerken möglich.

Weiterhin ermöglicht die Erzeugung einer Runtime-Version eine Filteranwendung ohne eine lokal installierte Access-Programmversion und über die Schnittstelle „Open DataBase Connectivity“ (ODBC) wird der direkte Datenbankzugriff für Auswertungen mittels PC-Standard-Software sicher gestellt. Das Konzept für die technische Umsetzung erfolgt über zwei getrennte Datenbanken, die untereinander über einen internen Datenzugriff verfügen. Abb. 5-1 gibt einen Überblick zum Datenbanksystem-Konzept mit den zwei Datenbanken `dbData` und `dbFilter` und ihren zugewiesenen Aufgaben. Die Datenbank `dbData` übernimmt die Aufgabe der Datenhaltung mit Archivierung aller für die Station relevanten Daten. Eine Datenauswertung und die Anwendung der Filterfunktionen erfolgt in der Datenbank `dbFilter`. Der Datenzugriff zwischen den beiden Datenbanken erfolgt von der `dbFilter` als Datenspiegel aus der `dbData` in Form eines temporären Imports. Die Data-Flag-Tabelle als zu archivierendes Ergebnis der Filteranwendung wird in die `dbData` zurückgegeben. Mit der Trennung von Archivierung und Auswertung wird eine zu unterbindende Datenmanipulation der Originaldaten verhindert und die Möglichkeit gegeben, die Archivierung gegebenenfalls auf Back-End-Datenbanksysteme wie Oracle umzustellen und die Auswertung weiter mit der Front-End-Anwendung Access laufen zu lassen.

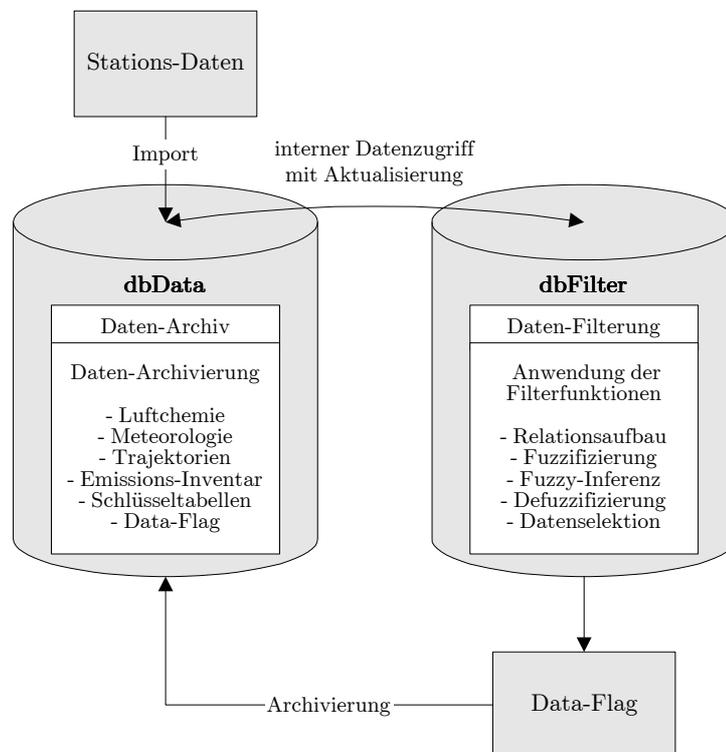


Abb. 5-1 Konzept der datenbankgestützten Realisierung

Das Konzept wird über zwei Datenbanken realisiert, die untereinander über einen internen Datenzugriff verfügen. Die Archivierung der an der Station ermittelten sowie darüber hinaus relevanten Daten erfolgt in der Datenbank `dbData`. Die Auswertung mit der Filteranwendung erfolgt in der Datenbank `dbFilter`. Das Ergebnis der Filteranwendung als Data-Flag der zu kennzeichnenden Datensätze wird in die `dbData` zur Archivierung zurückgespielt.

### 5.1.1 Database

Das Software-Tool „Fuzzy-Logic Filter“ umfasst die sogenannte Database mit den zwei Datenbankdateien `dbData.mdb` und `dbFilter.mdb`. Die Datenbankdateien sind in der englischsprachigen Programmversion von Microsoft Access 2000 erstellt und damit auch in anderen Sprachversionen lauffähig sowie zu dem Programm aufwärtskompatibel. Für den internen Datenaustausch gilt als einzige Voraussetzung, dass beide Datenbankdateien in einem Verzeichnis liegen müssen.

Die Datenbank `dbData` enthält alle zu archivierenden Daten der Spurengas-Messungen sowie der Rückwärtstrajektorien und die Emissions-Inventar-Daten, wobei der Datenimport über die Standard-Funktion einer Anfüge-Abfrage erfolgt. Die Daten sind in Tabellen abgelegt und über eine Beschreibung in der Tabellenansicht der Datenbankoberfläche näher erläutert. In der Entwurfsansicht der Datenbankoberfläche sind die Datenformate sowie Datenbeschreibungen aufgelistet wie beispielsweise die physikalische Einheit von Messdaten oder die gewählte Kennzeichnung für Datenausfälle.

In die Datenbank `dbFilter` ist das Software-Tool für die Filter implementiert, dass eine vollständige Durchführung mit den drei Teilprozessen der Fuzzifizierung, Fuzzy-Inferenz und Defuzzifizierung beinhaltet. Die Realisierung der Filterfunktionen erfolgt vollständig über SQL-Anweisungen, die in programmierte VBA-Funktionen abgelegt sind. Darüber hinaus ist der Quellcode für die in der Datenbank abgelegten kommentierten Funktionen, SQL-Anweisungen und Prozeduren einsehbar, nachvollziehbar sowie ggf. flexibel anzupassen.

Für die Berechnungen sind größtenteils mehrere Rechenvorgänge erforderlich, die neben SQL-Anweisungen zum Teil aber auch VBA spezifische Sprachelemente für Schleifendurchläufe, Variablenübergaben und Auslagerungen von Zwischenergebnissen in temporäre Tabellen enthalten. Ein Berechnungsschritt erfolgt in einer sogenannten Prozedur, die wiederum nach dem Aufbau der Menüleiste inhaltlich in Module zusammengefasst sind. Ein Modul enthält neben dem Quellcode für die zugehörigen Prozeduren mit den Berechnungsschritten für die Teilprozesse von Fuzzy-Logic auch die übergeordnete Prozedur zur Steuerung des Programmablaufs sowie Dialogfenster.

Die Filteranwendung erfolgt über die zu den Standard-Menüleisten zusätzlich eingefügte Menüleiste `Fuzzy-Logic Filter`, die ohne Aufruf der einzelnen VBA-Module mit SQL-Anweisungen eine menügesteuerte Abarbeitung ermöglicht. Nach Auswahl eines Menüpunktes wird zu Anfang ein Dialogfenster erzeugt, das eine kurze Beschreibung der Berechnung mit der dafür erforderlichen Berechnungszeit ausgibt und die Option zum Start oder zum Abbruch anbietet. Nach Beendigung der Berechnung wird im Dialogfenster die Ergebnistabelle namentlich angezeigt und anschließend automatisch geöffnet. Zusätzlich wird ein Speichervorgang ausgelöst und im Datenbankfenster das Datum der Modifikation für die Tabelle aktualisiert. Zum Teil werden sehr große Datenmengen in temporäre Tabellen geschrieben, so dass die Datenbank zur physikalischen Speicherfreigabe komprimiert werden muss. Da dies ein wichtiger Punkt der Datenbankpflege ist, wird nach umfangreichen Berechnungen zusätzlich ein Dialogfenster mit der Empfehlung einer Komprimierung angezeigt. Dieses Standard-Tool einer Access-Datenbank ist zusätzlich im Menüpunkt `Database` der Menüleiste `Fuzzy-Logic Filter` aufgeführt und lautet je nach Sprachversion `Compact and Repair Database`.

### 5.1.2 Namenskonventionen

Die einheitliche Benennung von Datenbank- und Programmobjekten dient der Strukturierung des Datenbank-Tools für Anwender und Entwickler. Die Struktur der Benennung basiert auf der anerkannten und verbreiteten Methode Hungarian [ORTMANN, 1999, Seite 851 ff]. Der Stil beruht auf der Aufteilung eines Namens in mehrere sprechende Teile. Neben der Klassifizierung auf Level 1 nach Abfragen und Tabellen, ist für komplexere Anwendungen eine Verfeinerung mittels der zweiten Stufe Level 2 vorzunehmen.

Die Benennung der Objekte erfolgt nach dem Stil:

[Präfix]\_Klasse[Basisname]\_[Erweiterungen]

Der Basisname einer Tabelle ergibt sich aus Abkürzungen des Tabelleninhalts und erfolgt nach dem Prinzip, dass bei einer optionalen alphabetischen Sortierung der Tabellen eine entsprechende inhaltliche Sortierung vorliegt. Daneben ist über die Datenbankoberfläche eine verbale Beschreibung der Tabelle direkt sichtbar.

Für Tabellen erfolgt eine Differenzierung über die drei Präfixe `data_`, `tmp_` und `calc_`. Das Präfix `tmp_` steht für temporäre, innerhalb von Modulen während des Prozedurablaufs erstellte Tabellen mit Zwischenergebnissen und `calc_` für Tabellen mit Berechnung, die bedeutende Ergebnisse eines Abschnitts der Fuzzifizierung enthalten, zum Teil die Basis der weiteren Filteranwendung darstellen und aufgrund der modulübergreifenden Funktion mit ihrer Tabellenstruktur nicht gelöscht werden dürfen. Datentabellen, die durch Datenimport als Input in die Datenbank eingehen, sind über das Präfix `data_` gekennzeichnet.

Die Klasse dient der Klassifizierung der Datenbankobjekte. Im vorliegenden Projekt erfolgen Berechnungen als Tabellenerstellungsabfragen über Prozeduren oder direkt als speicherextensive Lösung einer Datenmanipulation über die Update-Funktion, so dass lediglich drei Typen unterschieden werden. Die Klasse `tbl` steht für Datentabellen, `tqry` für über Abfragen erstellte Tabellen mit anderer Tabellenbasis und die themenspezifische Klasse `fuz` für die Kennzeichnung von prozedurerstellten Tabellen innerhalb der Fuzzy-Logic Methodik. Erweiterungen mit Durchnumerierungen werden lediglich bei prozedurintern erstellten Tabellen verwendet.

Die Spalten einer Tabelle als Feldnamen sind über die Tabellenstruktur mit zugehörigem Datentyp auch inhaltlich beschrieben. Das Präfix `id` kennzeichnet Feldnamen mit der Funktion der eindeutigen Identifizierung, `dt` allgemeine Datenfelder, `qcp` sind über Prozeduren berechnete Felder sowie die themenspezifischen Feldnamen-Präfixe `FI` für Fuzzy-Input und `FO` für Fuzzy-Output.

Die Verwaltung der Prozeduren erfolgt in der Datenbank über die sogenannten Module, die nach den drei Präfixen `func_` für anwendungsübergreifende Funktionen, `menue_` für Prozeduren der Menüsteuerung und `proc_` für die ereignisorientierten Prozeduren der Filter-Berechnungen unterteilt sind.

## 5.2 Menüstruktur des Software-Tools

Die Realisierung der Filterfunktionen als datenbankgestütztes Tool erfolgt in der Database `dbFilter` über das Menü `Fuzzy-Logic Filter`, dessen Struktur nachfolgend mit Nennung der jeweiligen Prozeduren und zugehörigen Tabellen vorgestellt wird. Das Datenbank-Tool beinhaltet eine vollständige Durchführung der aufgeführten Menüpunkte, die nach dem Fuzzy-Logic-Strukturschema in der Reihenfolge Fuzzifizierung, Fuzzy-Inferenz und Defuzzifizierung erfolgen muss. In den Menüs selbst ist wiederum die Reihenfolge zu beachten, da bestimmte Berechnungen Ergebnisse voraussetzen, wie beispielsweise die Perzentile der Messgrößen Voraussetzung für die Ermittlung der zugehörigen Fuzzy-Inputs sind. Erfolgt nur eine sequentielle Berechnung durch Auswahl eines Menüpunktes, so werden stets die in der Datenbank vorhandenen Daten zugrunde gelegt. Die vollständige Abarbeitung der Menüpunkte ist nur dann erforderlich, wenn eine Aktualisierung bzw. Ergänzung der Datentabellen der luftchemischen Messgrößen oder der Trajektorien Daten in der Datenbank `dbData` vorliegt.

### 5.2.1 Fuzzifizierung

Im Menü `Fuzzifizierung` erfolgt die Ermittlung der Fuzzy-Inputs für die Filterparameter der Abstrakten Größe A (Messgröße) und B (Trajektorienverlauf).

Die Fuzzifizierung der Abstrakten Größe A Messgröße wird über die Menüpunkte `> Fuzzifizierung > Percentile` sowie `> Fuzzy-Input` durch Menüauswahl für die mit den Filtern angesprochenen Messgrößen durchgeführt. Als Ergebnis wird eine Tabelle für die ausgewählte Messgröße erzeugt. Abb. 5-2 zeigt die zugehörige Menüstruktur mit den einzelnen zur Verfügung stehenden Menüpunkten. Für die Verwendung ausschließlich aktueller Daten ist aus der Datenbank `dbData` die Tabelle mit den Stationsdaten `data_tdataStationData` zu importieren bzw. zu aktualisieren. Die zum Menüpunkt `> Fuzzifizierung > DataTable > Import/Update` gehörigen Prozeduren sind im VBA-Modul `proc_basFuzA_ImDrop` zusammengefasst.

Das VBA-Modul `menue_FuzAMessgroesse` enthält die zum Menü `> Fuzzifizierung > A - Messgroesse` gehörigen Dialogfelder und übergibt durch Auswahl einer Messgröße die entsprechende Messgröße als Variable an die allgemeingültigen Prozeduren zur Berechnung der Gleitenden Perzentile und der Fuzzy-Inputs. Die Berechnung der zentrierten gleitenden 10%, 50%, 90%-Perzentile mit einer 90-tägigen Zeitspanne und einer Mindestdatenverfügbarkeit von 70% für eine luftchemische Messgröße ist die Grundlage für die Zugehörigkeitsfunktionen zu den formulierten Fuzzy-Sets. Für die Relative Feuchte erfolgt eine abweichende Berechnung der Perzentile mit der Zeitspanne von Januar bis März und Oktober bis Dezember als Jahreswert. Die zugehörigen Prozeduren sind im VBA-Modul `proc_basFuzA_MovPer` und geben das Zwischenergebnis in der Tabelle `tmp_tqryAMovPer[Messgroesse]` aus. Die Berechnung der Fuzzy-Inputs für die Messgrößen erfolgt über die Prozeduren des VBA-Moduls `proc_basFuzA_Fuzzy-Input`. Die hierfür erforderlichen Zugehörigkeitsfunktionen sind als allgemeingültige Funktionen im VBA-Modul `func_basFuzzyFunction` definiert. Die erzeugte Ergebnistabelle `calc_FuzInputA_[Messgroesse]` enthält neben Datum, Uhrzeit, Messwert und gleitenden Perzentilen, die Zugehörigkeitsgrade zu den drei formulierten Fuzzy-Sets `low`, `medium`, `high`.

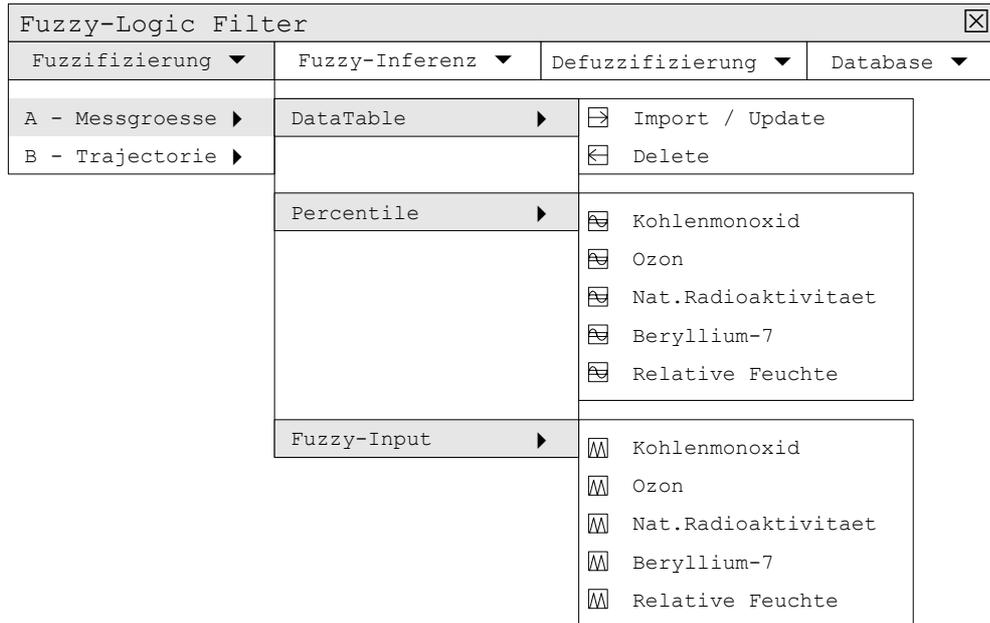


Abb. 5-2 Menüstruktur zur Fuzzifizierung der Größe A Messgröße

Die Fuzzifizierung der Abstrakten Größe B Trajektorienverlauf erfordert zunächst eine Aufbereitung der verwendeten Daten vom Emissions-Inventar und den Rückwärtstrajektorien und ergibt sich aus den Berechnungen der beiden Filterparameter-Kriterien der Abstrakten Größe C Konzentrationsänderung und D Aufenthaltshöhe. Die zugehörige Menüstruktur zeigt Abb. 5-3.

Im Menüunterpunkt > Emission-Inventar erfolgt die Aufbereitung des Emissions-Grids, im Menüunterpunkt > Trajectorie die Aufbereitung der Rückwärtstrajektorien sowie die Verbindung zu dem Emissions-Grid. Beide Berechnungen sind Grundlage für die Fuzzifizierung des Teilkriteriums C Konzentrationsänderung, die im Menüunterpunkt > Fuzzy-Inputs erfolgt. Dort wird auch die Ermittlung der Fuzzy-Inputs für das zweite Filterparameter-Kriterium D Aufenthaltshöhe durchgeführt. Die Steuerung der zugehörigen Prozeduren über die Menüauswahl werden im VBA-Modul `menue_FuzBTrajectorie` verwaltet.

Im Menüpunkt > Emissions-Inventar erfolgt die Gittertransformation von COARSE-Grid und EMEP-Grid unter Verwendung der zur Verfügung stehenden Emissions-Inventare der Datenbank `dbData`, die hierfür temporär importiert werden. Die jeweiligen Prozeduren sind im VBA-Modul `proc_basBCGridTransCoarse` bzw. `proc_basBCGridTransEmep` zusammengefasst, die Tabellen lauten `tmp_tqryCEmCoarseTrans` bzw. `tmp_tqryCEmEmepTrans`. Die Grid-Kombination erfolgt prioritär durch das hochauflösende COARSE2-Grid mit Ergänzung durch Daten des EMEP50-Grid in den Randbereichen und für Wasserflächen, das zugehörige VBA-Modul heißt `proc_basBCGridComp`, die Ergebnistabelle heißt `tmp_tqryCEmCompTrans`.

Im Menüpunkt > Trajektorie > Distanz-Berechnung erfolgt für jede Trajektorienverlauf-Stunde die Berechnung der Entfernung zur Station, die entlang eines Trajektorienverlaufs von Punkt zu Punkt angenähert wird und in der Tabelle `tmp_tqryCTrajDistance` ausgegeben wird. Hierfür wird die allgemeingültig geschriebene Funktion `func_basTrajDistance` im VBA-Modul `proc_basBCTrajDistance` verwendet, die darüber hinaus generell für die Distanzberechnung zwischen zwei Punkten in geographischer Gradangabe verwendbar ist. Die Verbindung zwischen dem kombinierten Emissions-Inventar COARSE/EMEP-Grid mit den Lagekoordinaten der Rückwärtstrajektorien erfolgt im Menüpunkt > Trajektorie > Relation Emission-Grid und steht im VBA-Modul `proc_basBCTrajEmis`. Die Ermittlung einer möglichen Konzentrationsänderung in Bezug zur Station wird mit den Prozeduren im VBA-Modul `proc_basBCTrajEmisCo` über den Menüpunkt > Trajektorie > Konzentrations-Aenderung durchgeführt. Die Berechnung beinhaltet die Umrechnung der zeitlichen Auflösung des Emissions-Inventars auf einen stündlichen Trajektorien-Aufenthalt sowie die durch den Transport und den zeitlichen Abbau bedingte Minderung, die mit dem beschriebenen Gauss-Ansatz unter Verwendung der Trajektorien- und Aufenthaltsdaten zu Höhe, Entfernung zur Station und Angabe der zeitlichen Rückverfolgung berücksichtigt wird. Die ermittelte Konzentrationsänderung bezieht sich auf die verwendete Einheit der Messgrößen in ppbv und wird in der Tabelle `calc_tqryCDTrajEmisCo` ausgegeben.

Die Ermittlung der Fuzzy-Inputs für das Kriterium Konzentrationsänderung im Menü > Fuzzy-Input > C - Konzentrations-Aenderung erfolgt mit den Zugehörigkeitsfunktionen für zwei Fuzzy-Sets, die, wie für die Messgrößen, im VBA-Modul `func_basFuzzyFunction` aufgeführt sind. Im VBA-Modul `proc_basFuzB_Fuzzy-InputC` wird auf die Funktion zugegriffen und die zugehörigen Eckpunkte aus Nachweisgrenze und Differenz aus den bereits vorliegenden Berechnungen zu 90%- und 50%-Perzentilen ausgelesen. Als Ergebnis wird die Tabelle `calc_tqryCDTrajEmisCo` um zwei Spalten für die Zugehörigkeitsgrade der Abstrakten Größe C Konzentrationsänderung ergänzt.

Die Fuzzifizierung des zweiten Teilkriterium D - Aufenthaltshöhe im Menü > Fuzzy-Input > D - Aufenthaltshoehe beinhaltet die Aufstellung der Zugehörigkeitsfunktion für zwei Fuzzy-Sets, die auf den zugrunde gelegten minimalen und maximalen Höhen der Grundsicht basiert. Die Daten der jahres- sowie tageszeitlich variierenden Höhen sind in der Tabelle `data_tdataBLayer` festgelegt, die aus der Datenbank `dbData` temporär für die Berechnung importiert wird. Die zugehörigen Prozeduren sind im VBA-Modul `proc_basFuzB_Fuzzy-InputD` aufgelistet. Die Ausgabe der Fuzzy-Inputs erfolgt wiederum durch Ergänzung der entsprechenden Spalten in der erwähnten Tabelle.

Im Menüpunkt > Fuzzy-Input > B - Trajektorienverlauf erfolgt zunächst die Zusammenführung der beiden Teilkriterien C und D durch Ergänzung der bereits aufgeführten Tabelle. Das additive Aufsammeln von Emissionen und die Zusammenfassung der Trajektorienverlauf-Stunden zu einem Trajektorienverlauf erfolgt über die Prozeduren im VBA-Modul `proc_basFuzB_Fuzzy-InputB`. Die ermittelten Fuzzy-Inputs zu den zwei definierten Mengen Trajektorienverlauf mit einer möglichen Konzentrationsänderung in Höhe der Nachweisgrenze `{BL_nonPeak}` bzw. in Höhe einer Störung in der Kohlenmonoxid-Messreihe `{BL_Peak}` werden in die Tabelle `calc_FuzInputB` geschrieben.

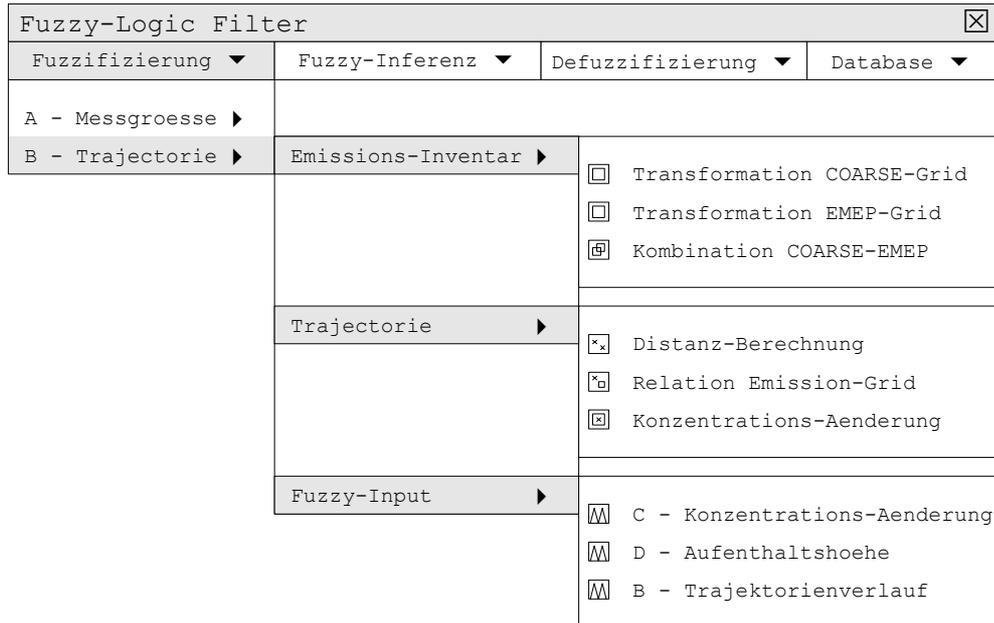


Abb. 5-3 Menüstruktur zur Fuzzifizierung der Größe B Trajektorienverlauf

### 5.2.2 Fuzzy-Inferenz

Die ermittelten Fuzzy-Inputs für die Abstrakte Größe A Messgröße mit den Tabellen `calc_FuzInputA_[Messgroesse]` sowie für die Abstrakte Größe B Trajektorienverlauf mit der Tabelle `calc_FuzInputB` stellen die Grundlage für das unscharfe Schließen der Fuzzy-Inferenz dar. In die formulierten Implikationen der Filterregeln gehen die Fuzzy-Inputs als Prämisse ein und werden über den beschriebenen Fuzzy-Kompensations-Operator zu der Konklusion X eines Luftmassen-Einflusses ausgewertet.

Die Verbindung der mit einer Implikation angesprochenen Größen entspricht einer einfachen 1:1-Relation der entsprechenden Tabellen `calc_FuzInputA_[Messgroesse]` über Datum und Uhrzeit. Das Auftreten einer bestimmten Ausprägung zu einer hohen oder niedrigen Konzentration wird zeitgleich von den Filterparametern gefordert, entspricht also einem bestimmten Halbstunden-Datensatz. Mit Verwendung von Trajektorien in der Filterregel 2 für Luftmassen-Einfluss infolge synoptisch bedingter Transportprozesse besitzt die Information einer möglichen Konzentrationsänderung eines Trajektorienverlaufs aufgrund der zweimal täglich verfügbaren Terminrechnungen eine zeitliche niedrige Auflösung.

Die Fuzzy-Inferenz ist für die drei formulierten Filterregeln durchzuführen, die entsprechende dreiteilige Menüstruktur ist in Abb. 5-4 dargestellt. Die Ergebnisse der Filterregel 1 für Luftmassen-Einfluss infolge lokal induzierter Vertikaltransporte werden in der Tabelle `calc_FuzInfOutputX_1` ausgegeben, die der Filterregel 2 für Luft-

massen-Einfluss infolge synoptisch bedingter Transporte in Tabelle `calc_FuzInfOutputX_2` und die Ergebnisse der Filterregel 3 für Luftmassen-Einfluss infolge Intrusion in Tabelle `calc_FuzInfOutputX_3`.

Neben der eindeutigen Datensatzkennung über Datum und Uhrzeit enthält die Tabelle die durch die Implikation angesprochenen Messgrößen mit Angabe von Messwert und Fuzzy-Input sowie den daraus resultierenden Fuzzy-Output. Der Fuzzy-Output ist das Ergebnis der Inferenz und liefert den Zugehörigkeitsgrad zu dem formulierten Fuzzy-Set der Konklusion X Luftmassen-Einfluss. Die Ermittlung folgt aus der Verknüpfung der Fuzzy-Inputs nach der Methode des gewählten Fuzzy-Operators, die zugehörigen Prozeduren der Fuzzy-Inferenz für die drei Filterregeln sind in den VBA-Modulen `proc_basInfOutputX_1`, `proc_basInfOutputX_2`, `proc_basInfOutputX_3` formuliert.

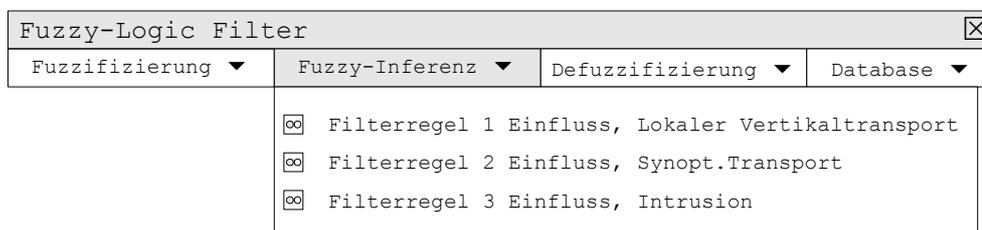


Abb. 5-4 Menüstruktur zur Fuzzy-Inferenz

### 5.2.3 Defuzzifizierung

In der Defuzzifizierung erfolgt die Kennzeichnung der Datensätze mit einem Data-Flag für einen Luftmassen-Einfluss. Nach der Methode des Maximum-of-Mean wird für die formulierten Implikationen der maximale Fuzzy-Output bestimmt und nach der festgelegten Mindestanforderung eines Zugehörigkeitsgrades von 0,5 in die binäre Grundmenge  $\{0, 1\}$  eingeteilt. Die zugehörigen Berechnungsschritte sind in dem Modul `proc_basDataFlag` abgelegt. Die Tabelle `calc_DataFlag` enthält neben Datum und Uhrzeit die ermittelten Fuzzy-Outputs der drei formulierten Filterregeln. Die Tabellenstruktur der Tabelle `calc_Data-Flag` ist das Ergebnis der Filteranwendung und wird für die Archivierung in die Datenbank `dbData` zurückgespielt, beispielhafte Datensätze sind in Abb. 5-5 aufgeführt.

In der Datenspalte `qcpDataFlag` wird ein Datensatz mit 1 gekennzeichnet, wenn eine Filterregel einen Zugehörigkeitsgrad für den Fuzzy-Output von mindestens 0,5 besitzt. Zusätzlich wird über die Datenspalte `qcpFilter` die Abkürzung des Filters genannt, der zur Kennzeichnung geführt hat. Der Datensatz ist somit für die Station als nicht repräsentativ zu deklarieren und bleibt im Rahmen der Ausweisung repräsentativer Daten unberücksichtigt. Die Weiterführung des zusätzlichen Informationsgehaltes der graduellen Bewertung eines Luftmassen-Einflusses erfolgt über die Datenspalte `qcpFuzzyGrad` mit Gradangabe für den Fuzzy-Output. Ein Data-Flag von 0 entspricht der Aussage, dass die Messdaten repräsentativ für die Station sind, da kein Luftmassen-Einfluss über die Filterregeln ermittelt wird, der Zugehörigkeits-

grad des Fuzzy-Outputs ist dann ebenfalls 0. Die Kennung -999 erfolgt für Datensätze, die aufgrund Datenausfalls eines oder mehrerer Filterparameter eine Filteranwendung nicht ermöglichen, der Fuzzy-Output ist ebenfalls -999. In der Datenspalte `qcpFilter` wird der Filter genannt, für den die Anwendung nicht möglich war. Ist für mehr als einen Filter eine Anwendung nicht durchführbar, so erfolgt eine Mehrfachnennung der Filter ohne Anwendung. Mit der expliziten Ausweisung der Filternennung ist zum Beispiel für den 24.02.1996 01:00:00 ein Luftmassen-Einfluss aus der Grundsicht nicht zu kennzeichnen, ein Einfluss infolge Intrusionen hingegen nicht auszuschließen, da der Filter 3 aufgrund des mit der Kalibrierungszeit von Ozon verbundenen Datenausfalls nicht anwendbar ist.

idDate	idTime	dtX1	dtX2	dtX3	qcpDataFlag	qcpFilter	qcpGrad
20.02.1996	12:00:00	0	0	0	0	-	0
20.02.1996	18:00:00	0,5	0	0	1	X1	0,5
20.02.1996	19:30:00	0,6	0,5	0	1	X1	0,6
24.02.1996	01:00:00	0	0	-999	-999	X3	-999
12.05.1996	20:00:00	-999	-999	0	-999	X1, X2	-999
...	...	...	...	...	...	...	...

Abb. 5-5 Tabellenstruktur der Ergebnistabelle `calc_DataFlag`

Datensatzbeispiele für die Ergebnistabelle `calc_DataFlag`. Die Datenfelder `dtX1`, `dtX2`, `dtX3` geben den ermittelten Zugehörigkeitsgrad für den Fuzzy-Output der entsprechenden Regel an; mit `x1` für Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten bzw. `x2` infolge Transportprozessen und `x3` für Einfluss infolge Intrusionen. Das Datenfeld `qcp_DataFlag` enthält die Kennzeichnung der Datensätze mit 0 für keinen Einfluss, 1 für Luftmassen-Einfluss und -999 für Fälle ohne Filteranwendung. In dem Feld `qcpFilter` wird der zum Data-Flag gehörige Filter aufgelistet, in dem Feld `qcpGrad` der entsprechende Zugehörigkeitsgrad.

Die Durchführung der Defuzzifizierung mit Data-Flag für die Datensätze erfolgt über den Menüpunkt `> Defuzzifizierung > DataFlag` (vgl. Abb. 5-6), die Tabelle `calc_DataFlag` wird hierfür inhaltlich gelöscht und dann auf Basis der zugrundeliegenden Daten neu berechnet und wiederum ausgegeben.



Abb. 5-6 Menüstruktur zur Defuzzifizierung

## 6 Filteranwendung und Auswertung

Die Erhöhung der Repräsentativität der Messreihen für den atmosphärischen Hintergrund beinhaltet eine Kennzeichnung von Luftmassen-Einfluss in den Datensätzen. Mit dem datenbankgestützten Software-Tool ist ein operationeller Einsatz der entwickelten Fuzzy-Logic Filter für die Globalstation durchführbar. Eine Filteranwendung mit Auswertung hinsichtlich Häufigkeit, Wirksamkeit und Beitrag für die Ausweisung repräsentativer Messdaten wird nachfolgend für die Messreihen der Globalstation Zugspitze am Beispiel für den Jahresdatensatz 1996 vorgestellt.

Die Auswertung der Datensatz-Kennzeichnung mit Luftmassen-Einfluss bezieht sich zunächst auf den Teilprozess der Fuzzy-Inferenz, der eine graduelle Information hinsichtlich eines Luftmassen-Einflusses über den Zugehörigkeitsgrad für den Fuzzy-Output einer Filterregel gibt. Für die Beurteilung der Wirksamkeit der drei Filter wird neben einer Häufigkeitsdarstellung zusätzlich eine konkrete Fallstudie aus dem Jahresdatensatz ausgewählt.

Das Ergebnis der Filteranwendung ist die in der Defuzzifizierung ermittelte binäre Datensatz-Kennzeichnung, die eine Ausweisung von Messdaten mit Luftmassen-Einfluss oder mit Repräsentanz für den atmosphärischen Hintergrund ermöglicht. Mit der Kennzeichnung der Datensätze erfolgt eine Datenselektion, die Messdaten mit Luftmassen-Einfluss für die Ausweisung repräsentativer Daten unberücksichtigt lässt. Der Beitrag der Filterung auf die auszuweisenden Konzentrationsverhältnisse erfolgt abschließend als Abschätzung für die ausgewählten Spurengase Kohlenmonoxid, Methan, Kohlendioxid und Ozon über den Vergleich von Mittelwert und Standardabweichung zwischen ungefilterter und gefilterter Messreihe.

### 6.1 Kennzeichnung der Datensätze

Die ermittelte Kennzeichnung der Messreihen wird zunächst getrennt für die drei formulierten Filter dargestellt. Nach der Jahresübersicht mit Abbildung der Fuzzy-Inputs für die Filterparameter jeder Filterregel wird der ermittelte Fuzzy-Output mit Differenzierung nach Monat und Zugehörigkeitsgrad diskutiert. Insgesamt wird über die Häufigkeitsverteilung der ermittelten Fuzzy-Outputs über einen Luftmassen-Einfluss deutlich, dass es sich zum Teil um typische Strukturen für das ausgewählte Jahr 1996 handelt, die eine hohe Anzahl von stratosphärischen Intrusionen in den Monaten Januar und Oktober sowie einen Einfluss aus der Grundschicht verstärkt in den Monaten Februar und Juni beinhalten. Die Auswahl einer Fallstudie für eine Episode mit Intrusion im Oktober 1996 soll darüber hinaus für alle drei Filter den Eingang der Filterparameter in die Regel und den daraus ermittelten Fuzzy-Output näher verdeutlichen. Die anschließende Auswertung der binären Datensatz-Kennzeichnung ab

einem Zugehörigkeitsgrad für den Fuzzy-Output von mindestens 0,5 erfolgt als sogenannter Data-Flag und ist das Ergebnis der Filteranwendung für das zusammenfassende Regelwerk.

### 6.1.1 Filter 1 - Einfluss infolge Vertikaltransporten

Die formulierte Filterregel für Einfluss infolge Vertikaltransporten mit primär lokaler Induzierung wird mit den Tracern für bodennahe Luftmassen Kohlenmonoxid und Natürliche Radioaktivität aufgestellt. Die Zeitreihen mit den ermittelten Fuzzy-Inputs der beiden Filterparameter sind als Übersicht für das Jahr 1996 in Abb. 6-1-a-b dargestellt.

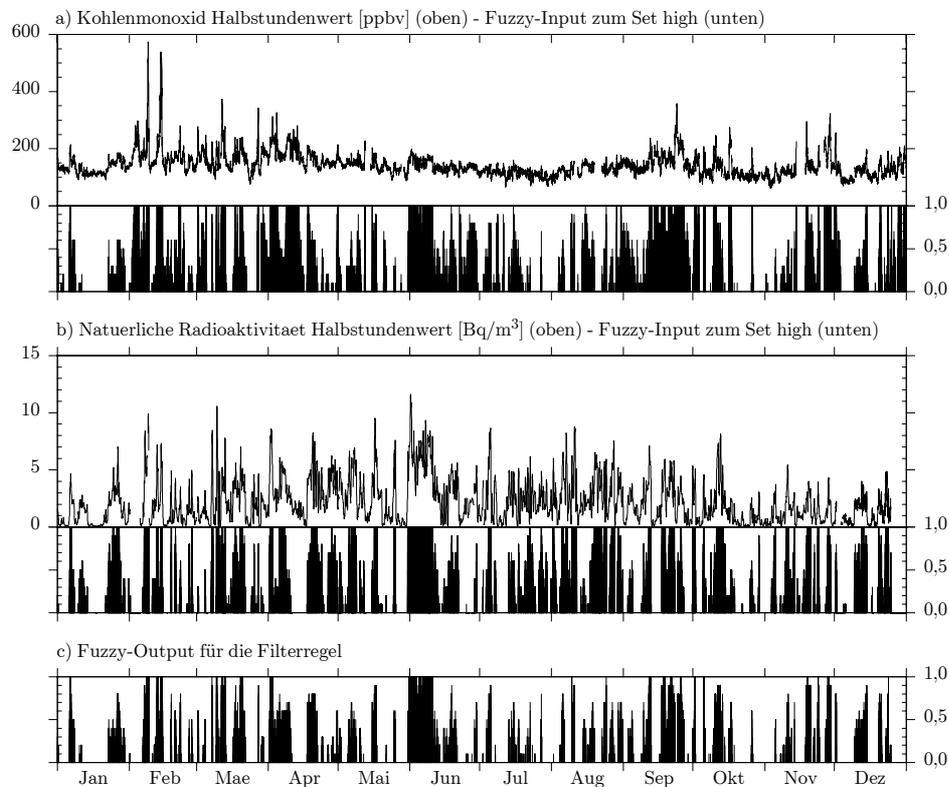


Abb. 6-1 Filter 1 - Fuzzy-Inputs und -Output, 1996

Filter 1: Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten

a)-b) Filterparameter mit Darstellung der Zeitreihe (oben) und der Fuzzy-Inputs (unten), die den Zugehörigkeitsgrad zu den formulierten Fuzzy-Sets beinhalten (hohe Werte für Kohlenmonoxid und Natürliche Radioaktivität).

c) Fuzzy-Output als Ergebnis der Fuzzy-Inferenz mit Angabe des Zugehörigkeitsgrades.

Die hohe Anzahl der ermittelten Fuzzy-Inputs mit einer Zugehörigkeit zum Fuzzy-Set high zeigt, dass die Filterparameter insgesamt sehr häufig von der formulierten Filterregel angesprochen werden. In der Verteilung über das Jahr treten für Kohlenmonoxid vor allem die Monate April, Juni und September mit einer hohen Anzahl

von Fuzzy-Inputs hervor. Für den Tracer Natürliche Radioaktivität ist eine vergleichbare Episode hoher Werte lediglich Anfang Juni feststellbar. Der kausale Zusammenhang zu primär lokal induzierten Vertikaltransporten wird durch den mit Tagesgang gekennzeichneten Tracer Natürliche Radioaktivität gegeben, so dass der Tracer als limitierender Filterparameter in der Filterregel fungiert. Die Fuzzy-Inputs für den Filterparameter Natürliche Radioaktivität zeigen eine ähnliche Verteilungsstruktur wie die des ermittelten Fuzzy-Output (vgl. Abb. 6-1-c)

Von den 17568 Halbstunden-Datensätze im Jahr 1996 ist für 16540 Datensätze bzw. 94,1% eine Filteranwendung mit Ermittlung eines Fuzzy-Outputs möglich. Ein Zugehörigkeitsgrad von Null entspricht einer Filteranwendung mit der Aussage, dass die Filterparameter nicht von der Filterregel angesprochen werden und kein Einfluss infolge Vertikaltransporten über die geforderten Filteranforderungen vorliegt. Ein Fuzzy-Output mit einem Zugehörigkeitsgrad von Null liegt für 11457 bzw. 69,3% Datensätze vor. Das Ansprechen der Filterregel mit weiterer Differenzierung nach Zugehörigkeitsgrad und Monat zeigt Tab. 6-1, Abb. 6-2 die zugehörige prozentuale Häufigkeit. Die Monate Mai und Juli zeigen in den Sommermonaten eine auffällig niedrige Fallzahl von Luftmassen-Einfluss infolge lokal induzierter Vertikaltransporte an der Station. Hingegen kommt ein Luftmassen-Einfluss für 30,3% der Zeit im Juni am häufigsten vor, in den Monaten September und April beträgt ein Einfluss 25,6% bzw. 22,9% der Zeit, die mit einem Zugehörigkeitsgrad von mindestens 0,5 als Data-Flag zu kennzeichnen sind. Für das Jahr 1996 sind es insgesamt 14,9% der Datensätze, die mit einem Data-Flag für einen Einfluss infolge lokal induzierter Vertikaltransporte zu kennzeichnen sind.

Tab. 6-1 Filter 1 - Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output, 1996

Filter1: Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten

Anzahl der Halbstunden-Datensätze mit Differenzierung nach Monat und Zugehörigkeitsgrad

	Jan	Feb	Mae	Apr	Mai	Jun	Jul	Aug	Sep	Okt	Nov	Dez	1996
Anzahl der Halbstunden-Datensätze insgesamt													
	1488	1392	1488	1440	1488	1440	1488	1488	1440	1488	1440	1448	17568
Anzahl der Datensätze ohne Filteranwendung aufgrund Datenausfall													
-999	0	209	22	17	26	67	9	203	7	32	122	314	1028
Grad	Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output nach Zugehörigkeitsgrad												
≥ 0,0	1488	1183	1466	1423	1462	1373	1479	1285	1433	1456	1318	1174	16540
≥ 0,1	419	412	410	636	292	688	175	401	610	306	411	323	5083
≥ 0,2	375	358	376	584	256	642	150	352	568	285	353	301	4600
≥ 0,3	293	289	314	503	211	557	119	284	510	256	293	242	3871
≥ 0,4	171	246	255	412	163	476	82	226	445	220	251	177	3124
≥ 0,5	101	216	228	326	115	417	57	144	367	161	211	117	2460
≥ 0,6	76	176	182	227	73	372	40	90	291	126	177	74	1904
≥ 0,7	51	145	142	137	54	322	29	43	229	88	146	46	1432
≥ 0,8	33	122	112	74	31	282	14	24	171	47	119	22	1051
≥ 0,9	13	86	81	51	20	247	4	16	121	21	77	6	743
= 1,0	10	73	39	42	11	170	0	2	66	10	32	2	457

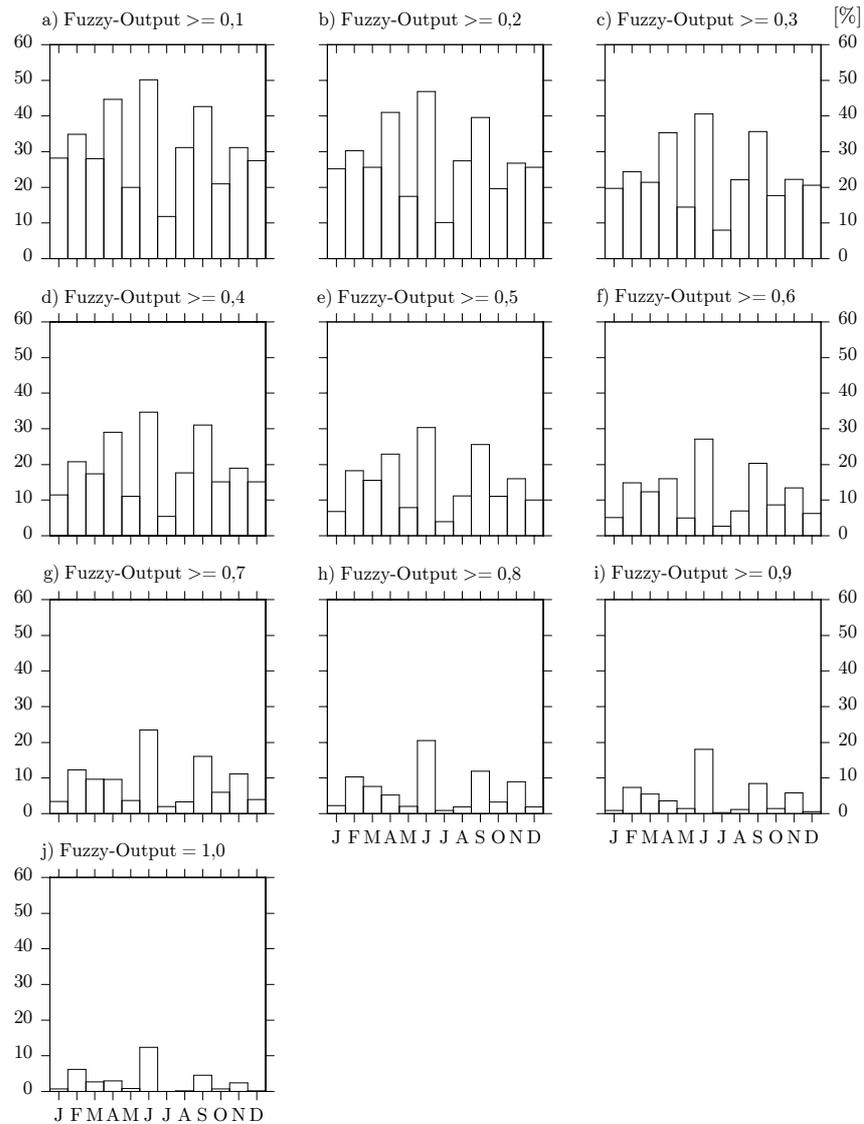


Abb. 6-2 Filter 1 - Anteil der Datensätze mit Fuzzy-Output, 1996

Filter 1: Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten

a)-j) Monatlicher Anteil [%] der Halbstundendatensätze mit Fuzzy-Output differenziert nach Zugehörigkeitsgrad für 1996.

Die Bedeutung des limitierenden Filterparameters Natürliche Radioaktivität wird auch in der tageszeitlichen Auswertung der Häufigkeit der Datensätze mit einem kennzeichnenden Fuzzy-Output deutlich, die in Abb. 6-3 dargestellt sind. In den Monaten März bis Oktober 1996 ist mit Ausnahme des Juli ein deutlicher Tagesgang in der Kennzeichnung der Datensätze erkennbar. Im Juni 1996 beträgt ein Einfluss in den Nachmittagsstunden (15:30 MEZ) 50%, in den Morgenstunden hingegen zum Teil unter 20% (05:00 MEZ). Es wird außerdem deutlich, dass die Filterung zwar verstärkt auf tageszeitlich induzierte Vertikaltransporte eine Anwendung findet, jedoch auch nachts Episoden nicht auszuschließen sind und konvektive Luftmassen auch nach dem dynamischen Vorgang der Konvektion noch auf dem Niveau der Station verbleiben.

Abb. 6-4 zeigt einen Ausschnitt aus Abb. 6-1 für den Februar 1996 mit Episoden extrem hoher Kohlenmonoxid-Konzentrationen von bis zu über 500 ppbv. Der Tracer Natürliche Radioaktivität korreliert mit dem Auftreten hoher Kohlenmonoxid-Konzentrationen, wobei seine Werte mit bis zu  $10 \text{ Bq/m}^3$  deutlich über dem Monatsmittel von unter  $2 \text{ Bq/m}^3$  und dem 95%-Perzentil von  $6,0 \text{ Bq/m}^3$  liegen (vgl. Anhang, Tab. A.7-2, Seite 218). Zu beachten ist der Datenausfall der Natürlichen Radioaktivität in den Abendstunden des 08. Februars, der zu keiner Filteranwendung führt.

Ein weiteres Fallbeispiel für den 04. Oktober 1996 (vgl. Abb. 6-5) zeigt, dass die hohen Kohlenmonoxid-Konzentrationen hingegen nur für den 05. und 06. Oktober mit erhöhten Werten der Natürlichen Radioaktivität korrelieren. Für den 02. Oktober bis zum Einsetzen der Intrusion (vgl. nachstehendes Kapitel 6.1.3) am Nachmittag des 03. Oktober sind die dort auftretenden hohen Kohlenmonoxid-Konzentrationen mit dem Filterparameter Trajektorienverlauf der nachfolgend beschriebenen Filterregel 2 als Einfluss aus der Grundsicht zu identifizieren.

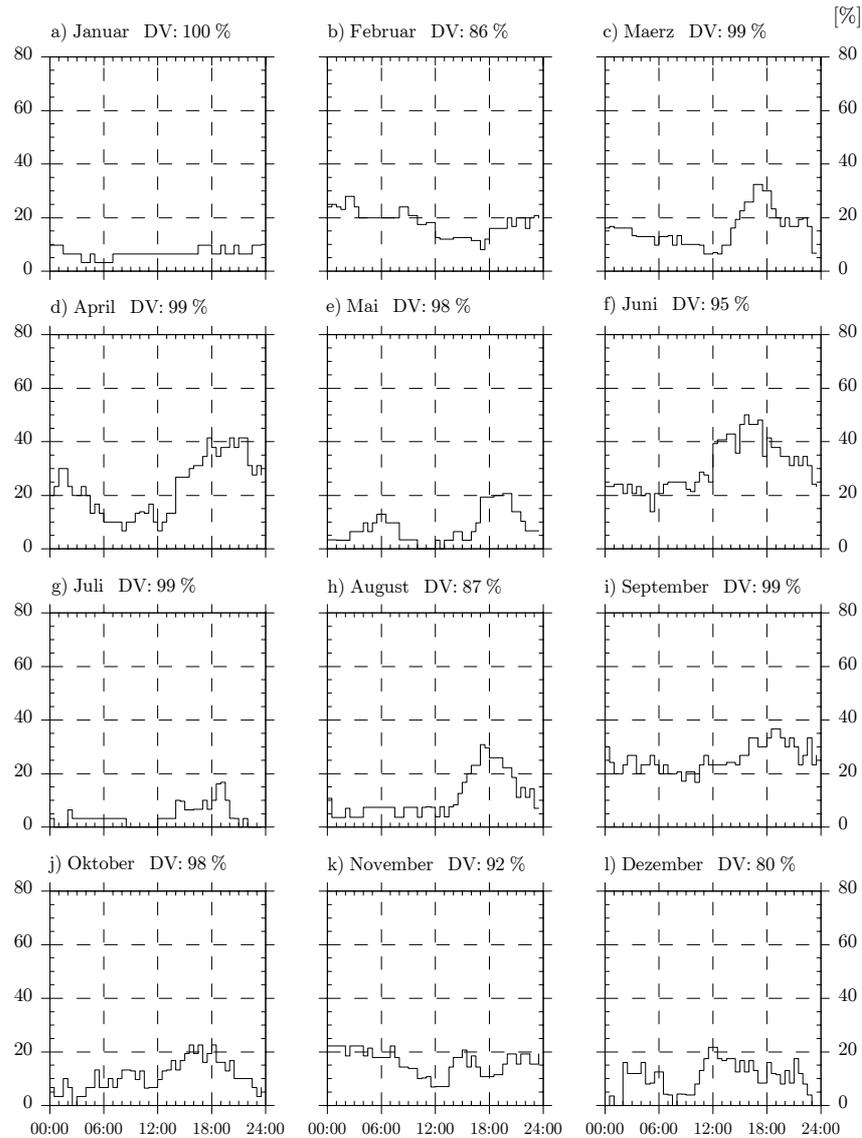


Abb. 6-3 Filter 1 - Tageszeitliche Abhängigkeit eines Data-Flag, 1996

Filter 1: Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten

a)-l) Prozentualer Anteil der Datensätze mit Data-Flag (Fuzzy-Output mit Zugehörigkeitsgrad von mindestens 0,5) mit Differenzierung nach Monat und Tageszeit.

DV: Datenverfügbarkeit [%] der Datensätze mit Filteranwendung

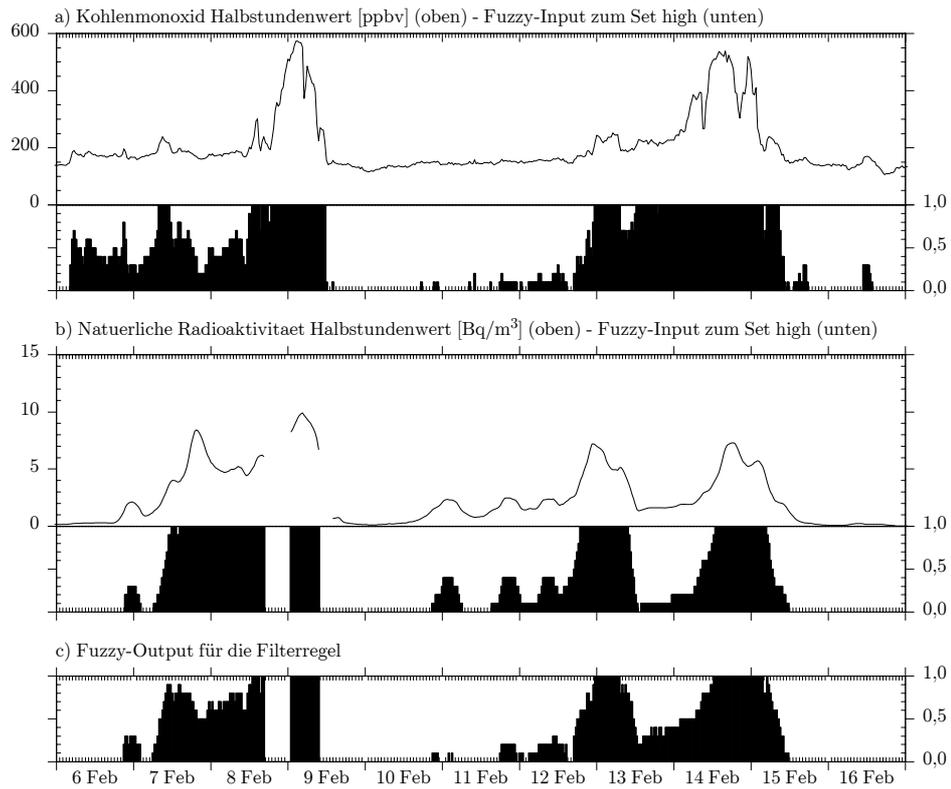


Abb. 6-4 Filter 1 - Fuzzy-Inputs und -Output, Fallbeispiel Februar 1996

Filter 1: Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten

Auszug aus Abb. 6-1 für den 06. bis 16.02.1996

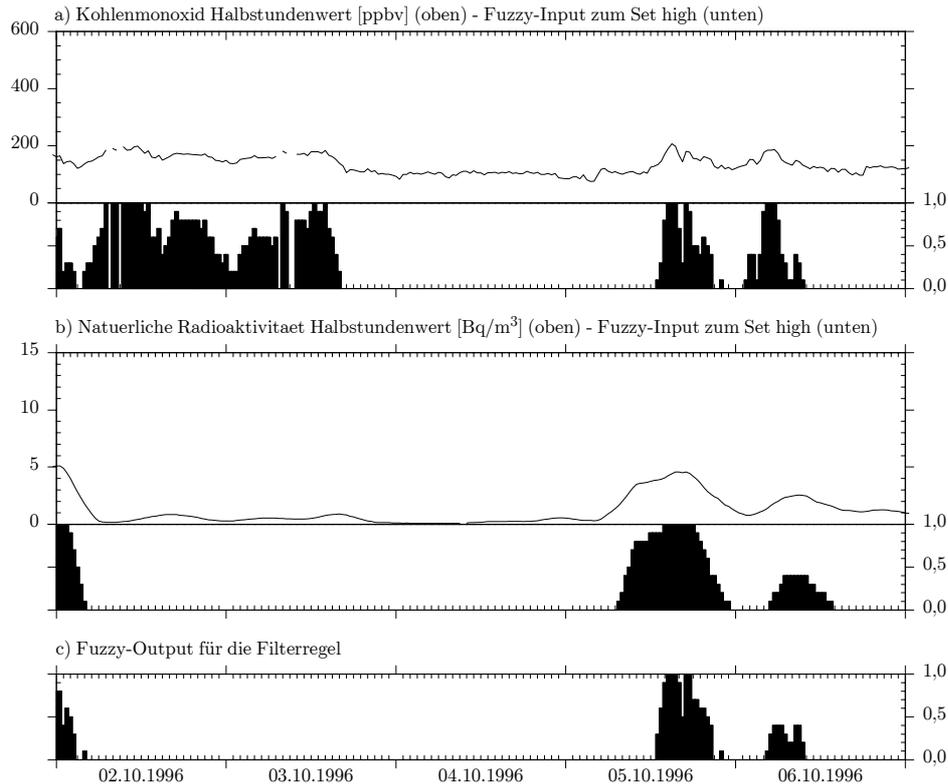


Abb. 6-5 Filter 1 - Fuzzy-Inputs und -Output, Fallbeispiel Oktober 1996

Filter 1: Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten

Auszug aus Abb. 6-1 für den 02. bis 06.10.1996

### 6.1.2 Filter 2 - Einfluss infolge Transportprozessen

Neben lokal induzierten Vertikaltransporten führen auch synoptisch bedingte Transportprozesse in Verbindung mit Luftmassen-Aufenthalt in der Grundsicht und anschließendem advektiven Herantransport zu einer Beeinflussung an der Station. Hinweise über den zurückliegenden Verlauf der an die Station transportierten Luftmassen liefern dreidimensionale Rückwärtstrajektorien. Eine Abschätzung für das Potential einer damit verbundenen Luftmassen-Konzentrationsänderung an der Station erfolgt über den Einbezug eines Emissions-Inventars unter Berücksichtigung der atmosphärischen Lebensdauer und einer Minderung durch Transportprozesse. Das Berechnungsmodell, die relativ niedrige zeitliche Auflösung der Trajektorien- und des Emissionsinventars beinhalten gewisse Unsicherheiten, die durch den zusätzlichen Einbezug des Tracers Kohlenmonoxid verbessert werden können. Der zusätzliche Einbezug von Kohlenmonoxid stützt die zweite Filterregel um eine Überprüfung einer tatsächlichen Ausprägung in der Messreihe.

Abb. 6-6 zeigt als Übersicht für das Jahr 1996 neben der Messreihe die Fuzzy-Inputs für die zwei Filterparameter Kohlenmonoxid und Trajektorienverlauf und den daraus ermittelten Fuzzy-Output. Analog zu Filter 1 für Luftmassen-Einfluss infolge von Vertikaltransporten bezieht sich der Fuzzy-Input für den Tracer Kohlenmonoxid als Störung in der Messreihe auf hohe Konzentrationswerte (Abb. 6-1-a, Abb. 6-6-a). Die Ermittlung eines Fuzzy-Inputs für einen Trajektorienverlauf ergibt sich aus den Kriterien Aufenthaltshöhe und mögliche Konzentrationsaufnahme der einzelnen zugehörigen Trajektorienverlauf-Stunden. Für den Filterparameter Trajektorienverlauf wird in der Übersichtsgrafik Abb. 6-6-b zunächst ein jahreszeitlicher Verlauf deutlich, der Parameter wird insbesondere in den Sommermonaten mit einer hohen Häufigkeit von der Regel angesprochen. Während in den Wintermonaten November bis Februar das strukturelle Bild (Abb. 6-6-c) der Fuzzy-Outputs im wesentlichen von den Fuzzy-Inputs des Parameters Trajektorienverlauf bestimmt wird, ist in den Sommermonaten nur noch eine geringe Dominanz erkennbar und der luftchemische Filterparameter gewinnt an Einfluss in der Ermittlung eines Fuzzy-Outputs. Insgesamt liegt die Häufigkeit in den Monaten Juni und September am höchsten, in den Monaten wie Oktober, Dezember und Januar am niedrigsten.

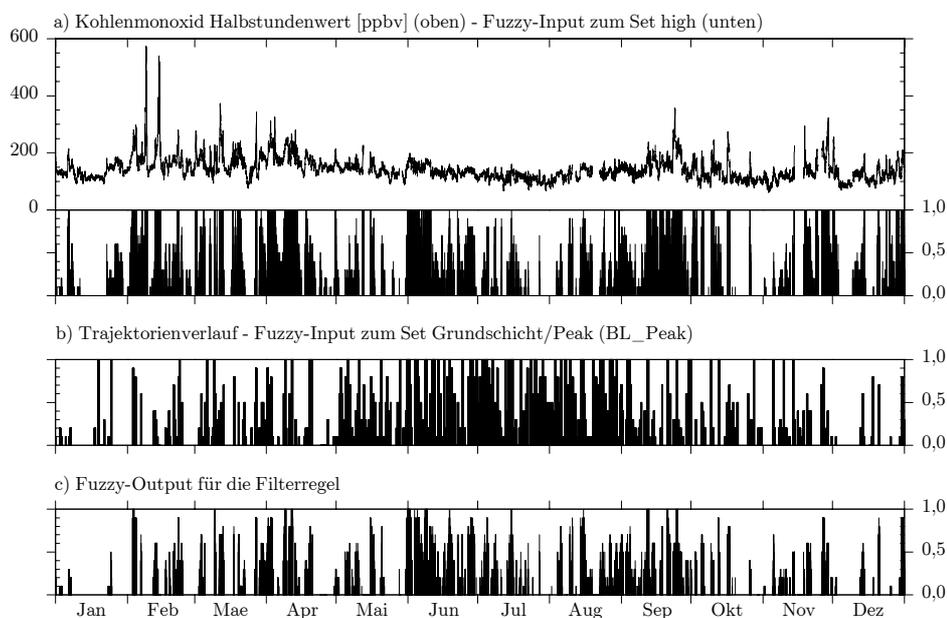


Abb. 6-6 Filter 2 - Fuzzy-Inputs und -Output, 1996

Filter 2: Luftmassen-Einfluss infolge Transportprozessen

a)-b) Filterparameter mit Darstellung der Zeitreihe (oben) und der Fuzzy-Inputs (unten), die den Zugehörigkeitsgrad zu den formulierten Fuzzy-Sets beinhalten (hohe Werte für Kohlenmonoxid, Grundsicht-Aufenthalt mit möglicher Konzentrationsänderung für das Kriterium Trajektorienverlauf).

c) Fuzzy-Output als Ergebnis der Fuzzy-Inferenz mit Angabe des Zugehörigkeitsgrades.

Tab. 6-2 gibt für das Jahr 1996 die Anzahl der Datensätze mit Angabe des Zugehörigkeitsgrades für den Fuzzy-Output nach Monaten getrennt an, die prozentuale Häufigkeit zeigt Abb. 6-7. Für das Jahr 1996 ist für 96,0% bzw. 16849 von 17568 Halbstunden-Datensätzen eine Filteranwendung mit Ermittlung eines Fuzzy-Outputs möglich. Hiervon besitzen 72,4% der Halbstunden-Datensätze einen Fuzzy-Output von 0,0 und werden aufgrund der Ausprägung der Parameter von der Filterregel nicht angesprochen. Mit einem Zugehörigkeitsgrad von 0,3 für den Fuzzy-Output ist ein sehr schwacher Einfluss infolge synoptisch bedingter Transportprozesse für knapp 20% Datensätze feststellbar. Mit Erhöhung der Anforderungen an die Filterparameter nimmt auch die Anzahl der ermittelten Fuzzy-Outputs sehr schnell ab. Der minimal geforderte Zugehörigkeitsgrad von 0,5 für einen Data-Flag ist im Jahr 1996 insgesamt für 11,6% der Datensätze mit einem Einfluss zutreffend.

Die in den Sommermonaten auftretende hohe Häufigkeit von Einflüssen infolge von Transportprozessen ist auf die zu dieser Jahreszeit allgemein verstärkten Austauschvorgänge der unteren Troposphäre zurückzuführen. Im Monat Juni ist mit den Anforderungen eines Data-Flag (Zugehörigkeitswert von mindestens 0,5 für den Fuzzy-Output) für 29,8% der Zeit ein Einfluss an der Station infolge synoptisch bedingter Vertikaltransporte mit anschließendem advektiven Herantransport identifizierbar, im August für 15,1% und im September für 24,1%. Im Juli hingegen ist nur eine vergleichsweise geringe Anzahl von Einflüssen mit einem Data-Flag zu kennzeichnen, die bei lediglich 7,0% der Zeit liegt. Ein Einfluss aus der Grundschicht ist im Juli 1996 witterungsbedingt gering, die Konzentrationswerte für Kohlenmonoxid sind allgemein niedriger, hingegen ist in diesem Monat ein stratosphärischer Einfluss infolge Intrusionen häufiger (vgl. nachstehendes Kapitel 6.1.3).

Der Januar 1996 ist durch eine hohe Häufigkeit von stratosphärischen Intrusionen gekennzeichnet, gleichzeitig ist lediglich ein schwacher Grundschicht-Einfluss mit einem Zugehörigkeitswert von mindestens 0,3 für weniger als 2% der Zeit feststellbar. Dieser auffällige gegensätzliche Zusammenhang zwischen Intrusionen und synoptisch bedingten Hebungsvorgängen ist im wesentlichen auf den Filterparameter Trajektorienverlauf der Filterregel 2 zurückzuführen, der demnach bei Einfluss infolge Intrusionen -wie in den Monaten Januar und Oktober- nicht die Fehlinformation eines Einflusses mit einer möglichen Konzentrationsänderung aus der Grundschicht ausgibt.

Tab. 6-2 Filter 2 - Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output, 1996

Filter 2: Luftmassen-Einfluss infolge Transportprozessen

Anzahl der Halbstunden-Datensätze mit Differenzierung nach Monat und Zugehörigkeitsgrad

	Jan	Feb	Mae	Apr	Mai	Jun	Jul	Aug	Sep	Okt	Nov	Dez	1996
Anzahl der Halbstunden-Datensätze insgesamt													
	1488	1392	1488	1440	1488	1440	1488	1488	1440	1488	1440	1448	17568
Anzahl der Datensätze ohne Filteranwendung aufgrund Datenausfall													
-999	0	48	29	50	109	46	10	247	15	28	127	10	719
Grad	Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output nach Zugehörigkeitsgrad												
≥ 0,0	1488	1344	1459	1390	1379	1394	1478	1241	1425	1460	1313	1478	16849
≥ 0,1	111	350	422	487	310	789	237	476	718	192	376	176	4644
≥ 0,2	72	329	350	397	244	747	212	401	620	186	310	141	4009
≥ 0,3	20	295	312	362	182	642	167	307	551	168	227	96	3329
≥ 0,4	6	197	244	296	137	529	142	257	440	114	175	72	2609
≥ 0,5	2	143	178	235	92	416	103	188	343	68	127	63	1958
≥ 0,6	0	105	119	213	58	327	68	131	249	48	70	46	1434
≥ 0,7	0	65	78	166	35	225	32	64	120	29	26	38	878
≥ 0,8	0	61	35	142	23	176	18	32	102	16	24	28	657
≥ 0,9	0	60	23	72	10	123	10	18	71	2	24	21	434
= 1,0	0	20	4	37	6	67	4	1	52	0	0	0	191

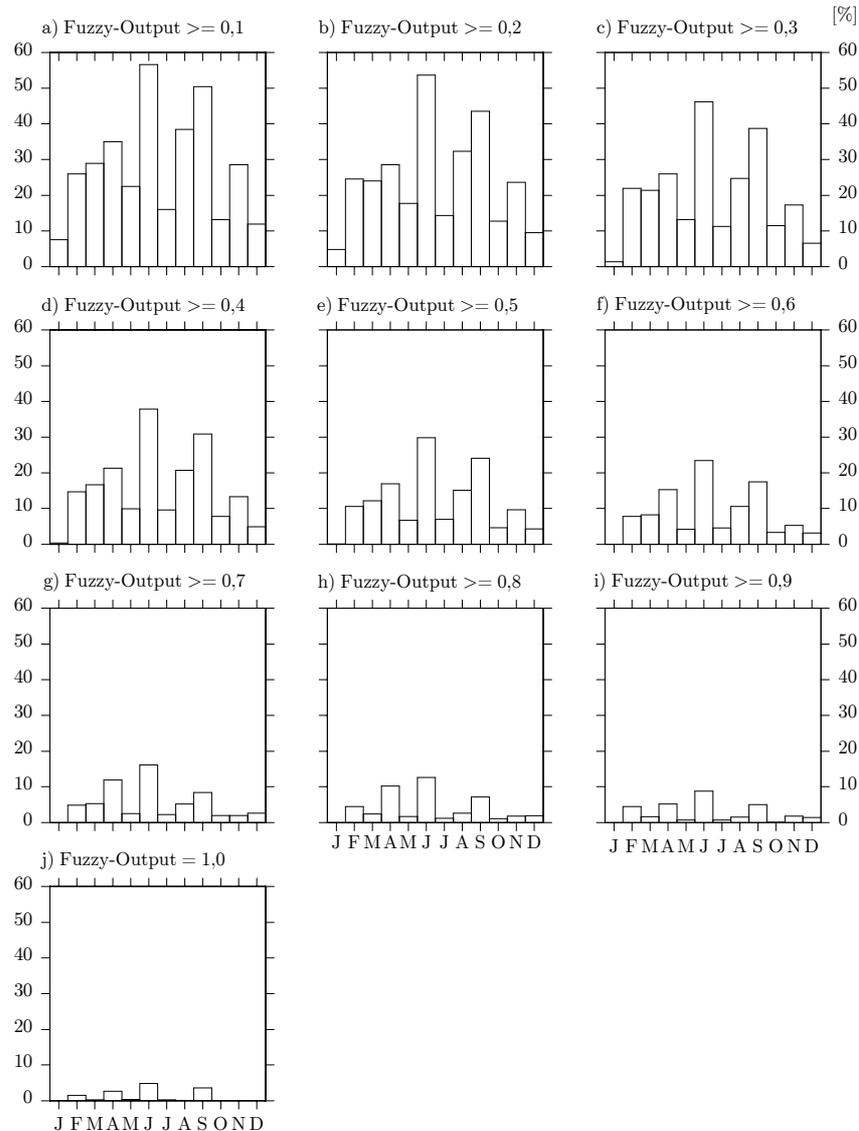


Abb. 6-7 Filter 2 - Anteil der Datensätze mit Fuzzy-Output, 1996

Filter 2: Luftmassen-Einfluss infolge Transportprozessen

a)-j) Monatlicher Anteil [%] der Halbstundendatensätze mit Fuzzy-Output differenziert nach Zugehörigkeitsgrad für 1996.

Lokal induzierte Vertikaltransporte sowie synoptisch bedingte Hebungsvorgänge mit anschließendem advektiven Herantransport beinhalten einen Einfluss aus der Grundschicht. Diese beiden Prozesse schließen sich in ihrer Ausprägung nicht gegenseitig aus, können sich vielmehr überlagern und zu einem verstärkten Einfluss aus der Grundschicht führen. Vor allem in Fällen mit synoptisch bedingten Vertikaltransport-

ten in mittelbarer Nähe zur Station, können die Filterparameter Natürliche Radioaktivität der Filterregel 1 und Trajektorienverlauf der Filterregel 2 eine Korrelation beinhalten.

Für das Fallbeispiel vom 02. bis 06. Oktober 1996 zeigt der Filterparameter Trajektorienverlauf einen Einfluss aus der Grundschrift für den Übergang vom 02. zum 03.10. sowie am 05. und 06.10. Der vertikale Verlauf der Rückwärtstrajektorien zeigt im Höhenprofil (vgl. Abb. 6-9) als ein Kriterium des Filterparameters Trajektorienverlauf für den 02. und 03. Oktober sowie ab 12 UTC des 05. Oktober einen Aufenthalt in niedrigen Höhen für die an die Station herantransportierten Luftmassen. Die Auswertung über das zweite Kriterium mit einer damit verbundenen Konzentrationsaufnahme führt hingegen für den Filterparameter Trajektorienverlauf nur zur Kennzeichnung des 03.10. 00:00 UTC sowie für den Zeitraum vom 05.10. 12:00 UTC bis 06.10. 00:00 UTC. Während die mit Tagesperiodizität auftretenden hohen Kohlenmonoxid-Konzentrationen am 05. und 06.10 von hohen Werten der Natürlichen Radioaktivität begleitet sind (vgl. Abb. 6-5), treten am 02./03.10 hohe Werte von Kohlenmonoxid für einen Teil ausschließlich mit Fuzzy-Inputs des Parameters Trajektorienverlauf auf (vgl. Abb. 6-8) und führen zu einer Kennzeichnung für den Übergang vom 02.10 zum 03.10.1996. Daneben wird deutlich, dass sich die über Rückwärtstrajektorien beschriebene Situation hinsichtlich eines möglichen Luftmassen-Einflusses in den Gesamtkontext fügt. Während der stratosphärischen Intrusion für den Zeitraum vom 04.10 bis 05.10 Mittags werden ausschließlich Luftmassen aus großen Höhen an die Station herantransportiert (vgl. Abb. 6-9-c-d).

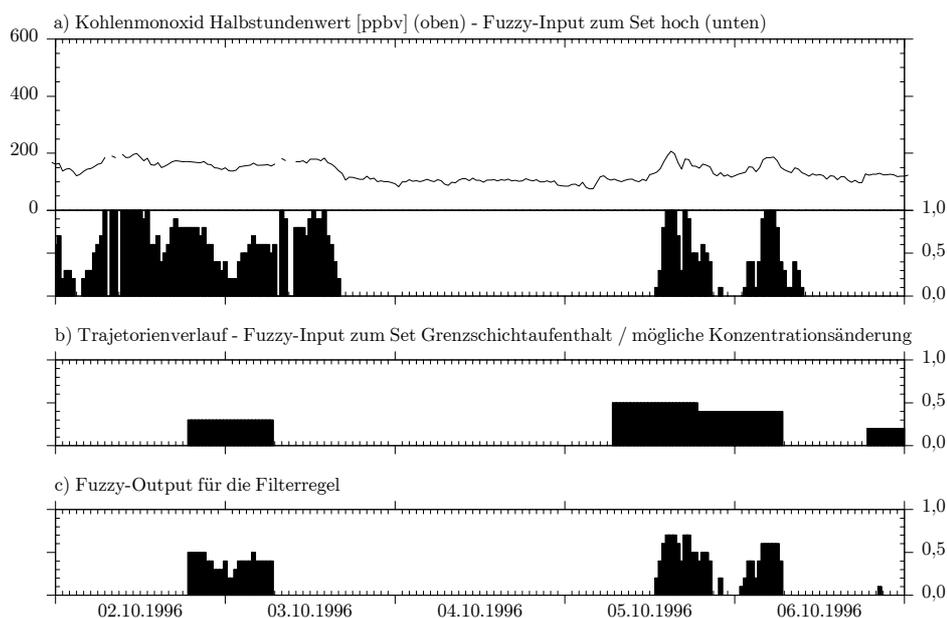


Abb. 6-8 Filter 2 - Fuzzy-Inputs und -Output, Fallbeispiel Oktober 1996

Filter 2: Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten  
Auszug aus Abb. 6-6 für den 02. bis 06.10.1996

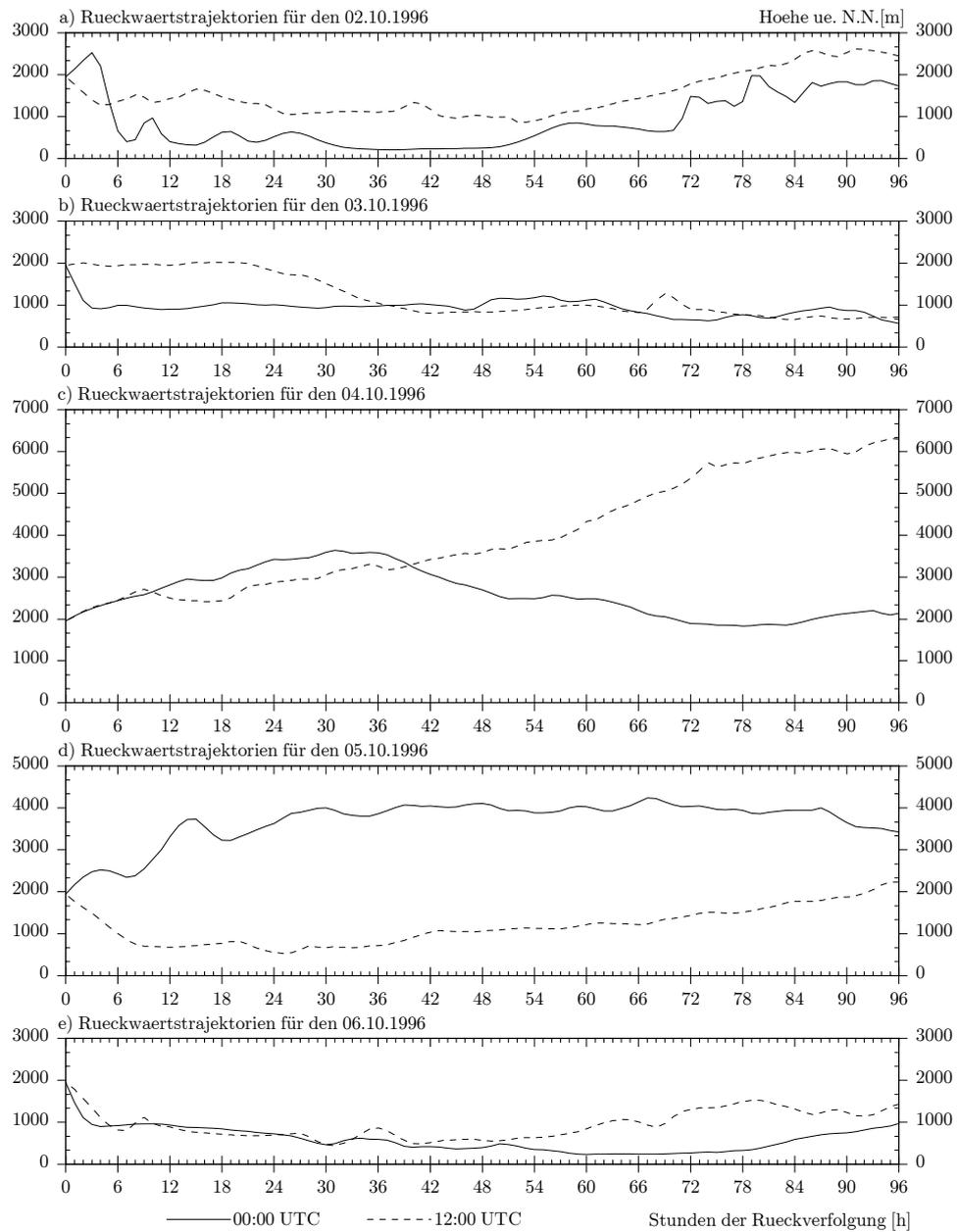


Abb. 6-9 Filter 2 - Trajektorienverlauf, Fallbeispiel Oktober 1996

Höhenprofil für den vertikalen Trajektorienverlauf mit Ankunftsniveau der 800 hPa-Druckfläche sowie 96-stündiger Rückverfolgung; für den 02.10. bis 06.10.1996 mit den zwei täglichen Terminrechnungen 00 UTC (01:00 MEZ) und 12 UTC (13:00 MEZ). Rückverfolgungs-Stunde 0 entspricht Ankunft an der Station Zugspitze.

### 6.1.3 Filter 3 - Einfluss infolge Intrusionen

Der Filter für Luftmassen-Einfluss infolge stratosphärischer Intrusionen beinhaltet die luftchemischen Parameter Ozon, Beryllium-7 und Kohlenmonoxid sowie die meteorologische Größe Relative Feuchte. Die Messreihen der vier Filterparameter sind als Zeitreihe mit den zugehörigen ermittelten Fuzzy-Inputs für das Jahr 1996 als Übersicht in Abb. 6-10-a-d dargestellt. Entsprechend der Ausprägung für Luftmassen aus großen Höhen bezieht sich der Fuzzy-Input für Ozon und Beryllium-7 auf den festgelegten Fuzzy-Set high, für Kohlenmonoxid und Relative Feuchte auf den Fuzzy-Set low. Der Filterparameter Beryllium-7 spiegelt überwiegend die bimodale Struktur der Messdaten wieder, die verstärkt entweder zu einem sehr niedrigen (0,0) oder zu einem sehr hohen Zugehörigkeitsgrad (1,0) führen. Für Kohlenmonoxid und Ozon wird insgesamt eine sehr hohe Anzahl von Halbstunden-Datensätzen von der Filterregel angesprochen. Zusätzlich sind für Ozon und Beryllium-7 einige zeitliche Episoden hoher Werte mit entsprechend hohen Fuzzy-Inputs erkennbar. Der meteorologische Filterparameter Relative Feuchte zeigt für die Sommermonate generell eine niedrige Anzahl von hohen Zugehörigkeitswerten und fungiert wie Beryllium-7 mit schwächerer Ausprägung aufgrund niedriger Fallzahlen als limitierender Faktor in der Ermittlung eines Fuzzy-Outputs.

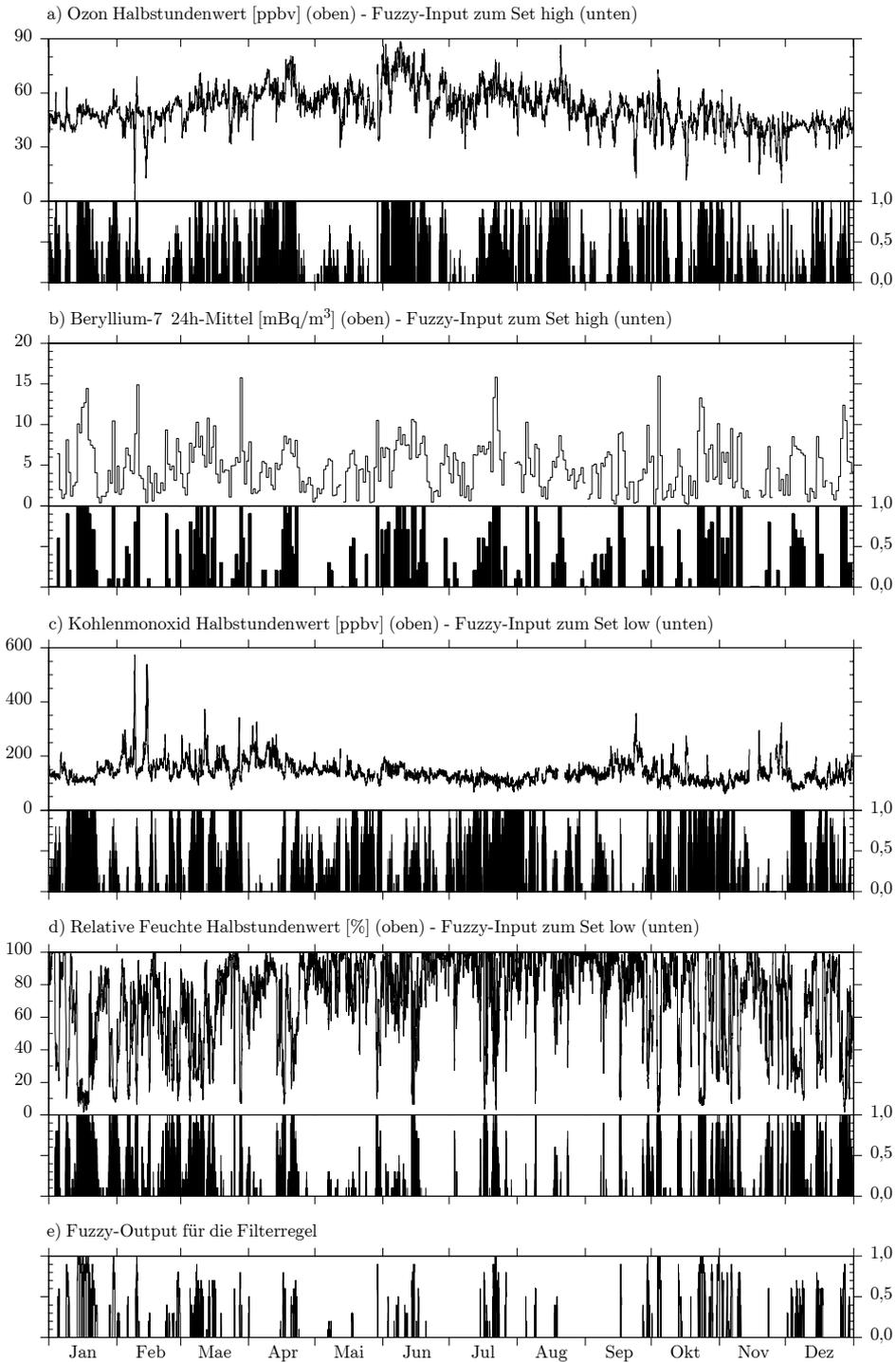
In der Grafik Abb. 6-10-e ist der für den Filter ermittelte Fuzzy-Output mit Angabe des Zugehörigkeitsgrades dargestellt und verdeutlicht bereits das saisonale Auftreten von Luftmassen-Einfluss in Verbindung mit stratosphärischen Intrusionen. In den Monaten Oktober, November, Januar und März wird neben einer hohen Anzahl von Ereignissen zusätzlich auch ein hoher Zugehörigkeitsgrad ermittelt.

#### Abb. 6-10 Filter 3 - Fuzzy-Inputs und -Output, 1996

Filter 3: Luftmassen-Einfluss infolge Intrusionen

a)-d) Filterparameter mit Darstellung der Zeitreihe (oben) und der Fuzzy-Inputs (unten), die den Zugehörigkeitsgrad zu den formulierten Fuzzy-Sets beinhalten (hohe Werte für Ozon und Beryllium-7, niedrige Werte für Kohlenmonoxid und Relative Feuchte). ▶

e) Fuzzy-Output als Ergebnis der Fuzzy-Inferenz mit Angabe des Zugehörigkeitsgrades.



Von den 17568 Halbstunden-Datensätzen im Jahr 1996 ist für 218 Datensätze eine Filteranwendung aufgrund Datenausfalls eines oder mehrerer Filterparameter nicht möglich, so dass sich die Aussage hinsichtlich eines Einfluss infolge Intrusionen auf 98,8% bzw. 17350 Halbstunden-Datensätze beschränkt. Insgesamt ist die Fallzahl für die Filteranwendung im Vergleich zum Datenausfall der vier Filterparameter jedoch relativ hoch. In der Fuzzy-Inferenz wird mit der Kompensations-Methode bereits bei Vorliegen eines Fuzzy-Inputs von Null stets auch ein Fuzzy-Output von Null ermittelt, so dass ein Datenausfall im Fall mindestens eines Fuzzy-Input von Null für die weiteren Filterparameter das Ergebnis nicht beeinflusst und eine Filteranwendung mit dem Ergebnis eines Fuzzy-Outputs von Null zulässt. Werden hingegen die Filterparameter von der Filterregel angesprochen, besitzen also einen Fuzzy-Input größer Null und liegt für ein oder mehrere Datensätze Datenausfall vor, so wird der Datensatz hinsichtlich einer Filteranwendung mit Datenausfall gekennzeichnet, was 1996 für 1,2% der Datensätze zutrifft. Die Anzahl der Datensätze mit den ermittelten Fuzzy-Outputs differenziert nach Monat und Zugehörigkeitsgrad gibt Tab. 6-3 an.

Tab. 6-3 Filter 3 - Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output, 1996

Filter 3: Luftmassen-Einfluss infolge Intrusionen

Anzahl der Halbstunden-Datensätze mit Differenzierung nach Monat und Zugehörigkeitsgrad

	Jan	Feb	Mae	Apr	Mai	Jun	Jul	Aug	Sep	Okt	Nov	Dez	1996
Anzahl der Halbstunden-Datensätze insgesamt													
	1488	1392	1488	1440	1488	1440	1488	1488	1440	1488	1440	1448	17568
Anzahl der Datensätze ohne Filteranwendung aufgrund Datenausfall													
-999	55	6	5	8	19	3	22	14	3	37	27	19	218
Grad	Anzahl der Datensätze mit Fuzzy-Output nach Zugehörigkeitsgrad												
$\geq 0,0$	1433	1386	1483	1432	1469	1437	1466	1474	1437	1451	1413	1469	17350
$\geq 0,1$	560	225	247	105	45	95	148	37	68	359	142	281	2312
$\geq 0,2$	560	219	245	102	29	94	147	35	68	358	132	281	2270
$\geq 0,3$	541	166	226	99	20	76	138	28	66	351	127	268	2106
$\geq 0,4$	497	122	198	88	13	63	125	13	54	328	112	230	1843
$\geq 0,5$	441	91	143	60	13	51	112	4	45	300	98	182	1540
$\geq 0,6$	399	64	108	36	12	40	93	2	41	272	69	136	1272
$\geq 0,7$	336	45	51	13	7	31	58	0	35	251	43	39	909
$\geq 0,8$	279	23	16	4	3	21	39	0	26	213	27	24	675
$\geq 0,9$	166	10	1	0	2	10	28	0	15	160	3	7	402
$= 1,0$	52	3	0	0	0	0	14	0	2	30	0	0	101

Die zugehörige Häufigkeit als prozentualer Anteil bezogen auf Halbstunden-Datensätze mit einer möglichen Filteranwendung (1996: 17350) ist in Abb. 6-11 dargestellt. Von diesen 17350 Halbstunden-Datensätzen mit einer durchführbaren Filteranwendung beträgt für 2312 Datensätze der Fuzzy-Output mindestens 0,1, womit -wenn auch nur sehr schwach- 13,3% der Datensätze von der Filterregel angesprochen werden. Mit Zunahme des Zugehörigkeitsgrades verringert sich entsprechend die Anzahl der Datensätze, wobei eine deutliche Reduzierung hinsichtlich der Anzahl auf unter 2000 erst bei einem Zugehörigkeitsgrad von 0,4 bzw. 0,5 auftritt. In der Defuzzifizierung zur Setzung eines Data-Flags für einen Datensatz wird ein Fuzzy-Output von mindestens 0,5 gefordert, der für 1540 Datensätze im Jahr 1996 ermittelt wird und einem Anteil von 8,9% der Zeit entspricht. Die im einführenden Kapitel 2.3.4 (vgl. Seite 21) erwähnte Häufigkeit von Intrusionen an der Zugspitze wird von [SCHEEL ET AL., 1999] je nach Kriterium mit einer durchschnittlichen Häufigkeit von 5-6% der Zeit für sehr starke und einer Häufigkeit von 10,5% für schwächere Ereignisse angegeben.

Mit dem zugrunde liegenden Fuzzy-Logic-Ansatz wird an dieser Stelle die differenzierte und weiterführende Auswertung der ermittelten Fuzzy-Outputs als Ergebnis der Filteranwendung deutlich. Ohne Veränderung der Eingangswerte besteht in dem Abschnitt der Defuzzifizierung die Möglichkeit den Zugehörigkeitsgrad für die Annahme des ermittelten Fuzzy-Output hinsichtlich der Härte für die Filterkriterien anzupassen. Die Variation des minimalen Zugehörigkeitsgrades für die Annahme eines Fuzzy-Output zur Kennzeichnung und Setzung eines Data-Flag entspricht einem Härtegrad der Filterkriterien und daraus folgend der Ausprägung des abzubildenden Prozesses. In Bezug zu den bereits genannten Vergleichswerten entspricht die Häufigkeit einer weniger stark ausgeprägten Intrusion von 10,6% der Annahme eines Zugehörigkeitswertes von mindestens 0,4, sehr starke und deutliche Intrusionen mit einer Häufigkeit von 5,2% wird mit der Mindestanforderung eines Zugehörigkeitswertes von 0,7 erreicht (vgl. Abb. 6-11).

Das Vorkommen eines Ereignisses mit Einfluss durch Intrusionen bezogen auf einen Kalendertag ist in Abb. 6-12 dargestellt. In der Auswertung nach Kalendertagen ist die Dominanz der Monate Oktober und Januar mit einer jeweils hohen zeitlichen Häufigkeit vor allem für schwache Intrusions-Ereignisse mit niedrigem Zugehörigkeitsgrad weniger stark ausgeprägt. Mit einem Zugehörigkeitsgrad von mindestens 0,5 wird für die Monate Januar, März an 13 Tagen und für Oktober an 12 Kalendertagen ein Einfluss ermittelt, für Dezember sogar an 14 Tagen. Hierzu im Vergleich beträgt die zeitliche Häufigkeit bei gleichem Zugehörigkeitsgrad im Januar 30,8%, im Oktober 20,7%, im Dezember 12,4% und im März 9,6%. Der Rückschluss auf Ausprägung und Dauer einer Episode zeigt vor allem für Januar und Oktober, dass ein Einfluss infolge Intrusionen während längerer Episoden von bis zu zwei Tagen stattfindet. In den übrigen Monaten mit einer relativ hohen Anzahl von Kalendertagen bei einer gleichzeitig niedrigen absoluten Fallzahl von Ereignissen ist neben der Ausprägung vor allem die Dauer der Episoden vergleichsweise kürzer. Im Jahr 1996 ist mit einem Zugehörigkeitsgrad von 0,5 insgesamt an 90 Tagen ein Luftmassen-Einfluss durch Intrusionen zu ermitteln.

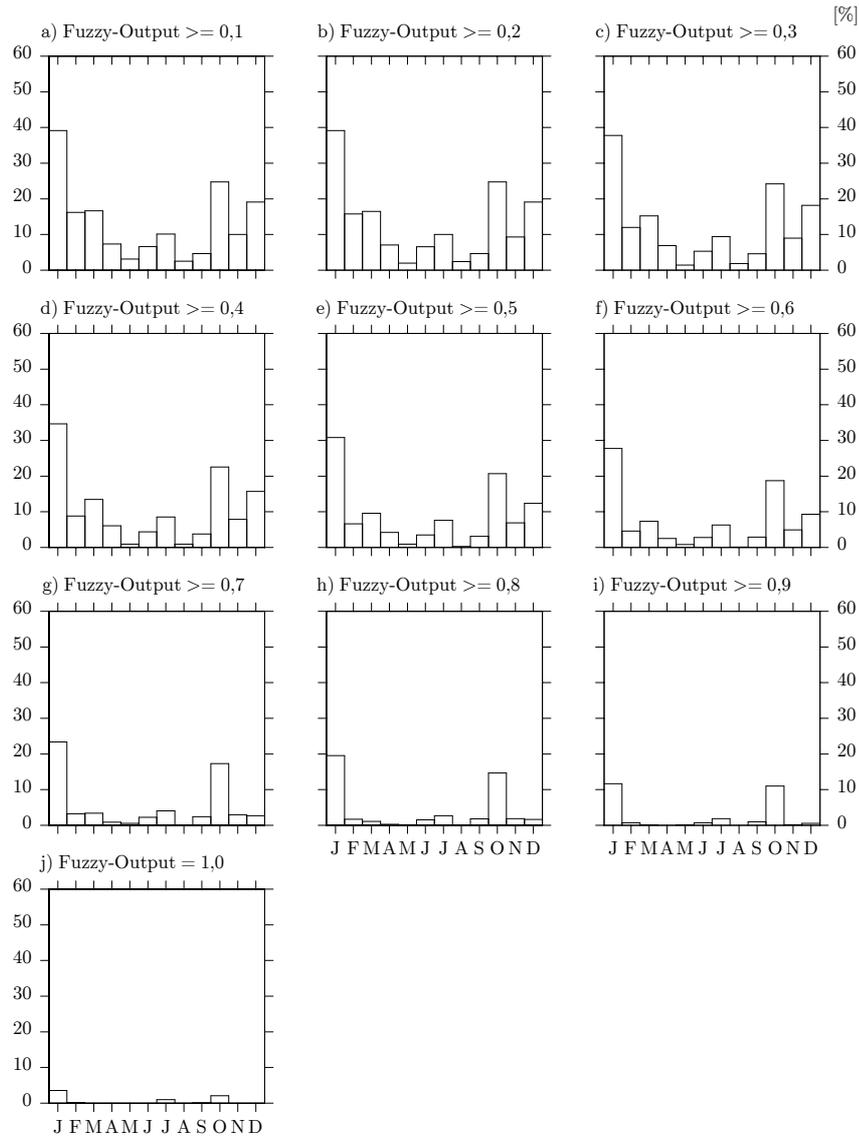


Abb. 6-11 Filter 3 - Anteil der Datensätze mit Fuzzy-Output, 1996

Filter 3: Luftmassen-Einfluss infolge Intrusionen

a)-j) Monatlicher Anteil [%] der Halbstundendatensätze mit Fuzzy-Output differenziert nach Zugehörigkeitsgrad für 1996.

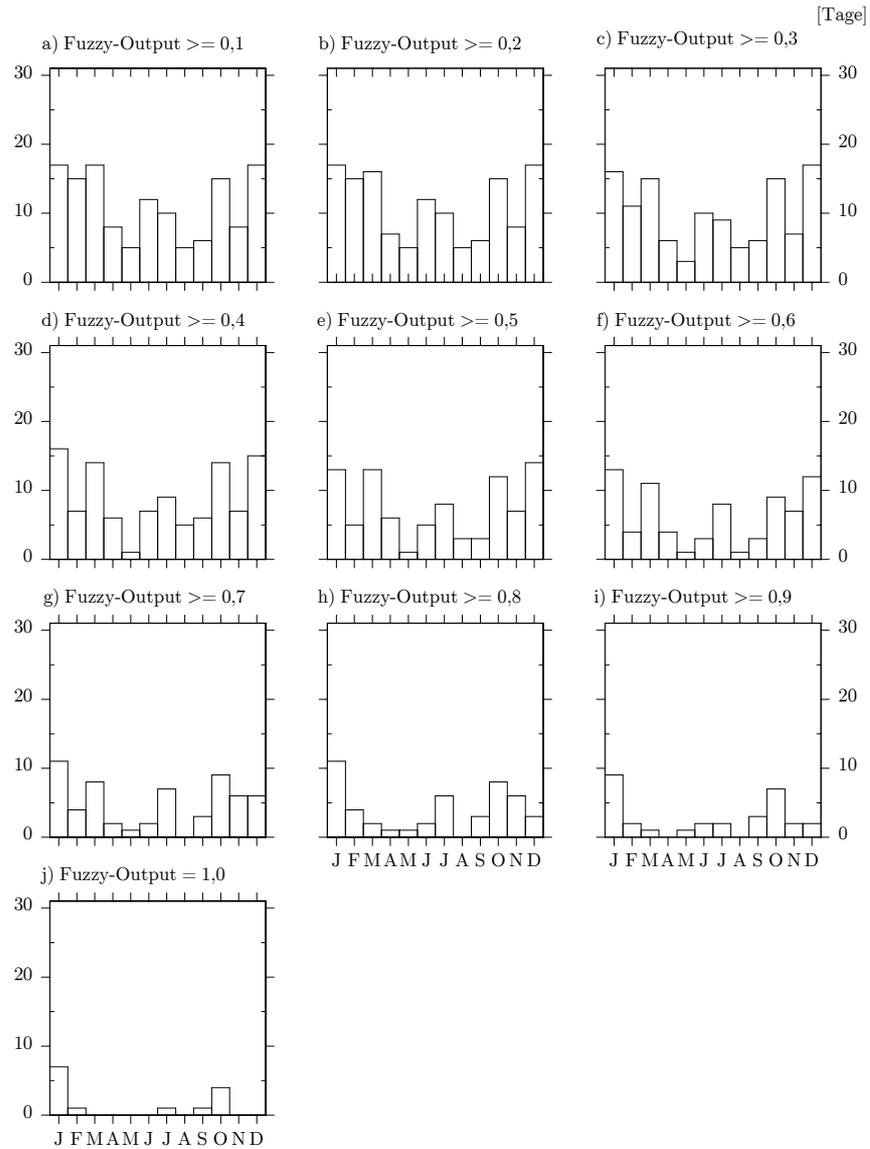


Abb. 6-12 Filter 3 - Anzahl der Kalendertage mit Fuzzy-Output, 1996

Filter 3: Luftmassen-Einfluss infolge Intrusionen

a) - j) Monatliche Anzahl der Kalendertage mit Fuzzy-Output differenziert nach Zugehörigkeitsgrad für 1996.

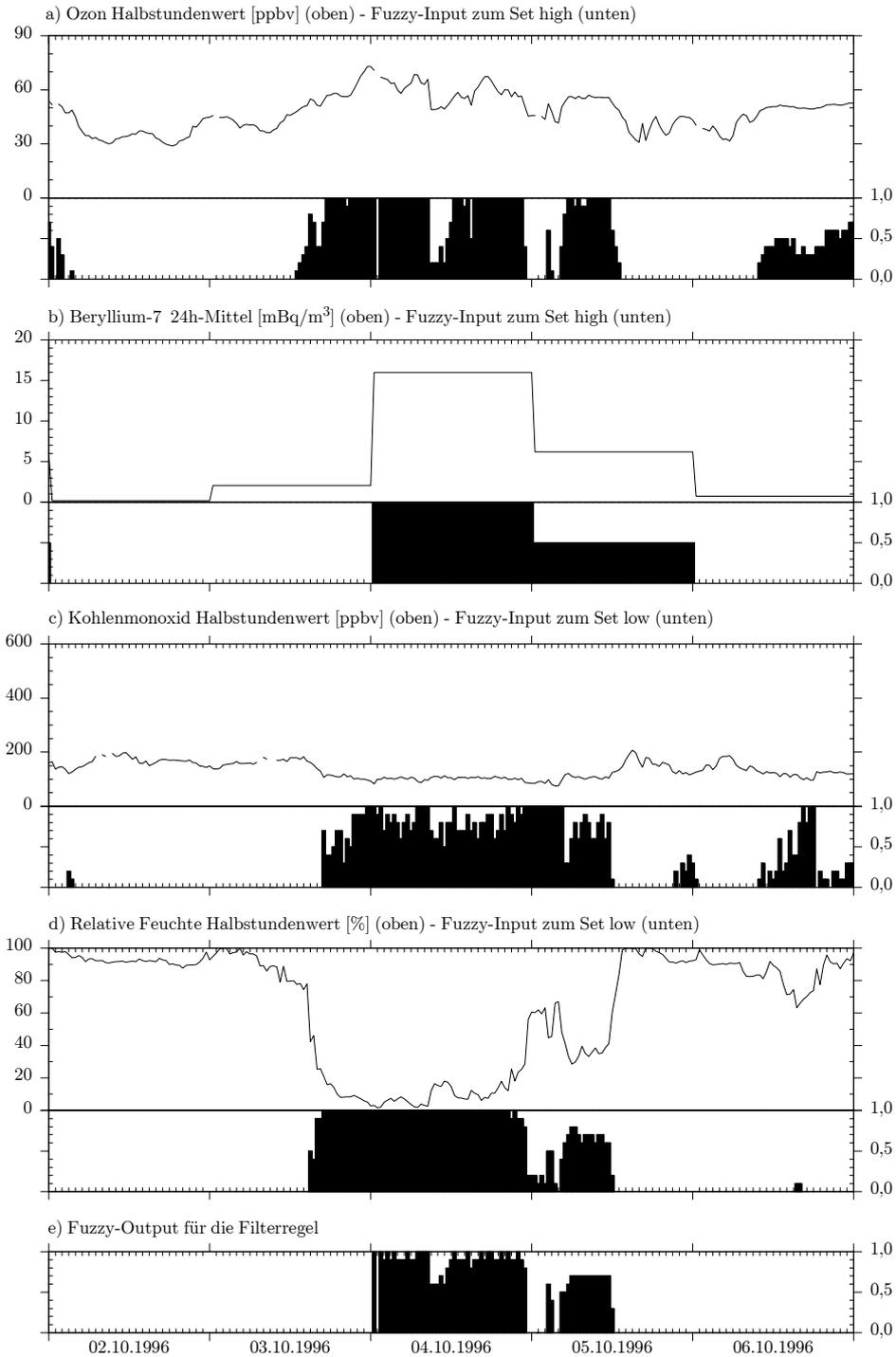
Mit dem gewählten Filteransatz wird an der Zugspitze für 8,9% der Zeit ein Luftmassen-Einfluss infolge Intrusionen ermittelt, der mit dem gewählten Zugehörigkeitsgrad von mindestens 0,5 für einen Data-Flag vergleichbar zwischen den erwähnten Ergebnissen von [SCHEEL ET AL., 1999] für starke (5-6%) und schwache Intrusionen (10,5%) liegt. Mit Maximum im Herbst und Winter sowie mit Minimum in den Sommermonaten entspricht diese Verteilung der registrierten Werte denen an Hochgebirgsstationen in vergleichbarer Höhe. Generell ist während der Sommermonate ein Einfluss durch Intrusionen an der Zugspitze jedoch nicht auszuschließen, der Juli 1996 zeigt hier im Gegensatz zu den anderen Sommermonaten eine relativ hohe Anzahl von stratosphärischen Einflüssen, die auf die jeweilige Wetterlage zurückzuführen ist. Die in den von [STOHL ET AL., 2000] dargestellten Fallstudien zur Episode am 04. Oktober 1996 sowie die Episode vom 27. Mai bis 06. Juni 1996 werden mit dem beschriebenen Filteransatz ebenfalls erkannt.

In Abb. 6-13 ist für die Episode vom 04. Oktober ein Auszug für den Zeitraum 02. bis 06. Oktober aus der Abb. 6-10 mit Darstellung der Zeitreihen und Fuzzy-Inputs der Filterparameter sowie dem ermittelten Fuzzy-Output abgebildet. Insgesamt handelt es sich um einen sehr starken Luftmassen-Einfluss, der in den luftchemischen Messreihen sehr markant mit Konzentrationsverhältnissen für stratosphärische Luftmassen bereits in den Abendstunden am 03. Oktober durchschlägt. Während die Relative Feuchte binnen drei Stunden von 80% auf unter 20% fällt, steigen die Konzentrationsverhältnisse von Ozon und betragen am 04. Oktober teils über 70 ppbv, während am 03. Oktober noch Werte von unter 40 ppbv registriert wurden. Die Konzentrationsverhältnisse von Kohlenmonoxid liegen während der Intrusion relativ konstant niedrig um 100 ppbv, zuvor bei deutlich über 150 ppbv und nach dem Ereignis ab Mitte des 05. Oktober teils wieder über 200 ppbv. Daneben ist über die Filterparameter Ozon und Relative Feuchte erkennbar, dass beim Übergang vom 04. auf den 05. Oktober die stratosphärische Intrusion kurzzeitig unterbrochen wird, die nachfolgende Intrusion ist dann weniger stark ausgeprägt. Für den 04. Oktober wird ein starker Einfluss mit einem Zugehörigkeitsgrad von überwiegend 0,9 ermittelt, für den schwächeren nachfolgenden Einfluss am 05. Oktober beträgt der Fuzzy-Output 0,7. Mit dem geforderten Minimum eines Fuzzy-Outputs von 0,5 zur Setzung eines Data-Flags werden beide Episoden als Einfluss infolge Intrusion in den Datensätzen gekennzeichnet. Darüber hinaus wird die Bedeutung von  $^7\text{Be}$  als limitierender Filterparameter deutlich. Aufgrund der Messung als 24-Stundenmittel ist das Einsetzen der stratosphärischen Intrusion am Abend des 03. Oktober noch nicht in dem Tagesmittel wieder zu finden, es ist lediglich ein leichter Anstieg von  $0,1 \text{ mBq/m}^3$  (02.10.1996) auf  $2 \text{ mBq/m}^3$  (03.10.1996) registrierbar, die relativ lange Episode führt dann erst am 04. Oktober zu einem sehr hohen Tagesmittel von  $16 \text{ mBq/m}^3$ . Hingegen ist trotz des nur zeitweisen Auftretens der zweiten schwächeren Episode am 05. Oktober noch ein hohes Tagesmittel von  $6 \text{ mBq/m}^3$  feststellbar, das einem Fuzzy-Input von 0,5 entspricht.

Abb. 6-13 Filter 3 - Fuzzy-Inputs und -Output, Fallbeispiel Oktober 1996

Filter 3: Luftmassen-Einfluss infolge Intrusionen  
Auszug aus Abb. 6-10 für den 02. bis 06.10.1996





#### 6.1.4 Data-Flag für das Regelwerk

Filter 1 und Filter 2 beziehen sich auf eine Beeinflussung der Messreihen an der Station durch den Herantransport von Luftmassen aus der Grundschicht und können sich hinsichtlich der Identifizierung eines Einflusses zum Teil ergänzen. Filter 3 für Einfluss infolge stratosphärischer Intrusionen steht zu den beiden Filtern 1 und 2 in einem gegensätzlichen inhaltlichen Kontext. Mit den formulierten Filterparametern schließt sich ein gleichzeitiges Auftreten von Einfluss aus der Grundschicht und aus hohen Luftschichten aus, was im wesentlichen auf die Verwendung des luftchemischen Filterparameters Kohlenmonoxid in allen drei Filterregeln zurückzuführen ist. Ein zu einem Fuzzy-Set zugeordneter Messwert kann gegebenenfalls nur gleichzeitig dem Set low und medium bzw. medium und high zugeordnet werden, nicht aber gleichzeitig den in den Regeln ausschließlich verwendeten Fuzzy-Sets low und high.

Ein sogenannter Data-Flag bedeutet, das die Halbstunden-Datensätze der Messreihen hinsichtlich eines Luftmassen-Einflusses gekennzeichnet werden. Wird als Ergebnis der Filteranwendung ein Zugehörigkeitsgrad für den Fuzzy-Output von mindestens 0,5 zum Fuzzy-Set Luftmassen-Einfluss ermittelt, so ist für diese Messdaten ein Luftmassen-Einfluss identifizierbar und entsprechend im Rahmen einer Ausweisung als nicht repräsentative Messdaten zu kennzeichnen. Die Kennzeichnung entspricht nicht einer Löschung der Daten, sondern erfolgt als Deklaration über eine zusätzliche Tabellenspalte (vgl. Kapitel 5.2.3. Defuzzifizierung, Seite 115). Ein Data-Flag von 0 entspricht der Kennzeichnung für repräsentative Messdaten, ein Data-Flag von 1 steht für Luftmassen-Einfluss und -999 bedeutet, dass eine Filteranwendung aufgrund Messwertausfall eines oder mehrerer Filterparameter nicht möglich ist. Ist eine Filteranwendung nicht möglich, kann auch keine eindeutige Aussage zu einem möglichen Einfluss der Messreihen getroffen werden, so dass die Kennzeichnung zwar eine gewisse Unsicherheit hinsichtlich ihrer Repräsentativität vermittelt, jedoch keiner Selektion entsprechen kann und letztendlich in der binären Kennzeichnung wie der Data-Flag 0 zu behandeln ist. Eine Übersicht zur Anzahl der auf Basis der Filterauswertung mit einem Data-Flag zu kennzeichnenden Datensätze für das Jahr 1996 gibt Tab. 6-4.

Mit einem Data-Flag von -999 sind für das Jahr 1996 insgesamt 1468 bzw. 8,4% der Datensätze zu kennzeichnen. Die nicht eindeutige Filterauswertung kann jedoch nach den Filtern für Grundschicht und Intrusionen weiter differenziert werden, da zum Teil jeweils nur ein bestimmter Filter von einer fehlenden Filteranwendung betroffen ist. Für 169 Datensätze bzw. 1,0% wird kein Einfluss aus der Grundschicht ermittelt, doch ist aufgrund von Datenausfall für Filter 3 ein Einfluss infolge Intrusionen nicht auszuschließen. Hingegen ist für 1250 Datensätze bzw. 7,1% eine Filteranwendung von Filter 1 oder Filter 2 nicht möglich und ein Einfluss infolge von Vertikaltransporten oder Transportprozessen nicht auszuschließen, während die mögliche Anwendung von Filter 3 einen Einfluss durch Intrusionen jedoch ausschließt. Lediglich für 49 Datensätze bzw. 0,3% der Datensätze ist eine Differenzierung hinsichtlich eines Einfluss entweder aus der Grundschicht oder aus der Stratosphäre nicht weiter möglich.

Für 1996 ist auf Basis des aufgestellten Regelwerkes mit durchführbaren Filteranwendungen eine eindeutige Aussage hinsichtlich eines Luftmassen-Einflusses für 16100 Datensätze möglich, was über das Jahr betrachtet mit 17568 Datensätzen einem Anteil von 91,6% entspricht. Von den 16100 Datensätzen mit Filterauswertung sind 68,9% mit einem Data-Flag von 0 zu kennzeichnen. Ein Einfluss aus der Grund-

schicht oder infolge Intrusionen ist mit dem aufgestellten Regelwerk nicht feststellbar und die Messdaten sind als repräsentativer Hintergrund zu deklarieren. 7087 bzw. 44,0% der Datensätze zeigen mit einem Zugehörigkeitsgrad von 0 für den Fuzzy-Output eindeutig keinen Luftmassen-Einfluss an der Station. Weiter werden zwar 4013 bzw. 24,9% der Datensätze für 1996 von den Filtern mit einem niedrigen Zugehörigkeitsgrad zwischen 0,1 und 0,4 angesprochen, führen in der Auswertung aufgrund ihrer geringen und nicht markanten Ausprägung in der binären Kennzeichnung der Datensätze zu keinem Data-Flag von 1. In einer weitergehenden graduellen Bewertung der Filterauswertung sind diese Datensätze jedoch im Gegensatz zu denen mit einem Zugehörigkeitsgrad von 0 mit einer weniger starken Härte für die Aussage hinsichtlich ihrer Repräsentativität behaftet. Mit weiterer Unterteilung nach den Filtern sind hiervon 4,8% der Datensätze für 1996 über den Filter 3 für Intrusionen sowie 20,1% über die Filtergruppe für Einfluss aus der Grundsicht betroffen.

Von den 16100 Datensätzen mit möglicher Filteranwendung sind 31,1% mit einem Data-Flag für Einfluss aus der Grundsicht oder infolge Intrusionen zu kennzeichnen. Der identifizierte Luftmassen-Einfluss ist nach einem Einfluss aus der Grundsicht mit 21,5% der Datensätze und 9,6% der Datensätze infolge stratosphärischer Intrusionen aufzuteilen. Ein Data-Flag allein über Filter 1 für Einfluss infolge von Vertikaltransporten ist für das Jahr 1996 für 2460 Datensätze zu setzen, allein über Filter 2 für Einfluss infolge Transportprozessen für 1958 Datensätze. Für 989 Datensätze wird ein Einfluss aus der Grundsicht von beiden Filtern identifiziert. In der Defuzzifizierung erfolgt nach der gewählten Methode des Maximum-of-Mean die Ermittlung des Fuzzy-Outputs über den jeweils höchsten Zugehörigkeitsgrad. Von den 989 Datensätzen ist in 349 Fällen der Zugehörigkeitswert des Fuzzy-Output für die beiden Filter 1 und 2 jedoch identisch. Bei der Kennzeichnung der Datensätze mit einem Data-Flag wird zusätzlich eine Zuordnung zu einem Filter vorgenommen, die bei gleichem Zugehörigkeitsgrad aufgrund der höheren Datenunsicherheit der Rückwärtstrajektorien von Filter 2 prioritär zu Filter 1 erfolgt. Mit Zurechnung der 349 Datensätze zu Filter 1 folgt zusammenfassend eine Kennzeichnung der Datensätze infolge Einfluss aus der Grundsicht für 2276 Fälle bzw. 14,1% über die Identifizierung eines Einflusses infolge Vertikaltransporten und für 1184 Fälle bzw. 7,4% infolge Einfluss aus synoptisch bedingten Transportprozessen. Die insgesamt 3460 Fälle mit Einfluss aus der Grundsicht entsprechen 21,5% der Zeit. Stratosphärische Intrusionen mit einer Identifizierung eines Einflusses an der Station ist für 1540 Halbstunden-Datensätzen feststellbar, dies entspricht auf die Datensätze mit durchführbarer Filteranwendung einem Anteil von 9,6%.

Tab. 6-4 Regelwerk - Anzahl der Datensätze mit Data-Flag, 1996

Von 17568 Datensätzen im Jahr 1996 ist für 16100 eine Filteranwendung durchführbar, wovon 31,1% mit Einfluss (21,5% Grundsicht, 9,6% Intrusionen) zu kennzeichnen sind, 68,9% der Datensätze sind für den atmosphärischen Hintergrund repräsentativ

Filterauswertung			Datensätze		
Datensätze für 1996			17568	davon in %	
keine Filteranwendung	Data-Flag -999	ohne Kennzeichnung	1468	8,4	
		$F1 \cup F2 \cap F3$	1250	7,1	
		$F1 \cap F2 \cap F3$	169	1,0	
		$F1 \cup F2 \cap F3$	49	0,3	
Filteranwendung	Datensätze mit Filterauswertung		16100	davon in %	
	Data-Flag 0	Kennzeichnung Repräsentativ	11100	68,9	
		Fuzzy-Output 0 $F1 \cap F2 \cap F3$	7087	44,0	
		Fuzzy-Output 0,1 - 0,4 $F1 \cup F2 \cup F3$	4013	24,9	
		Fuzzy-Output 0,1 - 0,4 $F1 \cup F2$	3241	20,1	
		Fuzzy-Output 0,1 - 0,4 F3	772	4,8	
	Data-Flag 1	Kennzeichnung Luftmassen-Einfluss <sup>1)</sup>		5000	31,1
		Grundsicht $F1 \cup F2$		3460	21,5
		F1		2460	15,3
		$F1 \setminus F2$		2276	14,1
		F2		1958	12,2
		$F2 \setminus F1$		1184	7,4
		$F1 \cap F2$		958	6,0
		Intrusionen F3		1540	9,6
	<p>—  F1 Komplementärmenge, Komplement der Data-Flag-Datensatzmenge von Filter 1  <math>F1 \setminus F2</math> Differenzmenge, Menge der Data-Flag-Datensätze von Filter 1 ohne Filter 2  <math>F1 \cup F2</math> Vereinigungsm., Menge der Data-Flag-Datensätze von Filter 1 oder Filter 2  <math>F1 \cap F2</math> Schnittmenge, Menge der Data-Flag-Datensätze von Filter1 und Filter 2</p> <p><sup>1)</sup> für Data-Flag von 1 gilt <math>F1 \cup F2 \cap F3 = 0</math>, das gleichzeitige Auftreten von Einfluss aus der Grundsicht und infolge Intrusionen schließt sich aus.</p>				

## 6.2 Bedeutung für die Repräsentanz der Messreihen

Die Filterung der Spurengas-Messreihen an der Globalstation Zugspitze hat die Erhöhung der Repräsentanz der Messdaten für die Erfassung der atmosphärischen Hintergrundkonzentration zum Ziel. Inwieweit die Messreihen-Filterung für Luftmassen-Einflüsse aus der Grundsicht und infolge Intrusionen und damit die Kennzeichnung der nicht repräsentativen Datensätze eine Änderung der auszuweisenden Konzentrationsverhältnisse der repräsentativen Datensätze beinhaltet, soll nachfolgend für die Spurengase Kohlenmonoxid, Ozon und die klimarelevanten Spurengase Methan und Kohlendioxid abgeschätzt werden.

Die Beurteilung hinsichtlich eines Beitrags der Filterung auf die ermittelten Konzentrationsverhältnisse an der Station erfolgt als Vergleich von ungefilterter und gefilterter Messreihe über die für intervall-skalierte Daten häufig verwendeten statistischen Maße des Mittelwertes und der Standardabweichung. Während das Arithmetische Mittel als zentrales Maß einer Verteilung gilt und angibt, in welchem Bereich um den Mittelwert die Mehrzahl der Fälle liegt, so dient die Angabe der zugehörigen Standardabweichung als Streuungsmaß zur Kennzeichnung der Variabilität bzw. Dispersion einer Verteilung, die als absolute Streuung die gleiche physikalische Einheit wie das Arithmetische Mittel besitzt. Daneben liegen für unimodale, symmetrische Verteilungen zwei Drittel aller Fälle in einem Bereich von einer Standardabweichung entfernt vom Mittelwert, was etwa 68 Prozent aller Fälle entspricht.

Die Kennzeichnung stratosphärischer Intrusionen als Einfluss von Luftmassen aus großen Höhen mit entsprechenden Konzentrationsverhältnissen bezieht sich für bodennah emittierte Spurengase überwiegend auf eine Filterung niedriger Konzentrationsverhältnisse. Hingegen beinhaltet die Filterung von Luftmassen-Einfluss infolge von Vertikaltransporten und synoptisch bedingter Hebungsvorgänge einen Einfluss aus der Grundsicht, so dass für bodennah emittierte Spurengase mit der Filterung wiederum hohe Konzentrationsverhältnisse angesprochen werden. Daneben ist für Kohlendioxid die jahreszeitliche Variation zu berücksichtigen, die in den Sommermonaten einen Einfluss aus der Grundsicht über niedrige Konzentrationsverhältnisse an der Station zeigt. Während bei stratosphärischem Ozon die Filterung für Einfluss infolge Intrusionen hohe Messwerte anspricht, ist ein Einfluss aus der Grundsicht auf bodennah produziertes Ozon zurückzuführen, das im Winterhalbjahr mit einer Filterung niedriger Konzentrationswerte sowie in den Sommermonaten mit einer Filterung hoher Konzentrationswerte verbunden ist.

Die Filterung der Messreihen bedeutet, dass die mit einem Data-Flag von 1 für Luftmassen-Einfluss gekennzeichneten Datensätze für die Berechnung von Mittelwert und Standardabweichung unberücksichtigt bleiben. Mit der Messreihen-Filterung für Einfluss aus der Grundsicht und infolge Intrusionen werden zum Teil gegensätzliche Konzentrationswerte angesprochen, die für eine Beurteilung der Filterung hinsichtlich eines Beitrags für die ermittelten Konzentrationsverhältnisse entsprechend nach diesen beiden Luftmassen-Einflüssen differenziert darzustellen ist. Filter 1 und Filter 2 ergänzen sich hinsichtlich ihrer Kennzeichnung eines Luftmassen-Einflusses mit einer gleichgerichteten Filterung bestimmter Konzentrationswerte, so dass nachfolgend diese beiden Filter zusammenfassend als Filtergruppe für Einfluss aus der Grundsicht dargestellt werden. Daneben erfordert die jahreszeitliche Variation eines Luftmassen-Einflusses über Intrusionen sowie die unterschiedliche Ausprägung in den Spurengas-Zeitreihen insbesondere für Ozon und Kohlendioxid eine Darstellung auf Monatsbasis. Die Aufbereitung der Ergebnisse zur Abschätzung

der Messreihen-Filterung erfolgt für die ausgewählten Spurengase mit tabellarischer Auflistung von Monats- und Jahresmittel sowie als grafische Darstellung der prozentualen Monatsmittel-Abweichung. Die Zeitreihen-Darstellung als Plot soll abschließend einen visuellen Eindruck für den Vergleich der ungefilterten mit der gefilterten Messreihe ermöglichen, wobei nach den Filtern für Einfluss aus der Grundschrift und infolge Intrusionen sowie zusammenfassend für die kombinierte Filteranwendung differenziert wird.

### 6.2.1 Kohlenmonoxid

Die Filterung der Messreihen beinhaltet für das Spurengas Kohlenmonoxid eine sehr deutlich ausgeprägte Minderung von Mittelwert und zugehöriger Streuung. Das Arithmetische Mittel der gefilterten Zeitreihe liegt für 1996 mit 134,5 ppbv insgesamt um 6,4% niedriger als das Mittel von 143,0 ppbv der ungefilterten Zeitreihe. Die Standardabweichung der Messreihe mit Filterung für Gesamt-Einfluss als Data-Flag zeigt mit 29,8 ppbv im Vergleich zur ungefilterten Messreihe mit 41,3 ppbv ebenfalls eine bedeutend geringere Streuung der Messwerte. In der Tab. 6-5 sind die Monatsmittel und die Standardabweichung der gefilterten Messreihe mit Differenzierung für Einfluss aus der Grundschrift, infolge Intrusionen und als Gesamt-Einfluss der ungefilterten Messreihe gegenübergestellt. Die prozentuale Abweichung des Monatsmittels im Vergleich zur ungefilterten Messreihe ist in Abb. 6-14, Seite 145 dargestellt. Die Filterung der Zeitreihe als Plot zeigt Abb. 6-15, Seite 146.

Tab. 6-5 Kohlenmonoxid Monatsmittel und Streuung mit Filterung, 1996  
Arithmetischer Mittelwert (Avg) [ppbv] und Standardabweichung (Stdev) [ppbv] der ungefilterten und gefilterten Messreihe mit Differenzierung nach Filterung für Einfluss aus der Grundschrift, infolge Intrusion und als Gesamteinfluss.

	Messreihe ungefiltert		Messreihe mit Filterung für Einfluss					
			Grundschrift Filter 1,2		Intrusion Filter 3		Gesamt Data-Flag Filter 1, 2, 3	
	Avg	Stdev	Avg	Stdev	Avg	Stdev	Avg	Stdev
Jan	132,6	21,9	129,3	18,7	140,2	21,5	136,2	18,2
Feb	181,6	70,8	160,5	37,3	185,2	71,9	163,3	37,8
Mae	166,6	42,2	151,9	29,1	169,9	42,9	154,2	30,0
Apr	176,9	34,6	164,9	30,9	178,6	34,4	166,6	31,1
Mai	140,6	20,8	137,3	19,3	140,7	20,9	137,4	19,3
Jun	139,4	18,4	128,1	10,9	140,2	18,2	128,7	10,9
Jul	113,2	15,4	110,9	13,9	114,2	15,2	111,8	13,8
Aug	127,1	18,4	121,6	16,2	127,2	18,4	121,6	16,2
Sep	157,7	37,1	138,2	18,2	159,2	36,8	139,5	17,7
Okt	124,2	32,5	117,0	27,2	130,3	34,0	122,0	29,4
Nov	133,2	40,6	116,4	19,5	135,6	41,5	117,6	20,1
Dez	121,0	29,5	116,1	25,7	124,1	30,0	118,8	26,4
1996	143,0	41,3	132,0	29,3	146,1	41,9	134,5	29,8

Der Filter 1 und Filter 2 für Luftmassen-Einfluss infolge Vertikaltransporten bzw. Transportprozessen wirkt insgesamt sehr stark auf die Filterung der Kohlenmonoxid-Messreihe. Auffällig in der Plot-Darstellung (vgl. Abb. 6-15-b) sind die Episoden der extrem hohen Konzentrationswerte Anfang bzw. Mitte Februar, die mit Ausnahme eines Peaks, der wegen Datenausfall des zweiten Filterparameters der Natürlichen Radioaktivität keine Anwendung von Filter 1 ermöglicht, als Luftmassen-Einfluss aus der Grundsicht gekennzeichnet werden. Die Peaks im Februar 1996 führen für die ungefilterte Zeitreihe zu dem hohen Monatsmittel von 181,6 ppbv mit einer Standardabweichung von 70,8 ppbv. Mit Filterung des Einflusses aus der Grundsicht beträgt das Monatsmittel für den Februar 1996 160,5 ppbv, die zugehörige Standardabweichung 37,3 ppbv. Die Minderung des Monatsmittel um 13,1% (vgl. Abb. 6-14-b) wird mit Filterung über den Filter 3 für Einfluss infolge stratosphärischer Intrusionen wiederum etwas abgeschwächt und beträgt in der Gesamtfilterung gegenüber der ungefilterten Zeitreihe 11,2%.

Der Data-Flag für Einfluss infolge stratosphärischer Intrusionen beinhaltet generell eine Filterung von niedrigen Kohlenmonoxid-Konzentrationswerten. Mit der linksschiefen Verteilungsstruktur der Messwerte erhöht sich bei der ausschließlichen Anwendung von Filter 3 die Streuung, die maßgeblich durch hohe Konzentrationswerte entsteht und durch Filterung niedriger Messwerte mit 41,9 ppbv Standardabweichung für Filter 3 etwas höher als 41,3 ppbv der ungefilterten Messreihe liegt. Das Mittel der Messreihe mit Filter 3 liegt entsprechend höher und beträgt für das Jahr 1996 146,1 ppbv. Dies wirkt sich insbesondere in den Monaten Januar und Oktober mit einer hohen Häufigkeit und starken Einflüssen stratosphärischer Intrusionen aus. Im Januar liegt das Mittel von Filter 3 mit 140,2 ppbv um 5,4% höher als das Monatsmittel der ungefilterten Messreihe und führt auch in der kombinierten Filteranwendung wegen geringer Einflüsse aus der Grundsicht zu einem leicht erhöhten gefilterten Monatsmittel (vgl. Abb. 6-14-a).

Der Beitrag der Filterung auf die ermittelten Konzentrationsverhältnisse von Kohlenmonoxid wird maßgebend durch die Filter 1 und 2 für Einfluss aus der Grundsicht bestimmt. Im Jahr 1996 beträgt die Minderung für Februar, September und November über 10% im Vergleich zu den Monatsmitteln der ungefilterten Messreihe. Stratosphärische Einflüsse mit Filterung niedriger Konzentrationswerte schwächen den Beitrag in der Mittelwertbildung der Filter 1 und 2 zwar ab, führen aber eher selten und lediglich bei Auftreten starker Intrusionen und geringen Einflüssen aus der Grundsicht zu einem höheren Monatsmittel in der kombinierten Filteranwendung, wie beispielsweise im Januar 1996. Mit Ausnahme des Januars liegen die Monatsmittel der kombinierten Filteranwendung unter den Monatsmittelwerten der ungefilterten Messreihe. Mit der Filterung wird die Streuung der Messwerte über alle Monate gemindert, die Standardabweichung der gefilterten Messreihe liegt zum Teil sehr deutlich unter den Werten der ungefilterten Messreihe.

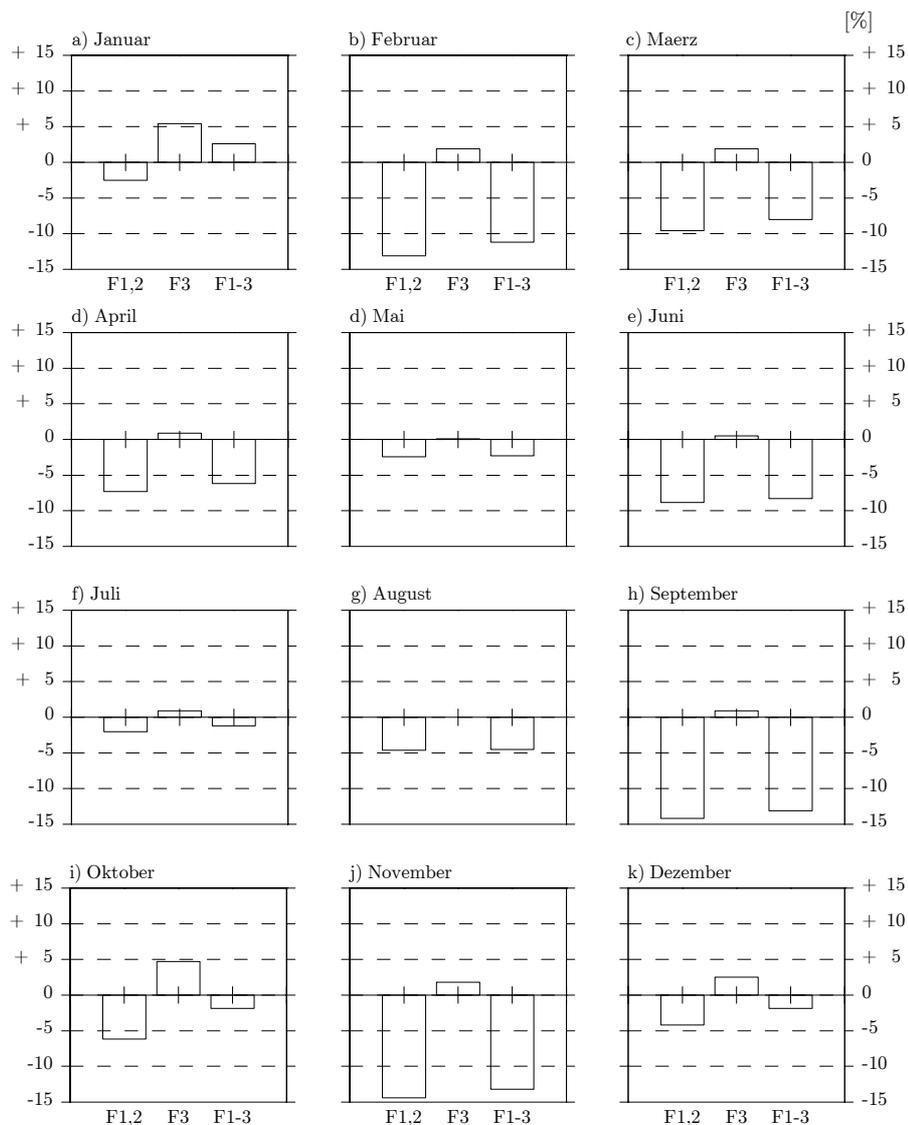


Abb. 6-14 Kohlenmonoxid Mittelwert-Abweichung für die Filterung, 1996

Darstellung der monatlichen Abweichung [%] des Arithmetischen Mittelwertes für die Messreihe mit Filterung im Vergleich zu der ungefilterten Messreihe. Eine positive Abweichung bedeutet, dass die Filterung zu einem höheren Mittelwert führt, eine negative Abweichung, dass der Mittelwert im Gegensatz zu der ungefilterten Messreihe niedriger liegt. F1,2: Filterung für Einfluss aus der Grundsicht (Filter 1 und Filter 2), F3: Filterung für Einfluss infolge stratosphärischer Intrusionen (Filter 3), F1-3: Filterung für Gesamt-Einfluss (Filter 1, Filter 2 und Filter 3).

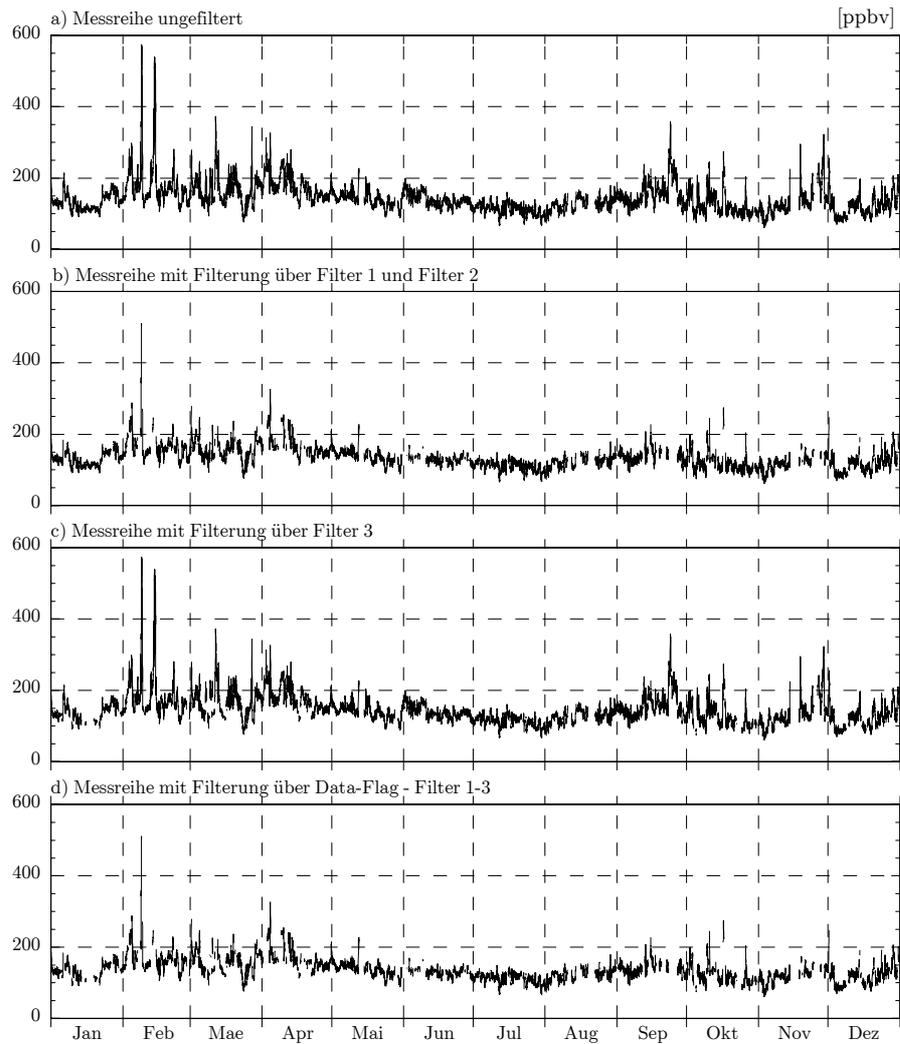


Abb. 6-15 Kohlenmonoxid Zeitreihe mit Filterung für 1996

Gegenüberstellung von ungefilterter Messreihe (a) und gefilterter Messreihe mit Differenzierung nach Filterung für Einfluss aus der Grundschrift (b), infolge Intrusionen (c) und für die kombinierte Filteranwendung (d).

### 6.2.2 Methan

Die Filterung der Messreihen führt für Methan insgesamt zu einer Minderung des Mittelwertes und der Standardabweichung, wobei die Ausprägung nicht über alle Monate ähnlich ist. Für das Jahr 1996 liegt der Mittelwert der gefilterten Messreihe mit 1809,4 ppbv um 4,8 ppbv niedriger als das Mittel der ungefilterten Messreihe, was auf den absoluten Konzentrationswert bezogen 0,3% bedeutet und hinsichtlich eines säkularen Anstiegs (vgl. Kapitel 3.2 Methan, Seite 29) von etwa 1% in einer nicht zu vernachlässigenden Größenordnung liegt. Die Streuung der Messwerte ist mit 27,7 ppbv der Messreihen-Filterung im Vergleich zur ungefilterten Zeitreihe mit einer Standardabweichung von 33,6 ppbv deutlich niedriger.

Die erwähnte Episode im Februar 1996 mit hohen Konzentrationsverhältnissen bodennaher Emissionen zeigt auch für Methan hohe Konzentrationsverhältnisse (vgl. Abb. 6-17), die auf anthropogenen Ursprung zurückzuführen sind. Filter 1 und Filter 2 für Einfluss aus der Grundsicht beinhalten für die Methan-Messreihe eine Filterung hoher Konzentrationswerte bodennaher Emissionen, die an die Station durch Vertikaltransporte herangeführt werden. Der Beitrag der Filterung für Einfluss infolge Grundsicht ist für die Monatsmittel zum Teil sehr bedeutend, nennenswert sind die Monate Februar mit 15,4 ppbv, März mit 10,3 ppbv, der Juni mit 8,7 ppbv und der November mit 8,1 ppbv (vgl. Tab. 6-6, Abb. 6-16). Auf das Jahr bezogen liegt der Mittelwert der hinsichtlich eines Einflusses aus der Grundsicht gefilterten Messreihe insgesamt um 7,2 ppbv niedriger als das Mittel der ungefilterten Messreihe, die Standardabweichung mit 27,4 ppbv liegt um 6,2 ppbv niedriger.

Während mit den Filtern 1 und 2 wie für Kohlenmonoxid generell hohe Konzentrationswerte angesprochen werden, erfolgt mit dem Filter 3 für Einfluss infolge Intrusionen eine Filterung niedriger Konzentrationswerte. Filter 3 führt in der Filterung zu leicht höheren Monatsmitteln im Vergleich zu der ungefilterten Messreihe, nennenswerte Monate für das Jahr 1996 sind wiederum die Intrusionsmonate Januar und Oktober.

Die Filterung über alle drei Filter betrachtet, führt in einigen Monaten zu einer deutlichen Abweichung in Richtung niedriger Mittelwerte im Vergleich zu der ungefilterten Messreihe, die beispielsweise in Monaten mit starkem Einfluss aus der Grundsicht wie im Februar 13,3 ppbv, März 6,5 ppbv, Juni 7,7 ppbv und im November 7,2 ppbv beträgt. Hingegen überwiegt in den Monaten Januar und Oktober 1996 mit einer hohen Häufigkeit von stratosphärischen Intrusionen in zugleich starker Ausprägung die Filterung von Filter 3 mit niedrigen Konzentrationswerten und der Mittelwert liegt mit 2,7 ppbv für Januar bzw. 3,4 ppbv für Oktober etwas höher, wobei die Streuung der gefilterten Messreihe niedriger liegt.

Tab. 6-6 Methan Monatsmittel und Streuung mit Filterung, 1996

Arithmetischer Mittelwert (Avg) [ppbv] und Standardabweichung (Stdev) [ppbv] der ungefilterten und gefilterten Messreihe mit Differenzierung nach Filterung für Einfluss aus der Grundschrift, infolge Intrusion und als Gesamteinfluss.

	Messreihe ungefiltert		Messreihe mit Filterung für Einfluss					
			Grundschrift Filter 1,2		Intrusion Filter 3		Gesamt Data-Flag Filter 1, 2, 3	
	Avg	Stdev	Avg	Stdev	Avg	Stdev	Avg	Stdev
Jan	1798,0	17,1	1795,6	15,5	1803,6	16,4	1800,7	15,0
Feb	1831,6	50,2	1816,2	28,2	1834,3	50,7	1818,3	28,3
Mae	1827,6	34,9	1817,3	26,4	1831,7	34,0	1821,1	25,2
Apr	1832,0	32,1	1824,9	32,2	1833,6	32,0	1826,7	32,5
Mai	1809,5	23,8	1807,5	23,8	1809,7	23,8	1807,7	23,9
Jun	1818,7	23,5	1810,1	20,0	1819,7	23,4	1811,1	20,2
Jul	1798,8	26,3	1795,7	24,0	1798,8	26,3	1795,7	24,0
Aug	1811,8	26,6	1805,7	25,6	1811,9	26,5	1805,7	25,6
Sep	1824,2	32,4	1822,4	31,3	1824,2	32,4	1822,4	31,3
Okt	1798,7	16,8	1797,7	15,2	1803,4	17,0	1802,1	15,2
Nov	1810,3	34,7	1802,2	27,0	1811,8	35,9	1803,1	28,2
Dez	1794,6	28,9	1791,3	27,7	1797,3	29,1	1793,8	28,2
1996	1814,2	33,6	1807,0	27,4	1816,8	33,9	1809,4	27,7

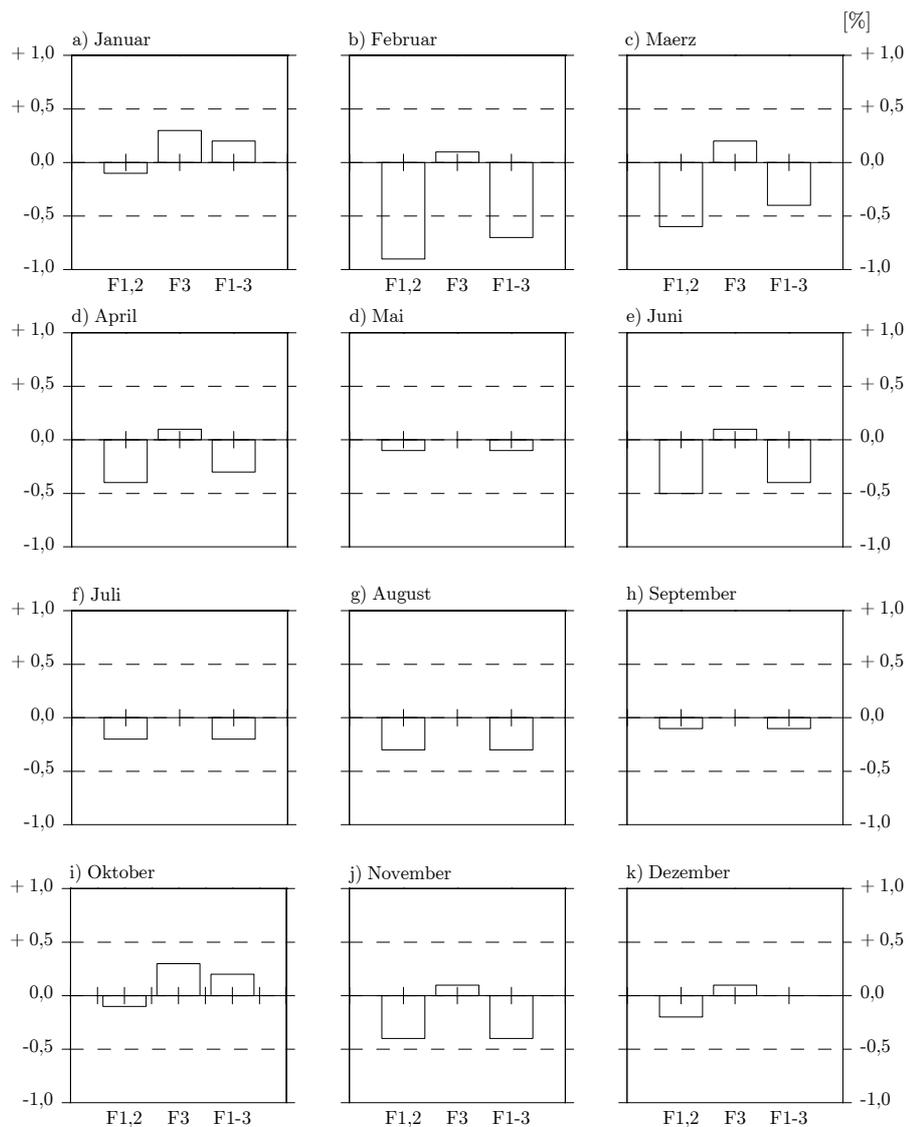


Abb. 6-16 Methan Mittelwert-Abweichung für die Filterung, 1996

Darstellung der monatlichen Abweichung [%] des Arithmetischen Mittelwertes für die Messreihe mit Filterung im Vergleich zu der ungefilterten Messreihe. Eine positive Abweichung bedeutet, dass die Filterung zu einem höheren Mittelwert führt, eine negative Abweichung, dass der Mittelwert im Gegensatz zu der ungefilterten Messreihe niedriger liegt. F1,2: Filterung für Einfluss aus der Grundschicht (Filter 1 und Filter 2), F3: Filterung für Einfluss infolge stratosphärischer Intrusionen (Filter 3), F1-3: Filterung für Gesamt-Einfluss (Filter 1, Filter 2 und Filter 3).

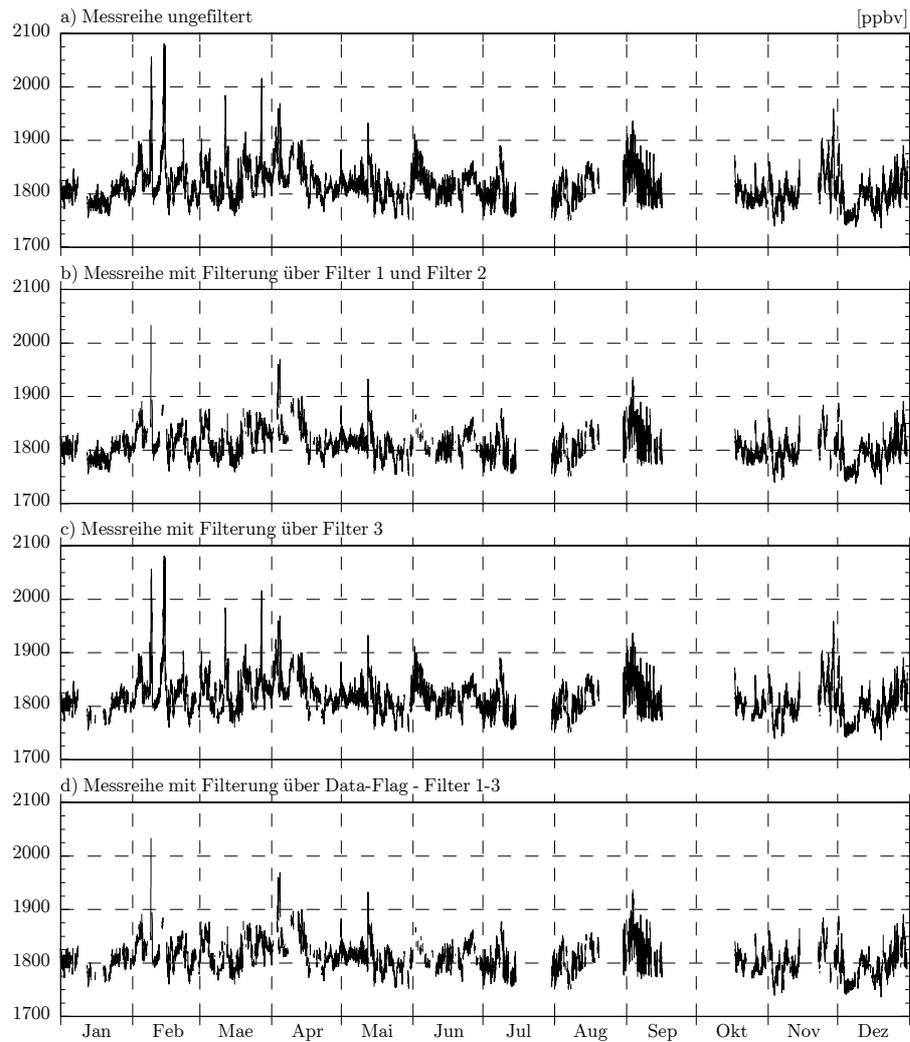


Abb. 6-17 Methan Zeitreihe mit Filterung für 1996

Gegenüberstellung von ungefilterter Messreihe (a) und gefilterter Messreihe mit Differenzierung nach Filterung für Einfluss aus der Grundschrift (b), infolge Intrusionen (c) und für die kombinierte Filteranwendung (d).

### 6.2.3 Kohlendioxid

Die Kennzeichnung von Luftmassen-Einfluss aus der Grundschicht oder infolge stratosphärischer Intrusionen führt über das Jahr betrachtet für Kohlendioxid zu einer Minderung des Arithmetischen Mittelwertes um 0,5 ppmv auf 361,2 ppmv, die Streuung der Messwerte wird bedeutend verringert, die Standardabweichung liegt mit 4,6 ppmv um 0,5 ppmv niedriger als diejenige der ungefilterten Messreihe (vgl. Tab. 6-7, Abb. 6-18 und Abb. 6-19).

Während Filter 3 wiederum eine Filterung niedriger Kohlendioxid-Konzentrationen beinhaltet, wird mit der Kennzeichnung über Filter 1 und 2 der jahreszeitliche Konzentrations-Verlauf wiedergespiegelt. In den Sommermonaten Mai bis August ist der Beitrag der Filterung sehr gering (vgl. Abb. 6-18) und betrifft mit der Filterung für Einfluss aus der Grundschicht in geringem Maß niedrige Konzentrationswerte. Im Juni und Juli 1996 ist neben der Minderung der Standardabweichung der Mittelwert verglichen mit dem Monatsmittel der ungefilterten Messreihe um 0,2 ppmv niedriger. Die Filterung hoher Kohlendioxid-Konzentrationswerte ist vor allem für die Monate Februar, März, September und November mit 1,1 bis 1,4 ppmv von Bedeutung. In diesen Monaten liegt auch die größte Reduktion der Messwert-Streuung, die zum Teil von 5,3 auf 3,2 ppmv im Februar, von 3,5 auf 2,4 ppmv im März, von 4,1 auf 2,4 ppmv im September sowie von 3,5 auf 1,9 ppmv im November beträgt. Im Jahresmittel liegt der Beitrag über die Filter für Grundschicht-Einfluss insgesamt bei -0,5 ppmv, die Variation der Messreihe wird über das Maß der Standardabweichung von 5,1 auf 4,4 ppmv vermindert. Nach [ROEDEL, 2000, Seite 359] beträgt die langjährige mittlere Zuwachsrate 0,6 bis 0,7 ppmv/a, so dass die ermittelte Änderung des Mittelwerts über die Messreihen-Filterung in einer nicht zu vernachlässigen Größenordnung liegt.

Der Beitrag von Filter 3 für Einfluss infolge Intrusionen bezüglich Mittel- und Variationsmaß ist vergleichsweise gering und betrifft vor allem die Monate Oktober bis März 1996, in denen Intrusionen verstärkt auftreten. In diesen Monaten liegt das Monatsmittel maximal um 0,1% höher als das Mittel der ungefilterten Zeitreihe. Daneben ist aufgrund der starken Streuung der hohen Kohlendioxid-Konzentrationswerte mit der alleinigen Filterung über Filter 3 keine Minderung der Standardabweichung zu erzielen.

In Monaten mit einer hohen Häufigkeit von Intrusionen und einem niedrigen Einfluss aus der Grundschicht wirkt die Filterung mit niedrigen Konzentrationswerten der Filterung über Filter 1 und 2 mit hohen Konzentrationswerten entgegen und führt in der kombinierten Filteranwendung insgesamt zu einer weniger stark ausgeprägten Minderung der Monatsmittel. Der Beitrag der Filterung für Einfluss aus der Grundschicht überwiegt vor allem in den Monaten September bis März mit Ausnahme des Januar 1996, der aufgrund markanter Intrusions-Einflüsse ein höheres Monatsmittel (0,2 ppmv) zeigt. In den Sommermonaten werden in der kombinierten Filteranwendung generell niedrige Konzentrationswerte gefiltert, wobei Intrusionen zu dieser Zeit mit Ausnahme des Juli 1996 eher selten auftreten. Der Beitrag der Filterung für die Monatsmittel ist insgesamt gering, die Standardabweichung wird hier vor allem über die Filter 1 und 2 für Einfluss aus der Grundschicht vermindert.

Zusammenfassend wird mit der Filterung der Kohlendioxid-Zeitreihe die Variation der Messwerte in allen Monaten vermindert, die im wesentlichen auf einen Einfluss aus der Grundschicht zurückzuführen ist. Die Episoden sehr hoher Kohlendi-

oxid-Konzentrationen wie im besagten Februar 1996 sind anthropogenen Ursprungs und treten in Verbindung mit den weiteren anthropogen emittierten Spurengasen Kohlenmonoxid und Methan auf.

Tab. 6-7 Kohlendioxid Monatsmittel und Streuung mit Filterung, 1996  
Arithmetischer Mittelwert (Avg) [ppmv] und Standardabweichung (Stdev) [ppmv] der ungefilterten und gefilterten Messreihe mit Differenzierung nach Filterung für Einfluss aus der Grundsicht, infolge Intrusion und als Gesamteinfluss.

	Messreihe ungefiltert		Messreihe mit Filterung für Einfluss					
			Grundsicht Filter 1,2		Intrusion Filter 3		Gesamt Data-Flag Filter 1, 2, 3	
	Avg	Stdev	Avg	Stdev	Avg	Stdev	Avg	Stdev
Jan	363,2	1,5	363,1	1,4	363,6	1,5	363,4	1,4
Feb	367,1	5,3	365,7	3,2	367,3	5,4	365,8	3,2
Mae	366,8	3,5	365,6	2,4	367,0	3,6	365,8	2,4
Apr	366,6	2,5	366,1	2,3	366,7	2,5	366,2	2,3
Mai	363,7	1,8	363,8	1,6	363,7	1,8	363,8	1,6
Jun	359,6	3,6	359,8	3,3	359,4	3,5	359,6	3,2
Jul	357,3	3,1	357,5	3,0	357,3	3,1	357,5	3,0
Aug	355,1	2,5	355,0	2,3	355,1	2,5	355,0	2,3
Sep	356,3	4,1	355,0	2,4	356,2	4,2	354,9	2,4
Okt	360,5	3,4	360,0	2,8	361,0	3,7	360,3	3,1
Nov	363,0	3,5	361,6	1,9	363,2	3,6	361,7	2,0
Dez	362,7	2,3	362,2	1,8	362,9	2,4	362,4	1,8
1996	361,7	5,1	361,2	4,4	361,7	5,3	361,2	4,6

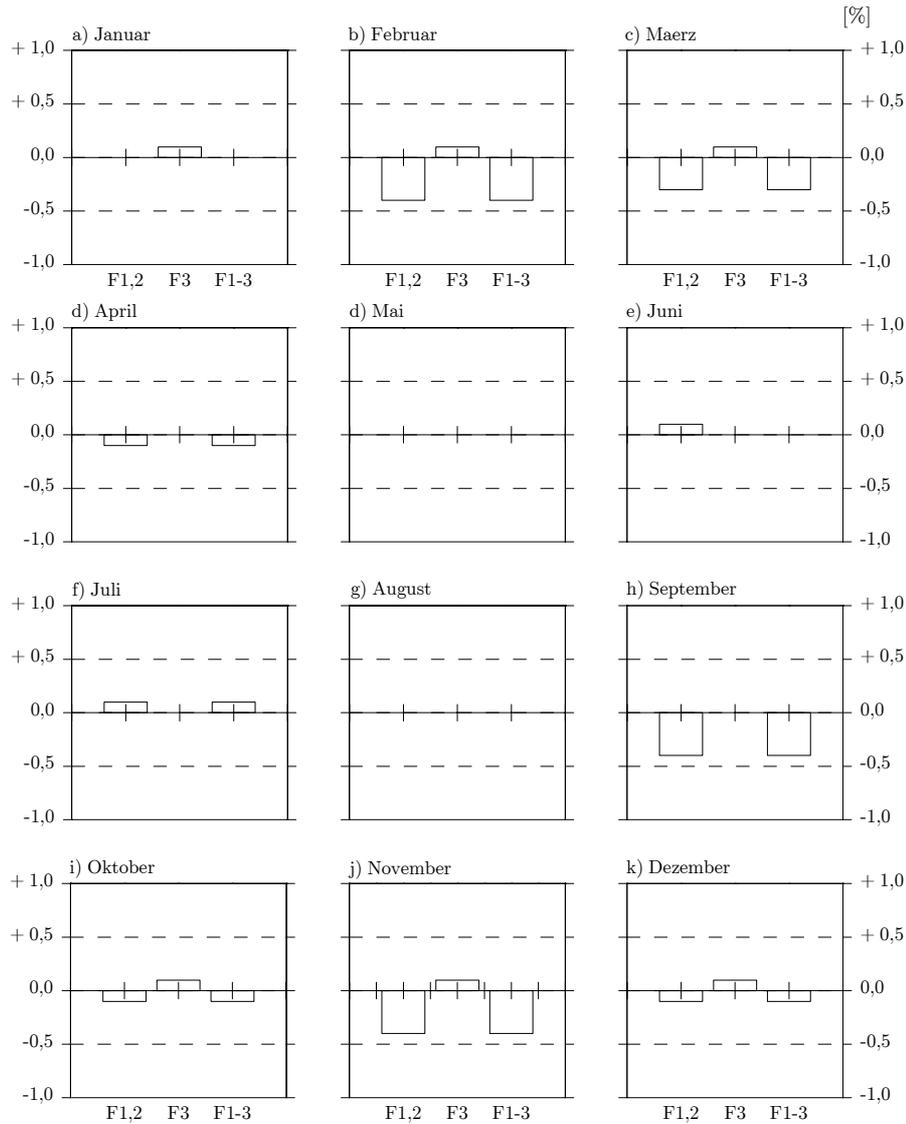


Abb. 6-18 Kohlendioxid Mittelwert-Abweichung für die Filterung, 1996

Darstellung der monatlichen Abweichung [%] des Arithmetischen Mittelwertes für die Messreihe mit Filterung im Vergleich zu der ungefilterten Messreihe. Eine positive Abweichung bedeutet, dass die Filterung zu einem höheren Mittelwert führt, eine negative Abweichung, dass der Mittelwert im Gegensatz zu der ungefilterten Messreihe niedriger liegt. F1,2: Filterung für Einfluss aus der Grundschicht (Filter 1 und Filter 2), F3: Filterung für Einfluss infolge stratosphärischer Intrusionen (Filter 3), F1-3: Filterung für Gesamt-Einfluss (Filter 1, Filter 2 und Filter 3).

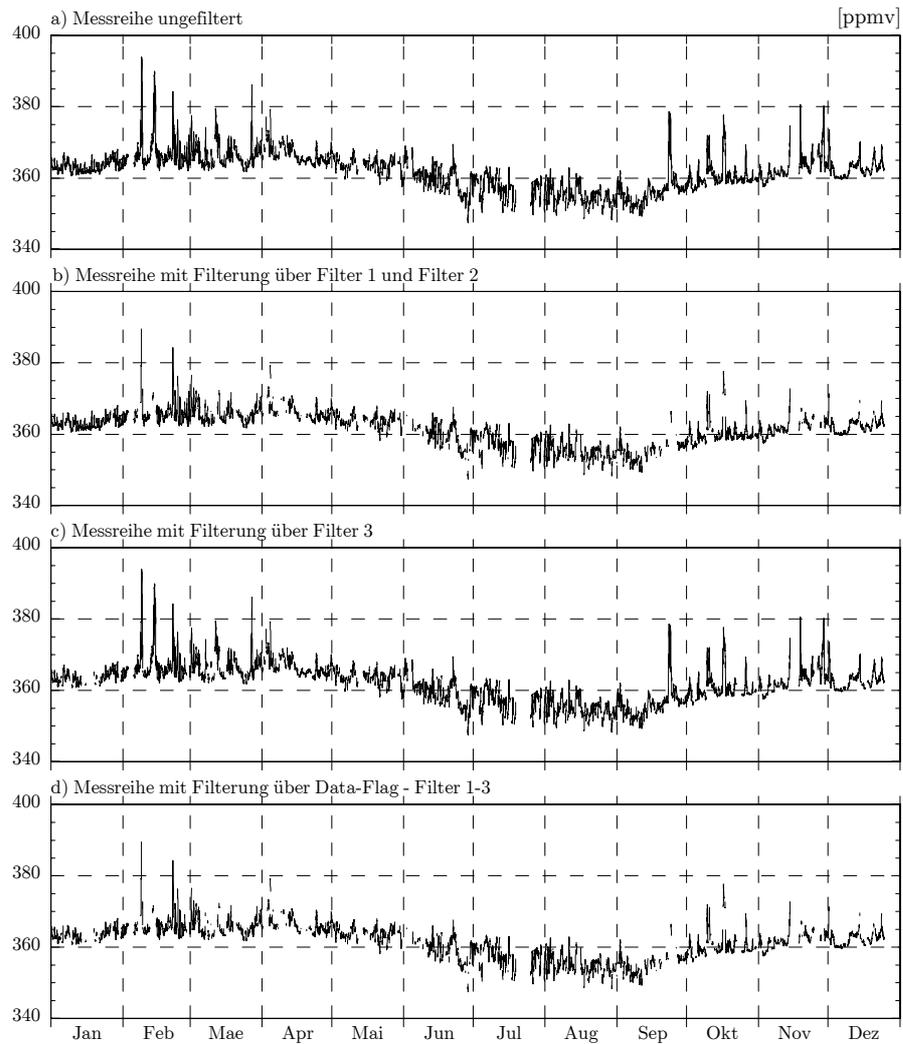


Abb. 6-19 Kohlendioxid Zeitreihe mit Filterung für 1996

Gegenüberstellung von ungefilterter Messreihe (a) und gefilterter Messreihe mit Differenzierung nach Filterung für Einfluss aus der Grundsicht (b), infolge Intrusionen (c) und für die kombinierte Filteranwendung (d).

#### 6.2.4 Ozon

Die Filterung der Ozon-Messreihe zeigt neben einer geringeren Standardabweichung von 9,1 ppbv für das Jahr 1996 insgesamt eine Minderung des Arithmetischen Mittelwertes um 1 ppbv im Vergleich zu der ungefilterten Messreihe. Während die Filter 1 und 2 für Einfluss aus der Grundsicht eine Filterung bodennah und überwiegend anthropogen erzeugter Konzentrationswerte beinhaltet, betrifft die Filterung über Filter 3 Ozon-Konzentrationen stratosphärischen Ursprungs. Mit Ausnahme des August 1996, der generell eine sehr schwache Filterung beinhaltet, wird mit der Filterung als Data-Flag für alle Monate die Standardabweichung zum Teil bedeutend verringert, beispielsweise mit 5,5 ppbv im Februar, 5,0 ppbv im November gegenüber 8,3 ppbv bzw. 7,2 der ungefilterten Zeitreihe (vgl. Tab. 6-8).

Die Anwendung von Filter 3 bewirkt vor allem in den Wintermonaten mit Filterung stratosphärisch produzierter hoher Ozon-Konzentrationen eine Minderung des Arithmetischen Mittelwertes, die in den Monaten Januar und Oktober 1996 mit einer hohen Fallzahl von Intrusions-Episoden 3,1% bzw. 5,1% beträgt (Abb. 6-20). Die Streuung der Ozon-Messwerte wird mit der Filterung in diesen Monaten ebenfalls vermindert. Mit Ausnahme des Juli 1996 ist der Beitrag durch Intrusionen auf die Monatsmittel in den Sommermonaten generell sehr gering und das Jahresmittel liegt lediglich um 0,3 ppbv niedriger als das Mittel der ungefilterten Messreihe. Die Streuung der Messreihe wird über das Maß der Standardabweichung in der Jahresbetrachtung nicht verbessert und liegt mit 10,9 ppbv bzw. einer Erhöhung um 0,21 ppbv in einer mehr unbedeutenden Größenordnung.

Im Gegensatz zu überwiegend bodennah emittierten Spurengasen ist die Ozon-Messreihe durch Einflüsse infolge von Intrusionen mit hohen Konzentrationswerten charakterisiert, die als Peaks aber insgesamt weniger stark ausgeprägt sind als Einflüsse aus der Grundsicht. Mit der Meereshöhe und der Entfernung der Station zu anthropogen produzierten Ozon-Vorläufersubstanzen unterliegt die Messreihe der Zugspitze im Vergleich zu bodennahen Stationen einer geringeren jahreszeitlichen Variation. Einflüsse infolge von Vertikaltransporten stehen damit in Verbindung zu der jahreszeitlichen Konzentrations-Variation der bodennahen Luftschichten, die mit der Filterung in den Wintermonaten niedrige und in den Sommermonaten hohe Ozon-Konzentrationen an der Station ansprechen.

In den Wintermonaten liegen die Konzentrationswerte an der Station im Mittel höher als die der bodennahen Luftschicht und ein Einfluss aus der Grundsicht erfolgt in diesen Monaten über niedrige Konzentrationswerte, die in der Filterung mit Filter 1 und Filter 2 für Einfluss aus der Grundsicht zu einem höheren Mittelwert im Vergleich zu der ungefilterten Messreihe führen (vgl. Abb. 6-20-a, -b, Abb. 6-20-i, -j, -k). Die als Data-Flag über Filter 1 für Einfluss infolge Vertikaltransporten gekennzeichnete Episode aus der Grundsicht für Februar 1996 mit extrem hohen Peaks bodennah emittierter Spurengase ist ebenfalls zeitgleich mit einem Einfluss hoher Ozon-Konzentrationen verbunden (Abb. 6-21-b). In den Sommermonaten hingegen bedeutet Einfluss aus der Grundsicht die Registrierung von hohen Konzentrationswerten an der Station und die Filterung betrifft überwiegend bodennah und anthropogen erzeugte hohe Ozon-Konzentrationen, so dass in den Monaten März bis September der Mittelwert der gefilterten Messreihe niedriger liegt als das Mittel der ungefilterten Zeitreihe (Abb. 6-20-c bis -h). Über das Jahr 1996 insgesamt betrachtet überwiegen die Einflüsse aus der Grundsicht während der Wintermonate, so dass

die Filterung der gegensätzlichen betreffenden Konzentrations-Peak von Filter 1 und Filter 2 bei gleichzeitiger niedriger Standardabweichung eine Minderung von 0,5 ppbv beinhaltet.

Während der Beitrag der Filterung in einzelnen Episoden deutlich erkennbar ist, so wirken die in Abhängigkeit von der Jahreszeit unterschiedlich auftretenden Einflüsse hoher bzw. niedriger Konzentrationswerte auf das Jahresmittel und zum Teil auch auf die Monatsmittel weniger stark. Mit Ausnahme des Juli 1996 treten in den Sommermonaten Episoden von Intrusionen mit hohen Konzentrationswerten generell selten auf, würden aber einen Einfluss aus der Grundsicht als Beitrag zur Minderung der Monatsmittel verstärken. Im Winter hingegen mit erhöhter Fallzahl von Intrusionen wird der Beitrag auf die Monatsmittel durch die Filterung für Einfluss aus der Grundsicht mit Data-Flag niedriger Werte abgeschwächt. Zudem sind Einflüsse aus der Grundsicht -wie der Februar 1996 zeigt- mit deutlich ausgeprägteren Peaks verbunden als in den Sommermonaten. Darüber hinaus sind bei differenzierter Filterausweisung hohe Ozon-Konzentration mit stratosphärischer Quelle von anthropogen bodennah erzeugtem Ozon in den Sommermonaten über die Filterung zu unterscheiden, die dann entsprechend über Filter 3 oder Filter 1 und Filter 2 mit einem Data-Flag gekennzeichnet werden.

Tab. 6-8 Ozon Monatsmittel und Streuung mit Filterung, 1996

Arithmetischer Mittelwert (Avg) [ppbv] und Standardabweichung (Stdev) [ppbv] der ungefilterten und gefilterten Messreihe mit Differenzierung nach Filterung für Einfluss aus der Grundsicht, infolge Intrusion und als Gesamteinfluss.

	Messreihe ungefiltert		Messreihe mit Filterung für Einfluss					
			Grundsicht Filter 1,2		Intrusion Filter 3		Gesamt Data-Flag Filter 1, 2, 3	
	Avg	Stdev	Avg	Stdev	Avg	Stdev	Avg	Stdev
Jan	47,0	4,2	47,3	4,1	45,6	3,9	45,8	3,9
Feb	46,5	8,3	48,4	5,9	45,8	8,0	47,6	5,5
Mae	53,6	6,8	53,2	6,4	53,1	6,9	52,5	6,5
Apr	60,6	7,4	58,5	5,5	60,5	7,5	58,2	5,5
Mai	55,8	8,3	54,9	7,8	55,7	8,2	54,7	7,7
Jun	66,6	10,3	63,0	10,0	66,4	10,4	62,4	9,8
Jul	57,3	7,4	57,2	7,2	56,4	6,9	56,2	6,6
Aug	55,6	6,7	55,5	7,0	55,5	6,7	55,5	7,0
Sep	47,6	7,8	47,5	6,8	47,2	7,7	46,9	6,5
Okt	45,9	8,7	46,8	7,9	43,6	8,1	44,4	7,3
Nov	39,7	7,2	41,4	5,7	38,8	6,7	40,5	5,0
Dez	41,7	4,0	42,3	3,4	41,1	3,8	41,7	3,2
1996	51,5	10,7	51,0	9,1	51,2	10,9	50,5	9,1

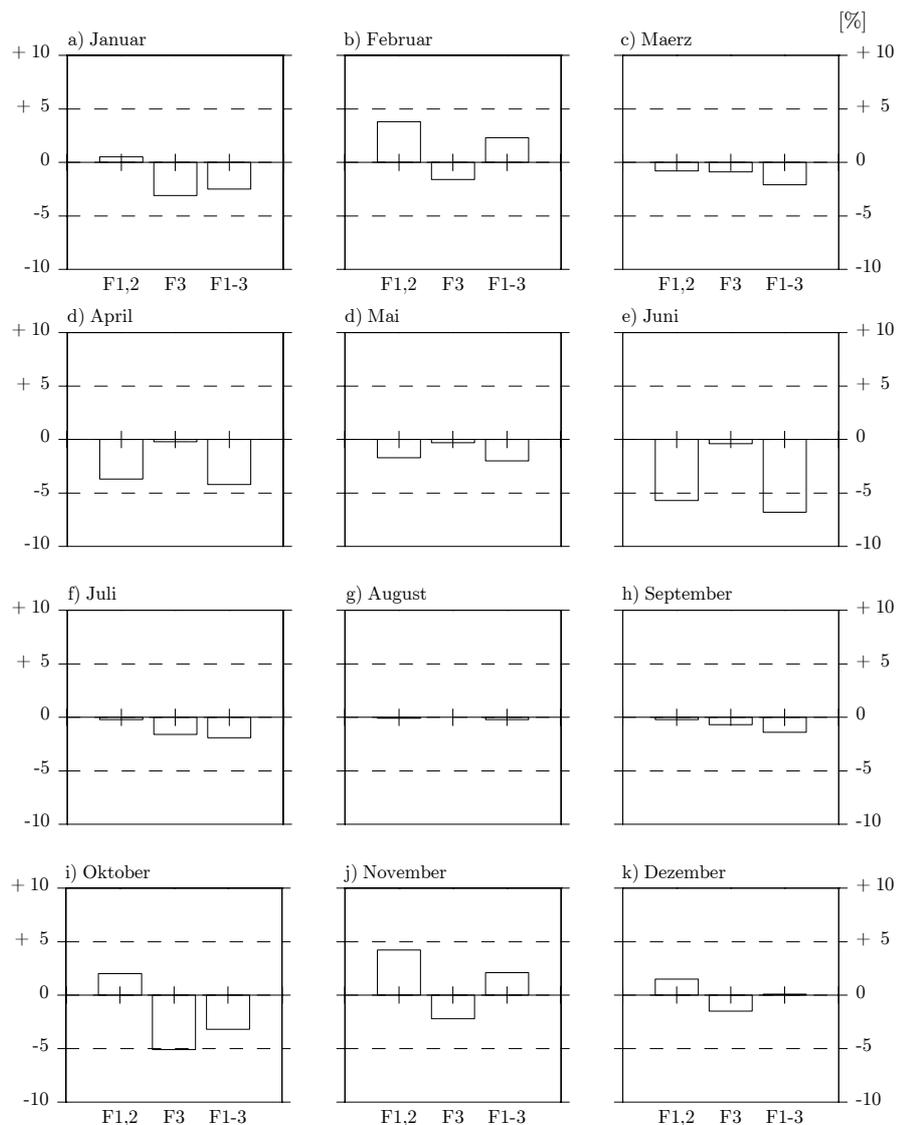


Abb. 6-20 Ozon Mittelwert-Abweichung für die Filterung, 1996

Darstellung der monatlichen Abweichung [%] des Arithmetischen Mittelwertes für die Messreihe mit Filterung im Vergleich zu der ungefilterten Messreihe. Eine positive Abweichung bedeutet, dass die Filterung zu einem höheren Mittelwert führt, eine negative Abweichung, dass der Mittelwert im Gegensatz zu der ungefilterten Messreihe niedriger liegt. F1,2: Filterung für Einfluss aus der Grundschicht (Filter 1 und Filter 2), F3: Filterung für Einfluss infolge stratosphärischer Intrusionen (Filter 3), F1-3: Filterung für Gesamt-Einfluss (Filter 1, Filter 2 und Filter 3).

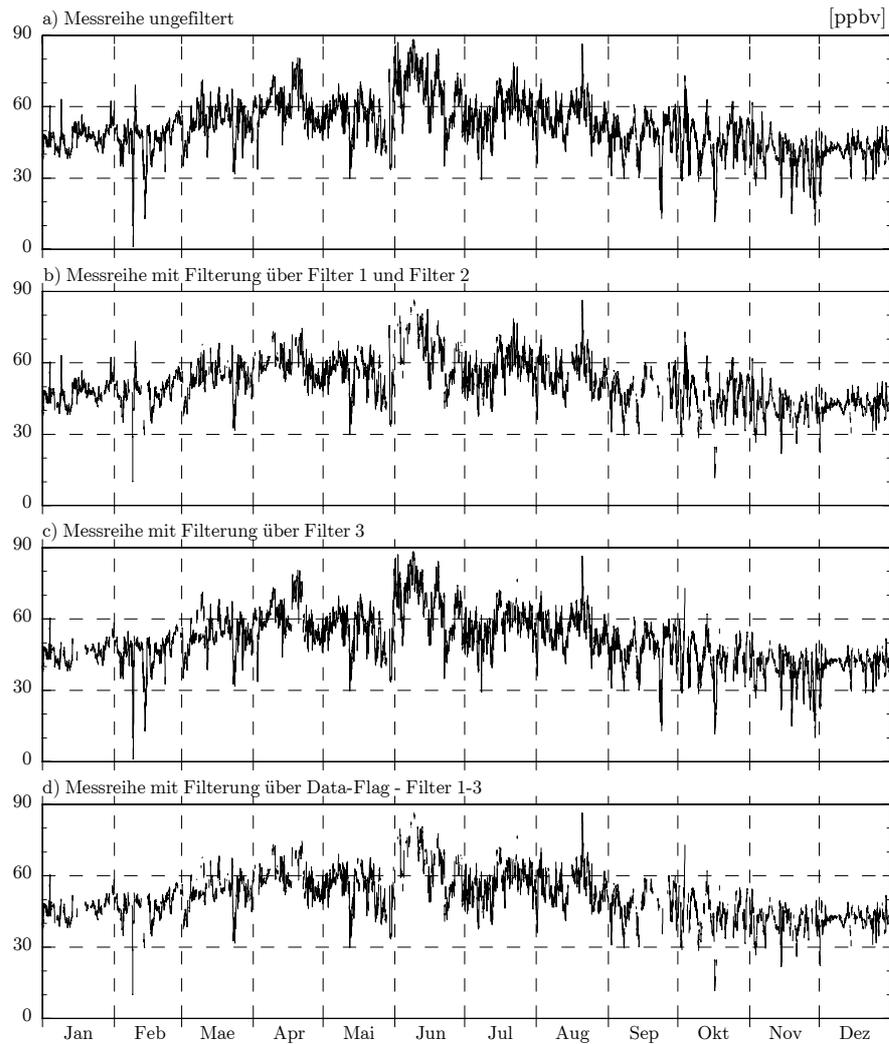


Abb. 6-21 Ozon Zeitreihe mit Filterung für 1996

Gegenüberstellung von ungefilterter Messreihe (a) und gefilterter Messreihe mit Differenzierung nach Filterung für Einfluss aus der Grundschicht (b), infolge Intrusionen (c) und für die kombinierte Filteranwendung (d).

## 7 Zusammenfassung und Schlussbemerkung

Im Rahmen des „Global Atmosphere Watch“ Programms übernimmt die Station Zugspitze die Funktion der Globalstation für den europäischen Raum. Mit der formulierten GAW-Aufgabe für Globalstationen, den luftchemischen Hintergrund zur Früherkennung atmosphärischer und klimatischer Veränderungen zu erfassen, besteht die Forderung nach einer Messung, die für ein großes Umfeld weitestgehend repräsentativ und nicht durch lokale Effekte gestört wird. Um dieser Aufgabe zu entsprechen, ist für die Ausweisung repräsentativer Messdaten eine vorherige Filterung mit Kennzeichnung von stationsspezifischen Einflüssen in den Messreihen der Station notwendig.

Die Höhe der Station Zugspitze mit fast 3000 m ü.NN und dem Vorherrschen von Gradientwind ist der unteren Troposphäre zuzuordnen, wobei sich zeitweise Einflüsse aus der Grundschicht einstellen. Ein Transport von Luftmassen aus der Grundschicht an die Station ist auf thermisch angeregte Konvektionsvorgänge, die zum Teil aber auch durch die Lage im Alpenraum selbst ausgelöst werden, und auf synoptisch bedingte Vertikaltransporte mit anschließendem advektiven Herantransport zurückzuführen. Im Gegensatz hierzu sind Intrusionen mit direkten Vertikaltransporten aus der Stratosphäre verbunden und führen ebenfalls zu einer Beeinflussung der Messreihen an der Station.

Diese Luftmassen-Einflüsse aus der Grundschicht und infolge Intrusionen beinhalten entsprechend ihrem zurückliegenden Aufenthalt spezifische Konzentrationsverhältnisse, die in den Messreihen an der Station erkennbar sind. Bestimmte Spurengase übernehmen hierbei die Funktion einer Leitsubstanz und ermöglichen einen Rückschluss auf die Herkunft der an die Station herantransportierten Luftmassen. Während die Messgrößen Kohlenmonoxid und Natürliche Radioaktivität entsprechend ihrer bodennahen Quellen Tracer für Einfluss aus der Grundschicht sind, ist das Radionuklid Beryllium-7 mit seiner Bildung durch kosmische Strahlung ein Tracer für Luftmassen aus der oberen Atmosphäre. Hingegen ist Ozon keine eindeutige Leitsubstanz, vielmehr ist eine Unterscheidung zwischen troposphärisch und durch Vorläufersubstanzen bodennah produziertem Ozon nur unter Betrachtung weiterer Spurengase möglich. Durch das gemeinsame Auftreten von Konzentrationsänderungen in den Messreihen an der Station ist insgesamt ein bestimmtes luftchemisches Muster erkennbar, das einen Rückschluss auf den zurückliegenden Aufenthalt der Luftmassen zulässt und somit das Erkennen eines Einflusses in den Messreihen ermöglicht. Darüber hinaus zeigt die Analyse der Rückwärtstrajektorien den vertikalen Verlauf der an die Station transportierten Luftmassen auf und lässt einen weiteren

Rückschluss auf einen zurückliegenden Aufenthalt in Höhen der Grundsicht zu. In Verbindung mit einem Emissions-Inventar kann eine damit verbundene Spurengasaufnahme abgeschätzt werden.

Werden diese in den Messreihen erkennbaren meteorologischen und luftchemischen Zusammenhänge in Filterregeln linguistisch formuliert, so können mit der Methodik der Fuzzy-Logic Filterfunktionen aufgestellt werden, die einen Luftmassen-Einfluss als den abzubildenden Prozess interpretieren. Die Methodik fungiert dabei als Modellrahmen und ermöglicht die Verarbeitung unscharfer Informationen unter einer eindeutigen mathematischen Beschreibung. Der abzubildende Prozess wird hierbei über wenige bereits zusammengefasste Steuergrößen beschrieben. Für die Kennzeichnung von Luftmassen-Einflüssen an der Station Zugspitze werden insgesamt drei Filterregeln formuliert, die einen Einfluss aus der Grundsicht infolge lokal induzierter und synoptisch bedingter Transportvorgänge sowie einen Einfluss aus der oberen Atmosphäre infolge Intrusionen beschreiben. Zu den verwendeten Abstrakten Größen zählen neben den Tracern Kohlenmonoxid, Natürliche Radioaktivität und Beryllium-7, die Messgröße Ozon, die meteorologische Größe der Relativen Feuchte sowie die Daten der Trajektorienverläufe.

Die Anwendung der Filterfunktionen auf einen Jahresdatensatz zeigt insgesamt konsistente Ergebnisse. Beispielsweise ist der in Fallstudien ermittelte Luftmassen-Einfluss infolge Intrusionen auch mit den Fuzzy-Logic Filtern identifizierbar, zudem ist die ermittelte Häufigkeit von Episoden mit bisherigen Ergebnissen anderer Forschungsarbeiten vergleichbar. Darüber hinaus ist mit der gewählten Methode der Fuzzy-Logic neben einer detaillierten Auswertung auch eine Anpassung des Härtegrades für die Filterkriterien möglich. Hierbei können in dem letzten Teilabschnitt der Defuzzifizierung je nach Aufgabenstellung geringe oder nur sehr starke Einflüsse in den Messreihen an der Station identifiziert werden.

Eine Filteranwendung ist für den Jahresdatensatz 1996 für 91,6% der Datensätze durchführbar. Mit einem Luftmassen-Einfluss sind insgesamt 31,1% der Datensätze zu kennzeichnen, 21,5% für Einfluss aus der Grundsicht und 9,6% infolge Intrusionen. Für den atmosphärischen Hintergrund sind damit 68,9% der Messdaten als repräsentativ zu bezeichnen. Mit der Kennzeichnung von Luftmassen-Einfluss in den Messreihen erfolgt eine Filterung dieser Datensätze, die für eine Ausweisung repräsentativer Messdaten und die Ermittlung statistischer Maße unberücksichtigt bleiben.

Die Bedeutung der Messreihen-Filterung auf die auszuweisenden repräsentativen Konzentrationsverhältnisse zeigt der Vergleich von Mittelwert und Standardabweichung zwischen der ungefilterten und der gefilterten Messreihe. Für die vorgestellten Messgrößen Kohlenmonoxid, Methan, Kohlendioxid und Ozon ist mit der Filterung insgesamt eine deutliche Minderung der Standardabweichung und damit eine Erhöhung der Repräsentanz der Messdaten zu erzielen. Während die Filterung für Kohlenmonoxid am deutlichsten ausgeprägt ist, fällt für die klimarelevanten Spurengase Methan und Kohlendioxid wie auch für Ozon die Minderung von Mittelwert und Standardabweichung niedriger aus, liegt aber durchaus in der Größenordnung eines säkularen Anstiegs und ist damit für eine Trenderkennung von Bedeutung.

Mit Implementierung der Filterfunktionen in eine Datenbank wird ein Software-Tool für den operationellen Betrieb zur Verfügung gestellt. Da der Stationsbezug ausschließlich aus den eingegebenen Daten ausgelesen wird, ist bei inhaltlicher Übertragbarkeit auch eine Anwendung für andere Stationen möglich. Der Quellcode für die

implementierten Filterfunktionen ist dabei frei zugänglich, so dass das entwickelte Software-Tool eine Grundlage für mögliche Erweiterungen wie beispielsweise die Entwicklung zusätzlicher Filterregeln oder die Berücksichtigung neuer Größen darstellt.

Die Ausweisung repräsentativer Messdaten ist eine grundlegende Aufgabe für die Beschreibung des luftchemischen Hintergrundes und ermöglicht erst die Erkennung von atmosphärischen und klimatischen Veränderungen. In der vorliegenden Arbeit wurde die Entwicklung und Anwendung von Filterfunktionen zur Kennzeichnung der Luftmassen-Einflüsse in den Messreihen der Globalstation Zugspitze vorgestellt. Darüber hinaus ist auch für andere Stationen im Rahmen des Global Atmosphere Watch Programms eine Anwendung und Weiterentwicklung der vorgestellten Fuzzy-Logic Filter wünschenswert.



---

## Literaturverzeichnis

ALIEV ET AL., 2000

Aliev, R., Bonfig, K., Aliev, F., 2000. Soft Computing. Verlag Technik Berlin.

BARNOLA ET AL., 1987

Barnola, J.M., Raynaud, D., Korotkevich, Y.S., Lorius, C., 1987. Vostok ice core provides 160000-year record of atmospheric CO<sub>2</sub>. Nature, 329, 408-414.

BAUMANN ET AL., 2001

Baumann K., Maurer, H., Rau, G., Piringer, M, Pechinger, U., Prevot, A., Furger, M., Neininger, B., Pellegrini, U., 2001. The influence of south Foehn on the ozone distribution in the Alpine Rhine valley - results from the MAP field phase. Atmospheric Environment, 35 , 6379-6390.

BAUMBACH, 1992

Baumbach, G., 1992. Luftreinhaltung, Entstehung und Wirkung von Luftverunreinigungen - Messtechnik, Emissionsminderung und Vorschriften. 2. Auflage, Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York.

BODHAINE, 1983

Bodhaine, B.A., 1983. Aerosol measurements at four background sites. Journal of Geophysical Research, 99, 753-768.

BONASONI ET AL., 2000

Bonasoni, P., Evangelisti, F., Bonafe, U., Ravegnani, F., Calzolari, F., Stohl, A., Tositti, L., Tubertini, O., Colombo, T., 2000. Stratospheric ozone intrusions episodes recorded at Mt. Cimone during the VOTALP project: case studies. Atmospheric Environment, 34, 1355-1365.

BOUGEAULT, 2001

Bougeault, P., Binder, P., Buzzi, A., Dirks, R., Houze, R., Kuettner, J., Smith, R.B., Steinacker, R., Volkert, H., 2001. The MAP Special Observing Period. Bulletin of the American Meteorological Society, 82 , 433-462.

BÖRCSÖK, 2000

Börcsök, J., 2000. Fuzzy Control. Verlag Technik Berlin.

BFS, 2001

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.), 2001. Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 1999. Bonn.

BUZZI ET AL., 1984

Buzzi, A., Giovanelli, G., Nanni, T., Tagliazucca, M., 1984. Study of high ozone concentrations in the troposphere associated with lee cyclogenesis during ALPEX. Contributions to Atmospheric Physics, 57, 380-392.

## DLUGOKENCKY ET AL., 1994

Dlugokencky, E.J., Steele, L.P., Lang, P.M., Mesarie, K.A., 1994. The growth rate and distribution of atmospheric CH<sub>4</sub>, *Journal of Geophysical Research*, 99, 17021-17043.

## DRÖSSER, 1995

Drösser, C., 1995. *Fuzzy Logic*. Rowohlt Verlag Hamburg.

## DUHNKE, 1998

Duhnke, K., 1998. Ozon- und Wasserdampfverteilung im polaren Strahlstrom über dem Nordatlantik. *Dissertationsschrift, Universität zu Köln*.

## DUTKIEWICZ, 1985

Dutkiewicz, V.A., Husain, L., 1985. Stratospheric and tropospheric components of <sup>7</sup>Be in surface air. *Journal of Geophysical Research*, 90, 5783-5788.

## DWD, 2000-A

Deutscher Wetterdienst (Hrsg.), Fricke et al., 2000. Filterung luftchemischer Messreihen im Alpenraum zur Charakterisierung ihrer Repräsentanz, GAW-DACH-Projekt. *Berichte des Deutschen Wetterdienstes*, Nr. 211, Offenbach am Main.

## DWD, 2000-B

Deutscher Wetterdienst (Hrsg.), Wege, K., 2000. Die Geschichte der Station Zugspitze. *Geschichte der Meteorologie in Deutschland*, Nr. 4, Offenbach am Main.

## DWD, 1999

Deutscher Wetterdienst (Hrsg.), 1999. *Deutsches Meteorologisches Jahrbuch 1996*. Offenbach am Main.

## DWD, OZONBULLETIN, 1999

Deutscher Wetterdienst (Hrsg.), *Ozonbulletin* Nr. 63, März 1999. Kohlenmonoxid in Verbindung mit der Temperatur als Indikator für photochemische Ozonbildung in der Troposphäre. *Deutscher Wetterdienst*, Offenbach am Main.

## DWD, OZONBULLETIN, 1998

Deutscher Wetterdienst (Hrsg.), *Ozonbulletin* Nr. 55, Juli 1998. Der Einfluss stratosphärischer Intrusionen auf die troposphärischen Ozonkonzentrationen. *Deutscher Wetterdienst*, Offenbach am Main.

## ELBERN ET AL., 1997

Elbern, H., Kowol, J., Sladkovic, R., Ebel, A., 1997. Deep stratospheric intrusions: a statistical assessment with model guided analysis. *Atmospheric Environment*, 31, 3207-3226.

## EMEIS, 2000

Emeis, S., 2000. *Meteorologie in Stichworten*. Gebrüder Borntraeger Verlagsbuchhandlung, Berlin, Stuttgart.

## FABIAN, 1992

Fabian, P., 1992. Atmosphäre und Umwelt. 4. Auflage, Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York.

## FAY ET AL., 1995

Fay, B., Glaab, H., Jacobsen, I., Schrodin, R., 1995. Evaluation of Eulerian and Lagrangian atmospheric transport models at the Deutscher Wetterdienst using ANATEX surface tracer data. Atmospheric Environment, 18, 2485-2497.

## FORRER, 1999

Forrer, J., Hofer, P., Schneiter, D., 1999. Variabilität von Spurengasen an der hochalpinen Station Jungfraujoch. In: Bericht über den Sonnblick-Workshop, Umweltforschung im Hochgebirge - Ergebnisse von GAW-DACH und verwandten Projekten, Österreichische Beiträge zu Meteorologie und Geophysik, Heft Nr.21, Zentralanstalt für Meteorologie und Geophysik, Wien.

## GERASOPOULOS ET AL., 2001

Gerasopoulos, E., Zanis, P., Stohl, A., Zerefos, C.S., Papastefanou, C., Ringer, W., Tobler, L., Hübener, S., Gäggeler, H.W., Kanter, H.J., Tositti, L., Sandrini, S., 2001. A climatology of <sup>7</sup>Be at four high-altitude stations at the Alps and the Northern Apennines. Atmospheric Environment, 34, 6347-6360.

## GRAEDEL, CRUTZEN, 1994

Graedel, T.E., Crutzen, P.J., 1994. Chemie der Atmosphäre. Spektrum Akademischer Verlag Heidelberg, Berlin, Oxford.

## GUTSCHE, LEFEBVRE, 1981

Gutsche, A., Lefebvre, C., 1981. Statistik der „maximalen“ Mischungsschichthöhe nach Radiosondennmessungen an der aerologischen Station des Deutschen Wetterdienstes im Zeitraum 1957-1973. Berichte des Deutschen Wetterdienstes, Nr. 154, Offenbach am Main.

## IPPC, 1995

Intergovernmental Panel on Climate Change (IPPC), 1995 Climate Change 1994. Radiative Forcing of Climate Change and an Evaluation of the IPCC OIS92 Emission Scenarios. Cambridge University Press, Cambridge, UK.

## KAISER, 1999

Kaiser, A., Nemeth, R., 1999. Die GAW-DACH Kooperation: Bisherige Ergebnisse für den Sonnblick. In: Bericht über den Sonnblick-Workshop, Umweltforschung im Hochgebirge - Ergebnisse von GAW-DACH und verwandten Projekten, Österreichische Beiträge zu Meteorologie und Geophysik Heft Nr.21, Zentralanstalt für Meteorologie und Geophysik, Wien.

## KANTER ET AL., 1982

Kanter, H.J., Reiter, R., Munzert, K.H., 1982. Untersuchung zur Frage der photochemischen Produktion von Ozon in Reinluftgebieten und ihrer vertikalen Verteilung. Forschungsbericht 10402800, Umweltbundesamt, Berlin.

KARATZAS, MOUSSIOPOULOS, 2001

Karatzas, K., Moussiopoulos, N., 2001. Fuzziness in Urban Air Quality Management. In: Proceedings Eurotrac-2 Symposium 2000 - Transport and Chemical Transformation in the Troposphere, Midgley, P.M., Reuther, M., Williams, M. (Eds.), Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, 1158-1162.

KEELING, 1983

Keeling, C.D., 1983. The global carbon cycle: what we know and could know from atmospheric, biospheric, and oceanic observations. In: Proceedings of the CO<sub>2</sub> Research Conference: Carbon Dioxide, Science and Consensus, DOE Conf-820970, II.3-II.62. U.S. Department of Energy, Washington DC.

KLIR, YUAN, 1996

Klir, G., J., Yuan, B., (Eds.) 1996. Fuzzy Sets, Fuzzy-Logic and Fuzzy-Systems - Selected Papers by Loft A. Zadeh. World Scientific Publishing, Singapore, River Edge, London.

KREWITT ET AL., 1995

Krewitt, W., Trukenmueller, A., Mayerhofer, P., Friedrich, R., 1995. ECOSENSE - an Integrated Tool for Environmental Impact Analysis. In: Kremers, H., Pillmann, W. (Eds.): Space and Time in Environmental Information Systems. Umwelt-Informatik aktuell, Band 7, Metropolis-Verlag Marburg.

KROMP-KOLB, 2001

Kromp-Kolb, H., 2001. VOTALP II: Vertical Ozone Transports in The Alps II. In: Proceedings Eurotrac-2 Symposium 2000 - Transport and Chemical Transformation in the Troposphere, Midgley, P.M., Reuther, M., Williams, M. (Eds.), Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, p. 225-229.

KUNTZ, 1983

Kuntz, E., 1983. Kartennetzentwurfslehre. Wichmann Verlag Karlsruhe.

LFU, 1996

Landesanstalt für Umweltschutz (Hrsg.), 1996. Radioaktivität in Baden-Württemberg - Jahresbericht 1995, Bericht Nr. 18, Karlsruhe.

LILJEQUIST, 1974

Liljequist, G., 1974. Allgemeine Meteorologie, Verlag Vieweg und Sohn Braunschweig.

LUGAUER, 2001

Lugauer, M., Winkler, P., 2001. Alpines Pumpen - Thermische Zirkulation und Spurenstofftransport im Alpenraum. In: Deutsch-Österreichisch-Schweizerische Meteorologen-Tagung 2001 Wien, Österreichische Beiträge zu Meteorologie und Geophysik, Heft Nr. 27/Publ. Nr. 399, Zentralanstalt für Meteorologie und Geophysik, Wien.

MLUS, 1996

MLus-92, 1996. Merkblatt über Luftverunreinigungen an Straßen, Teil: Straßen ohne oder mit lockerer Randbebauung, MLuS-92. Ausgabe 1992, geänderte Fassung 1996, Forschungsgesellschaft für Straßen- und Verkehrswesen e. V., Köln.

MONK, 2000

Monk, P.S., 2000. A review of the observations and origins of the spring ozone maximum. *Atmospheric Environment*, 34, 3545-3561.

MORTIMER, 1987

Mortimer, C.E., 1987. Chemie. 5. Auflage, Georg Thieme Verlag Stuttgart, New York.

NATIONAL RESEARCH COUNCIL, 1991

National Research Council, 1991. Rethinking the Ozone Problem in Urban and Regional Air Pollution. National Academy Press, Washington DC.

NYEKI ET AL., 2000

Nyeki, S., Kalberer, M., Colbeck, I. et al., 2000. Convective Boundary Layer Evolution to 4 km asl over High-Alpine Terrain: Airborne Lidar Observations in the Alps. *Geophysical Research Letters*, 27, 689-692.

OLENDRZYNSKI, 1999

Olendrzynski, K., 1999. Operational EMEP Eulerian Acid Deposition Model. EMEP/MSC-W, Norwegian Meteorological Institute, Research Note No. 29.

ORTMANN, 1999

Ortmann, D., 1999. Access 2000 - Datenbanken professionell aufbauen. Carl Hanser Verlag München, Wien.

PFEIFFER, WINKLER, 2001

Pfeiffer, A., Winkler, P., 2001. Ausbreitung eines inerten Spurenstoffes simuliert mittels des Regionalmodells MCCM. In: Deutsch-Österreichisch-Schweizerische Meteorologen-Tagung 2001 Wien, Österreichische Beiträge zu Meteorologie und Geophysik, Heft Nr. 27/Publ. Nr. 399, Zentralanstalt für Meteorologie und Geophysik, Wien.

POHLIT, 1992

Pohlit, W., 1992. Radioaktivität. BI-Taschenbuchverlag Mannheim, Leipzig, Wien, Zürich.

REITER, 1991

Reiter, R., 1991. On the mean daily and seasonal variations of vertical ozone profiles in the lower troposphere. *Atmospheric Environment*, 25A, 1751-1757.

ROEDEL, 2000

Roedel, W., 2000. Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre. 3. Auflage, Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York.

ROß, 2001

Roß, F., 2001. Der Einfluß von Fuzzy-Operatoren auf die Entscheidungsfindung. In: Tagungsband, Anwendungen von Fuzzy-Technologien und Neuronalen Netzen, Symposium 29.03.2000, Hochschule Harz, Wernigerode.

SACHS, 1999

Sachs, L., 1999. Angewandte Statistik, Anwendung Statistischer Methoden, 9. Auflage. Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York.

SCHEEL ET AL., 1999

Scheel, H.E., Sladkovic, R., Kanter, H.J., 1999. Ozone variations at the Zugspitze (2962 m asl) during 1996-1997. In: Borell, P.M., Borell, P. (Eds.), Proceedings of EUROTRAC-2 Symposium 98, WIT press Southampton, 264-268.

SCHEEL ET AL., 2000

Scheel, H.E., Emeis, S., Grell, G., Hoffmann, H., Reitebuch, O., Schäfer, K., Trickl, T., 2000. Final report of IFU. In: Vertical Ozone Transportes in the Alps II, Final Report, Contract Nr.: ENV4 CT97 0413, Reporting Period: 01.03.1998-29.02.2000, (<http://www.boku.ac.at/imp/votalp/>).

SCHÖNWIESE, 1991

Schönwiese, C.D., 1991. Praktische Statistik für Meteorologen und Geowissenschaftler. 2. Auflage, Verlag Gebrüder Borntraeger Berlin, Stuttgart.

SEIBERT ET AL., 2000

Seibert, P., Feldmann, H., Neininger, B., Bäumle, M., Trickl, T., 2000. South foehn and ozone in the Eastern Alps - case study and climatological aspects. Atmospheric Environment, 34, 1379-1394.

SEINFELD, PANDIS, 1998

Seinfeld, J.H., Pandis S.N., 1998. Atmospheric Chemistry and Physics, From Air Pollution to Climate Change. John Wiley & Sons, Inc.

STOHL ET AL., 2000

Stohl, A., Spichtinger-Rakowsky, N., Bonasoni, P., Feldmann, H., Memmesheimer, M., Scheel, H.E., Trickl, T., Hübener, S., Ringer, W., Mandl, M., 2000. The influence of stratospheric intrusions on alpine ozone concentrations. Atmospheric Environment, 34, 1323-1354.

STOLZ, 1996

Stolz, W., 1996. Radioaktivität. Grundlagen, Messung, Anwendungen. 3. Auflage, B.G. Teubner Verlagsgesellschaft Stuttgart, Leipzig.

UMWELTBUNDESAMT, 2001

Umweltbundesamt (Hrsg.), 2001. Daten zur Umwelt - Der Zustand der Umwelt in Deutschland, Ausgabe 2000. 7. Ausgabe, Erich Schmidt Verlag Berlin.

**VDI-RICHTLINIE 3782, 2000**

VDI-Richtlinie 3782, Blatt 1 Entwurf, 2000. Umweltmeteorologie Gauss'sches Ausbreitungsmodell für Luftreinhaltepläne. VDI/ DIN-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 1, Düsseldorf.

**VESTRENG, KLEIN, 2002**

Vestreng, V., Klein, H., 2002. Emission data reported to UNECE/EMEP: Quality assurance and trend analysis & Presentation of WebDab, MSC-W Status Report 2002. EMEP/MS-CW, Norwegian Meteorological Institute, Research Note No. 73.

**VISCONTI, 2001**

Visconti, G., 2001. Fundamentals of Physics and Chemistry of the Atmosphere. Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York.

**WICKERT ET AL., 1999**

Wickert, B., Schwarz, U., Blank, P., John, C., Kühlwein, J., Obermeier, A., Friedrich, R., 1999. Generation of an Emission Data Base for Europe 1994. In: Borrell, P.M., Borrell, P. (Eds.), Proceedings of EUROTRAC-2 Symposium 98. WIT press Southampton.

**WMO, 1993**

WMO, 1993. Status of the Global Atmosphere Watch Programme. Technical Report 99, published by World Meteorological Organisation, Geneva.

**WMO WDCGG No.17 DATA REPORT, 1998**

WMO WDCGG Data Report, September 1998. GAW DATA, Volume IV - Greenhouse Gases and Other Atmospheric Gases. WDCGG No.17, published by Japan Meteorological Agency in Co-Operation with Meteorological Organization.

**WMO WDCGG No.21 DATA REPORT, 2000**

WMO WDCGG Data Report, March 2000. GAW DATA, Volume IV - Greenhouse Gases and Other Atmospheric Gases. WDCGG No.21, published by Japan Meteorological Agency in Co-Operation with Meteorological Organization.

**WMO WDCGG No.23 DATA REPORT, 2000**

WMO WDCGG Data Report, September 2000. GAW DATA, Volume IV - Greenhouse Gases and Other Atmospheric Gases. WDCGG No.23, published by Japan Meteorological Agency in Co-Operation with Meteorological Organization.

**WMO WDCGG No.25 DATA REPORT, 2001**

WMO WDCGG Data Report, March 2001. GAW DATA, Volume IV - Greenhouse Gases and Other Atmospheric Gases. WDCGG No.25, published by Japan Meteorological Agency in Co-Operation with Meteorological Organization.

**WOTAWA, KROMB-KOLB, 2000**

Wotawa, G., Kromp-Kolb, H., 2000. The research project VOTALP - general objectives and main results. Atmospheric Environment, 34, 1319-1322.

ZIMMERMANN, 2001

Zimmermann, H.J., 2001. Fuzzy Set Theory and its Applications. 4th edition, Kluwer Academic Publishers Boston, Dordrecht, London.

## Anhang

### Globalstation Zugspitze, Messreihen 1996



Gipfelbereich der Zugspitze mit Umweltforschungsstation Schneefernerhaus am Südhang



## A.1 Erläuterung zu den Darstellungen im Anhang

Der Anhang beinhaltet eine systematisch aufbereitete Darstellung der an der Zugspitze ermittelten luftchemischen Messgrößen für das Jahr 1996 und stellt eine vollständige Grundlage für die Analyse der Spurengas-Konzentrationen dar, die auch für weiterführende Auswertungen genutzt werden kann. Die Darstellung erfolgt nach einem einheitlichen Schema für die Spurenstoffe Kohlenmonoxid, Methan, Kohlendioxid, Stickoxide, Ozon und Natürliche Radioaktivität. Für die Messgröße Beryllium-7 ist aufgrund der geringen Auflösung als Tagesmittel die Darstellung entsprechend beschränkt, daneben sind Zeitreihen und Boxplots für die meteorologischen Größen der Temperatur und Relativen Feuchte ergänzend aufgeführt. Die zugrunde liegenden Berechnungen werden nachfolgend für die Abbildung der Windrosen, der normierten mittleren Tagesgänge sowie für die Berechnung der Korrelationskoeffizienten beschrieben.

### A.1.1 Windrosen

Die Darstellung von Schadstoff-Windrosen ist für den durch Topographie beeinflussten Standort Zugspitze nur bedingt als Hilfsmittel für die Ermittlung der Herkunft von Luftverunreinigungen einsetzbar, so dass nachfolgend eine Darstellung ohne weitere Differenzierung auf Jahresbasis erfolgt. Die Windrose mit einer Unterteilung in 32 Sektoren basiert auf der Zuordnung eines Schadstoff-Messwertes zu der herrschenden Windrichtung mit anschließender Bildung des Arithmetischen Mittels der Konzentrationen für jeden Sektor.

### A.1.2 Normierte mittlere Tagesgänge

Der Tagesgang einer Messgröße wird über das Arithmetische Mittel der Messwerte mit Gruppierung nach einer Tageszeit berechnet. In Abhängigkeit vom Jahresverlauf der Messgröße oder von Episoden liegen die Mittelwerte einer Tageszeit aber auf variierendem Niveau. Der normierte Tagesgang stellt ausschließlich die Spannweite der tageszeitlichen Schwankungen dar, wobei die Ausprägung in seiner Messeinheit erhalten wird. Die Normierung bezieht sich auf das Tagesmittel, das als Basis mit der Nullachse direkt die Richtung einer Abweichung auch bei einem Jahresgang einer Messgröße zeigt. Die monatliche Differenzierung verdeutlicht die von der Jahreszeit abhängige Ausprägung eines Tagesganges.

Die Berechnung eines normierten Tagesganges erfolgt über den vorgeschalteten Rechenschritt mit Bildung der Differenz zwischen gemessenem Halbstundenwert und dem zugehörigen Arithmetischen Tagesmittel, bevor der Mittelwert gruppiert für einen tageszeitlichen Termin mit Auflösung einer Halbstunde getrennt nach Monaten berechnet wird. Für die Ermittlung eines repräsentativen Tagesmittels werden 70% Datenverfügbarkeit und für die Ermittlung eines repräsentativen tageszeitlichen Mittels zu einem Halbstunden-Termin 33% Datenverfügbarkeit gefordert. Dies entspricht mindestens 34 von 48 Halbstundenwerten eines Tages sowie mindestens ca. 10 Halbstundenwerten zu einem Halbstundetermin eines Monats. Die Angabe der Datenverfügbarkeit in den nachfolgenden Grafiken bezieht sich auf die insgesamt verfügbaren Halbstundenwerten eines Monats in Bezug auf die mögliche Anzahl von Halbstundenwerten. Hier ist zu berücksichtigen, dass bestimmte Messgrößen wie Stickoxide und Ozon einen täglichen Kalibrierungszeitraum besitzen, der in den ersten Halbstunden (00:00 bis 01:30) eines Tages liegt. Für diese Messgrößen ist eine 100% Datenverfügbarkeit zu Halbstunden-Terminen aus messtechnischen Gründen nicht möglich.

### A.1.3 Korrelationskoeffizienten

Die verteilungsfreie Korrelationsrechnung erfolgt als Rangkorrelation nach Spearman, der nach [SCHÖNWIESE, 1991, Seite 141] insbesondere bei nicht linearer Regression, wie zum Beispiel bei logarithmischem oder exponentiellem Zusammenhang, brauchbare Abschätzungen für die Korrelation liefert. Für den Rangkorrelations-Koeffizient von Spearman ( $r_s$ ) ist die Prüfung nach Korrelation zwischen zwei Reihen von Messwerten auch bei nicht binormalverteilten Messwerten exakt. Außerdem wird die Beeinflussung von Ausreißern, die die Größe des Produktmoment-Korrelationskoeffizienten ( $r$ ) stark beeinflussen können, abgeschwächt [SACHS, 1999; Seite 510].

## A.2 Kohlenmonoxid

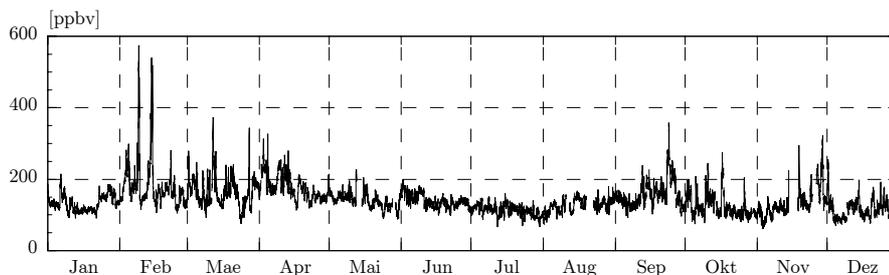


Abb. A.2-1 Kohlenmonoxid Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. A.2-2 Kohlenmonoxid Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

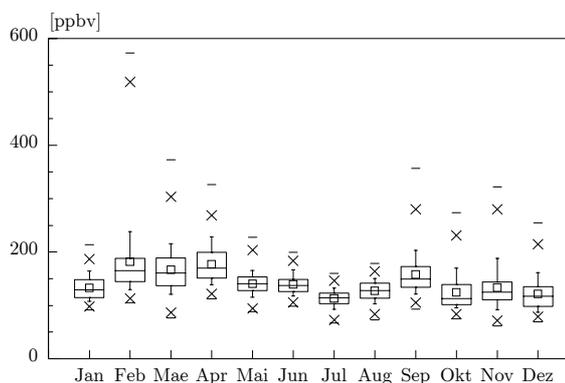
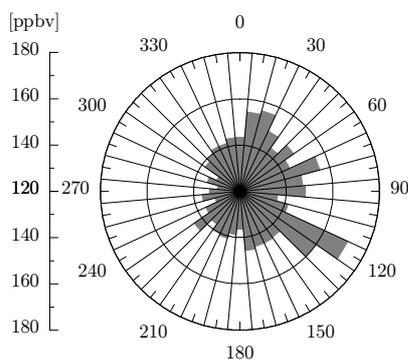


Abb. A.2-3 Kohlenmonoxid Spurengaswindrose für 1996

Mittlere Konzentrationen [ppbv] pro Windrichtungssektor.



Tab. A.2-1 Kohlenmonoxid Statistik für 1996

Angaben in [ppbv]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	143,05	61,54	573,04	41,29	16715	95,1
Januar	132,60	91,38	214,09	21,94	1482	99,6
Februar	181,62	105,15	573,04	70,83	1391	99,9
März	166,57	76,54	372,66	42,16	1482	99,6
April	176,92	112,55	326,04	34,64	1437	99,8
Mai	140,57	88,60	227,41	20,80	1325	89,0
Juni	139,41	98,49	199,53	18,37	1426	99,0
Juli	113,19	67,00	160,17	15,36	1487	99,9
August	127,13	73,11	178,75	18,37	1223	82,2
September	157,74	93,17	356,91	37,14	1423	98,8
Oktober	124,23	75,43	273,99	32,53	1409	94,7
November	133,19	61,54	322,00	40,61	1164	80,8
Dezember	121,05	69,48	254,82	29,49	1466	98,5

Tab. A.2-2 Kohlenmonoxid Perzentile für 1996

Angaben in [ppbv]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	94,25	102,78	117,57	135,90	159,56	188,63	215,33
Januar	104,08	107,86	114,64	129,03	147,95	164,30	174,25
Februar	122,05	129,82	144,49	164,88	188,27	238,48	293,05
März	110,79	120,54	136,83	160,86	188,79	215,91	240,53
April	131,47	138,46	151,07	169,89	199,51	228,41	238,97
Mai	103,92	115,58	127,85	140,31	153,75	165,67	172,13
Juni	112,99	117,61	126,12	137,17	148,95	166,49	173,66
Juli	87,65	92,66	103,42	114,17	123,15	132,42	137,89
August	96,55	102,79	113,83	127,85	141,37	150,31	155,49
September	115,12	121,12	133,64	149,16	172,39	203,10	232,22
Oktober	91,61	95,43	101,35	113,07	139,09	169,60	193,74
November	83,41	91,99	110,79	124,66	143,98	188,34	224,26
Dezember	84,04	87,29	98,25	117,33	135,13	161,31	178,25

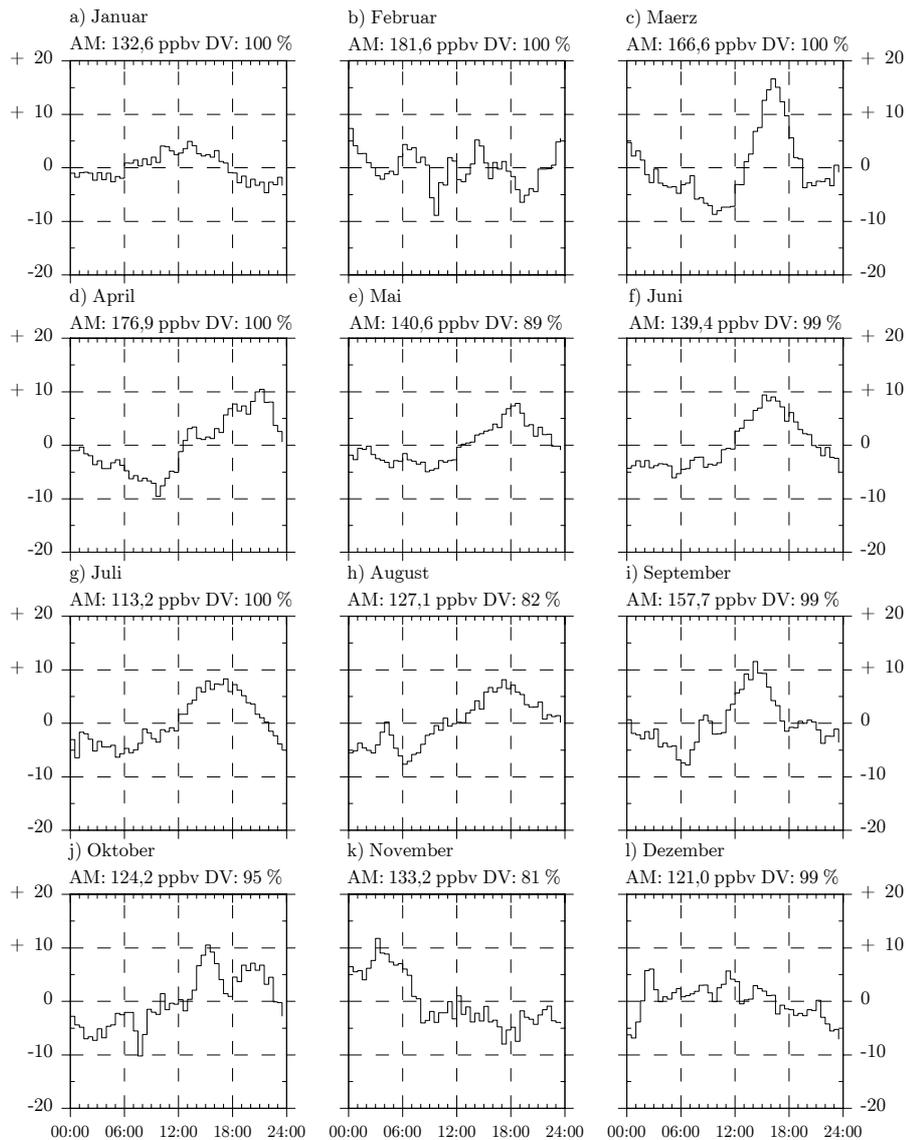


Abb. A.2-4 Kohlenmonoxid Mittlere Tagesgänge für 1996

Normierter Monats-Tagesgang für Kohlenmonoxid im Jahr 1996 als mittlere Abweichung [ppbv] der Halbstundenwerte vom Tagesmittel.  
 AM: Arithmetisches Monatsmittel; DV: Datenverfügbarkeit eines Monats, 100% entspricht 1440 bzw. 1488, 1392 Halbstundenwerten (30 bzw. 31 Tage-Monat, Februar)

Tab. A.2-3 Kohlenmonoxid Korrelationen für 1996

		CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	NO	NO <sub>x</sub>	NO <sub>y</sub>	O <sub>3</sub>	N. Rad.
Januar	rs	0,8	0,9	0,2	0,4	0,8	-0,3	0,6
	N	1428	1247	1456	1335	1407	1439	1470
Februar	rs	0,8	1,0	0,5	0,7	0,8	-0,5	0,6
	N	1200	1282	1334	1237	1071	1354	1157
März	rs	0,9	0,7	0,4	0,6	0,8	0,1	0,6
	N	1164	1394	1348	979	1342	1470	1435
April	rs	0,8	0,9	0,2	0,6	0,7	0,4	0,1
	N	1020	1311	1296	534	1289	1390	1423
Mai	rs	0,0	0,9	0,1	0,2	0,5	0,4	0,5
	N	940	1271	1198	357	1196	1295	1292
Juni	rs	-0,1	0,6	0,0	0,1	0,7	0,4	0,7
	N	1200	1327	1297	1063	1288	1397	1362
Juli	rs	-0,1	0,5	0,2	0,3	0,6	0,1	0,2
	N	998	643	1350	199	1352	1456	1473
August	rs	-0,2	0,8	-0,1	0,3	0,2	0,2	0,3
	N	1062	634	1116	1116	1117	1196	1223
September	rs	0,5	0,0	0,2	0,6	0,3	0,1	0,3
	N	1354	656	1217	550	1173	1393	1423
Oktober	rs	0,6	0,7	0,2	0,6	0,4	-0,4	0,5
	N	1262	554	1281	1215	281	1380	1406
November	rs	0,9	0,7	0,7	0,5	0,8	-0,4	0,3
	N	1133	881	1032	449	1026	1137	1155
Dezember	rs	0,9	0,9	-0,1	0,4	0,5	-0,5	0,6
	N	1123	1312	1315	759	1310	1433	1043

rs: Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman  
N: Anzahl der Datensätze

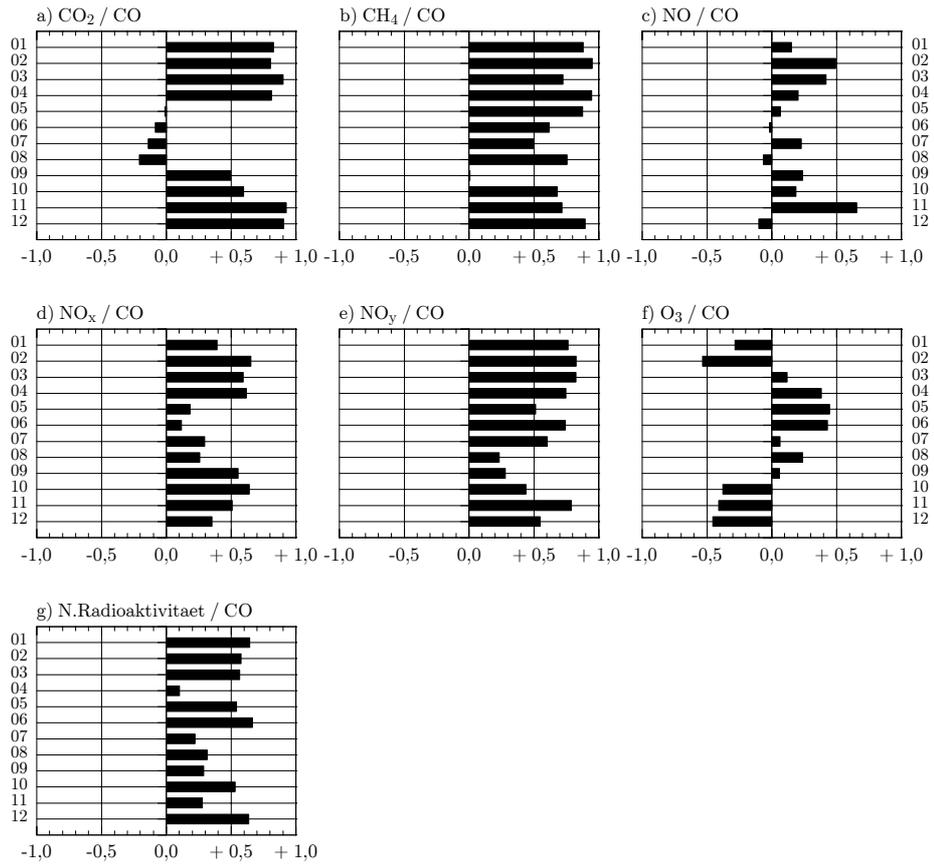


Abb. A.2-5 Kohlenmonoxid Grafik der Korrelationskoeffizienten für 1996  
Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman



### A.3 Methan

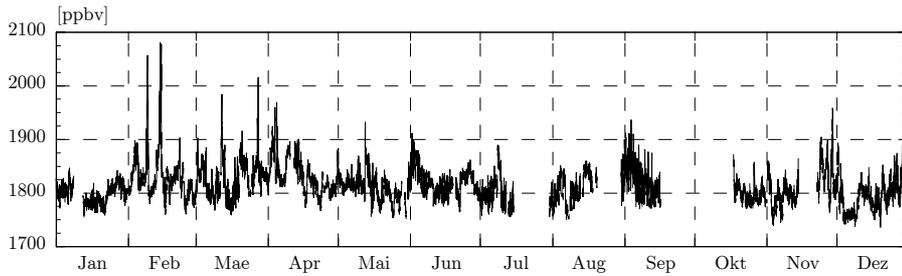


Abb. A.3-1 Methan Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. A.3-2 Methan  
Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

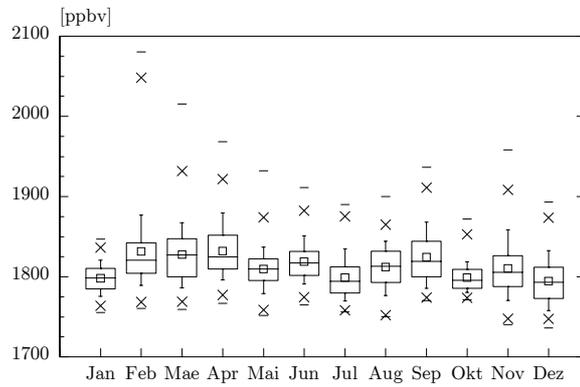
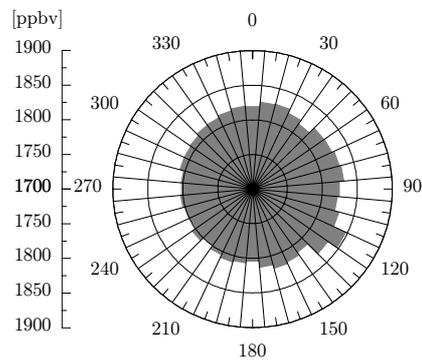


Abb. A.3-3 Methan  
Spurengaswindrose für 1996  
Mittlere Konzentrationen [ppbv] pro  
Windrichtungssektor.



Tab. A.3-1 Methan Statistik für 1996

Angaben in [ppbv]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	1814,19	1736,30	2080,48	33,65	12903	73,4
Januar	1797,99	1755,34	1847,07	17,13	1247	83,8
Februar	1831,61	1760,40	2080,48	50,18	1283	92,2
März	1827,61	1759,28	2015,55	34,89	1397	93,9
April	1832,04	1766,94	1968,70	32,13	1314	91,3
Mai	1809,55	1751,67	1932,19	23,77	1378	92,6
Juni	1818,74	1764,81	1911,29	23,54	1338	92,9
Juli	1798,78	1756,20	1890,00	26,26	644	43,3
August	1811,81	1750,14	1900,00	26,56	749	50,3
September	1824,20	1770,05	1936,47	32,42	664	46,1
Oktober	1798,67	1771,38	1871,97	16,82	594	39,9
November	1810,34	1740,26	1958,31	34,70	968	67,2
Dezember	1794,57	1736,30	1893,36	28,85	1327	89,2

Tab. A.3-2 Methan Perzentile für 1996

Angaben in [ppbv]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	1769,02	1778,20	1792,41	1810,10	1830,16	1855,03	1872,15
Januar	1770,30	1775,57	1784,76	1798,59	1810,33	1820,75	1826,32
Februar	1782,00	1789,17	1804,29	1820,71	1842,23	1876,71	1931,87
März	1777,84	1785,87	1800,16	1826,90	1847,44	1867,49	1880,75
April	1788,79	1796,09	1809,50	1824,55	1851,65	1879,60	1888,13
Mai	1769,12	1778,89	1795,37	1809,64	1822,44	1836,98	1850,00
Juni	1785,24	1790,95	1801,52	1817,03	1831,27	1850,91	1864,20
Juli	1765,42	1769,86	1779,68	1794,18	1812,35	1834,47	1854,30
August	1765,19	1776,52	1792,86	1813,04	1831,90	1844,15	1849,62
September	1779,42	1785,51	1800,15	1819,14	1844,20	1868,23	1886,18
Oktober	1777,18	1780,45	1785,59	1795,56	1809,24	1818,65	1826,48
November	1760,74	1770,50	1787,70	1805,42	1826,50	1858,91	1876,13
Dezember	1753,31	1757,55	1772,82	1793,25	1811,90	1833,01	1846,94

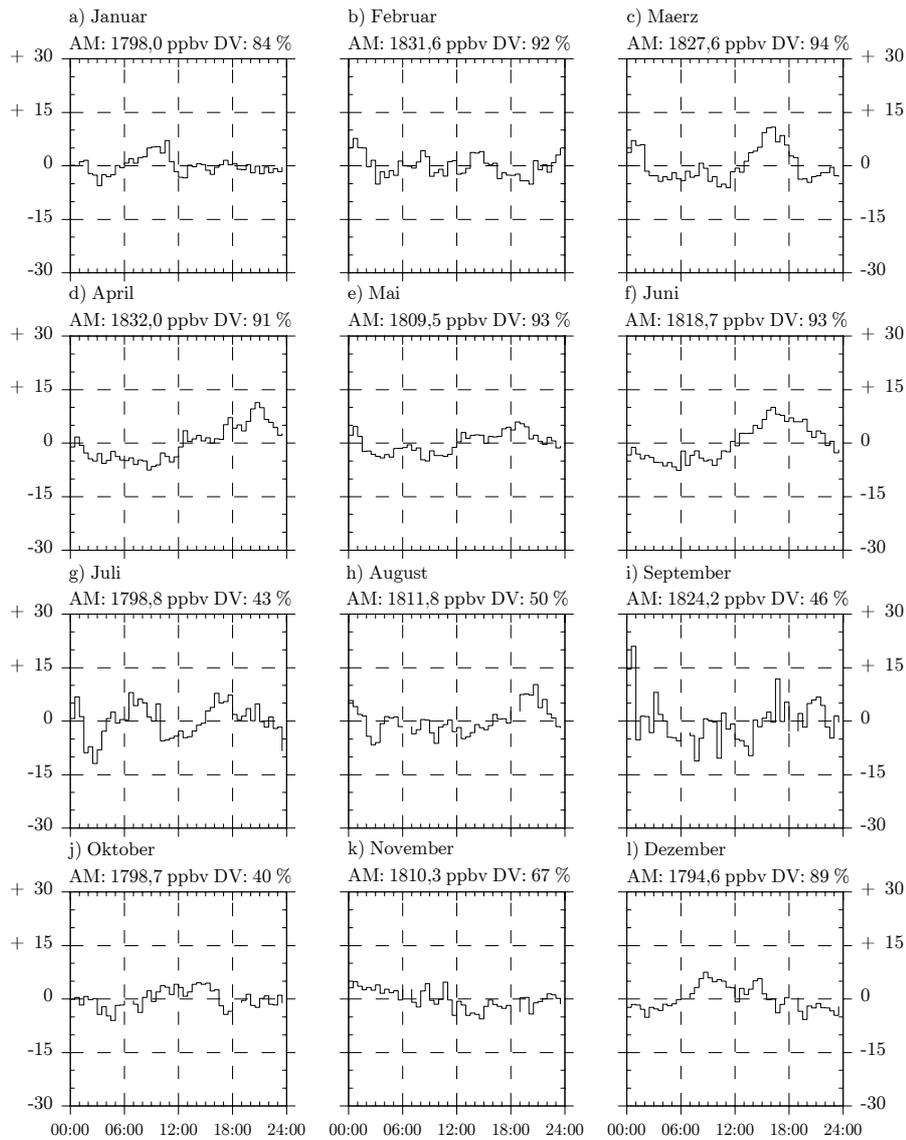


Abb. A.3-4 Methan Mittlere Tagesgänge für 1996

Normierter Monats-Tagesgang für Methan im Jahr 1996 als mittlere Abweichung [ppbv] der Halbstundenwerte vom Tagesmittel.

AM: Arithmetisches Monatsmittel; DV: Datenverfügbarkeit eines Monats, 100% entspricht 1440 bzw. 1488, 1392 Halbstundenwerten (30 bzw. 31 Tage-Monat, Februar).

Tab. A.3-3 Methan Korrelationen für 1996

		CO	CO <sub>2</sub>	NO	NO <sub>x</sub>	NO <sub>y</sub>	O <sub>3</sub>	N. Rad.
Januar	rs	0,9	0,7	0,1	0,4	0,7	-0,3	0,6
	N	1247	1203	1230	1126	1194	1208	1235
Februar	rs	1,0	0,8	0,5	0,6	0,8	-0,6	0,5
	N	1282	1135	1249	1154	999	1250	1068
März	rs	0,7	0,7	0,4	0,6	0,6	0,0	0,3
	N	1394	1120	1268	939	1262	1385	1358
April	rs	0,9	0,8	0,1	0,6	0,6	0,3	0,0
	N	1311	959	1185	515	1182	1270	1314
Mai	rs	0,9	0,1	0,0	0,0	0,3	0,1	0,2
	N	1271	930	1173	324	1149	1342	1341
Juni	rs	0,6	-0,2	0,1	0,3	0,6	-0,1	0,3
	N	1327	1130	1209	1008	1205	1305	1276
Juli	rs	0,5	0,2	0,2	0,3	0,2	-0,2	-0,1
	N	643	538	579	111	580	629	630
August	rs	0,8	0,0	-0,1	0,3	0,1	0,2	0,0
	N	634	674	691	691	691	732	749
September	rs	0,0	0,2	-0,2	-0,3	-0,3	0,1	0,1
	N	656	631	572	95	593	649	664
Oktober	rs	0,7	0,6	0,2	0,5	0,4	-0,5	0,3
	N	554	527	498	466	221	579	592
November	rs	0,7	0,8	0,5	0,0	0,6	-0,2	-0,1
	N	881	864	810	351	806	942	966
Dezember	rs	0,9	0,9	-0,2	0,3	0,5	-0,4	0,6
	N	1312	1046	1193	712	1189	1295	972

rs: Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman  
N: Anzahl der Datensätze

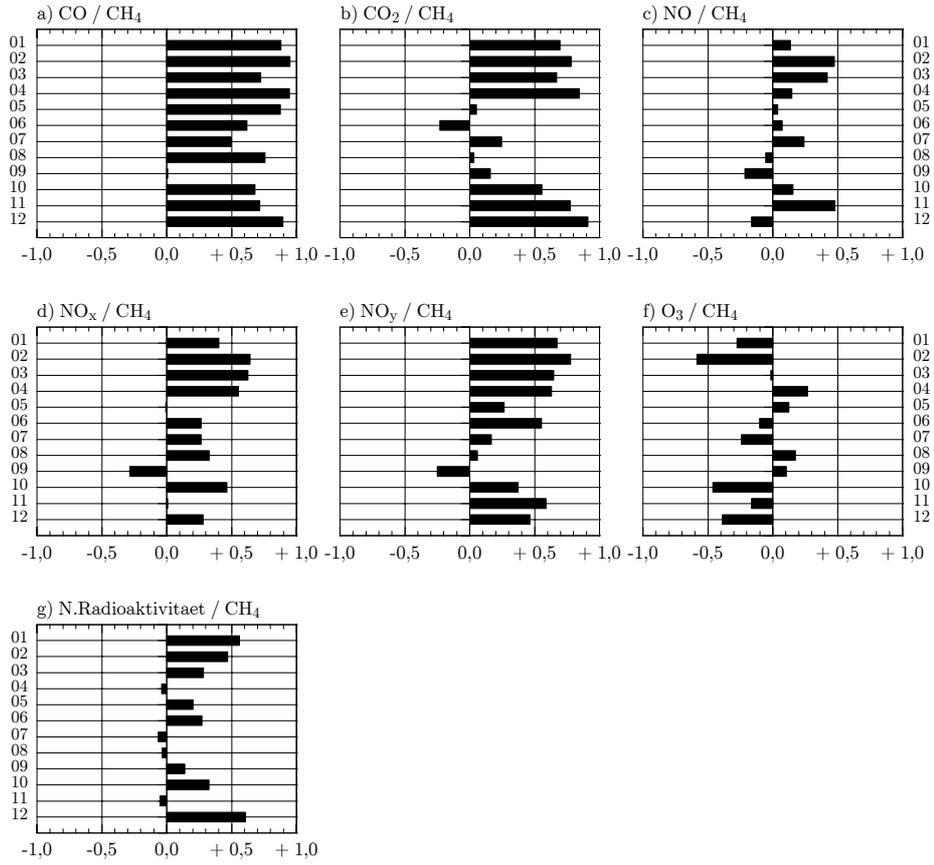


Abb. A.3-5 Methan Grafik der Korrelationskoeffizienten für 1996  
Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman



## A.4 Kohlendioxid

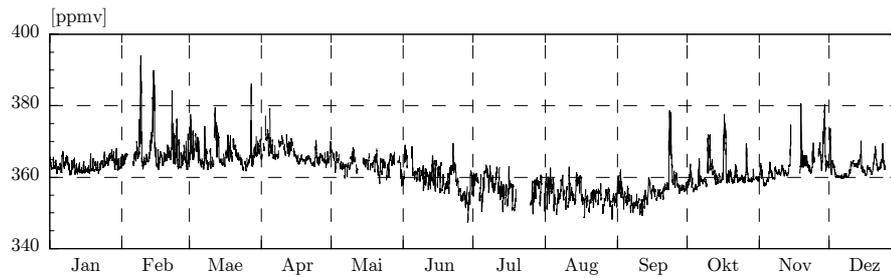


Abb. A.4-1 Kohlendioxid Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. A.4-2 Kohlendioxid Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

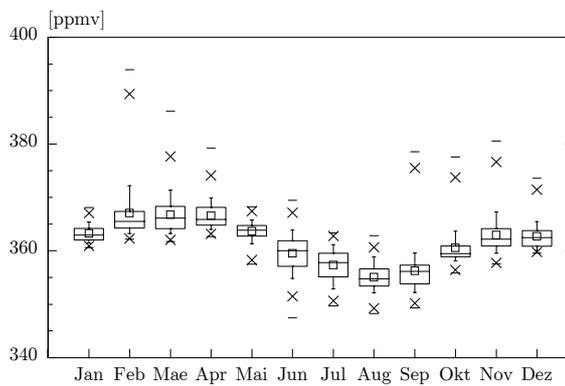
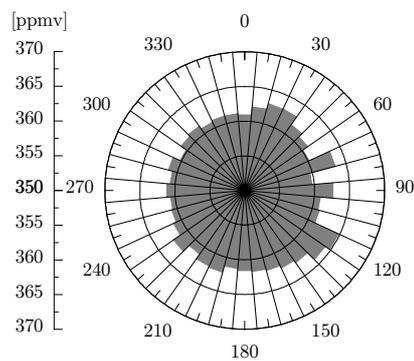


Abb. A.4-3 Kohlendioxid Spurengaswindrose für 1996  
Mittlere Konzentrationen [ppmv] pro Windrichtungssektor.



Tab. A.4-1 Kohlendioxid Statistik für 1996

Angaben in [ppmv]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	361,67	347,47	393,90	5,13	14229	81,0
Januar	363,24	360,63	368,07	1,49	1432	96,2
Februar	367,09	362,16	393,90	5,28	1201	86,3
März	366,75	361,76	386,12	3,50	1165	78,3
April	366,59	362,64	379,21	2,47	1020	70,8
Mai	363,66	357,52	368,27	1,81	959	64,4
Juni	359,57	347,47	369,49	3,55	1209	84,0
Juli	357,32	349,66	363,34	3,06	998	67,1
August	355,06	348,25	362,80	2,55	1288	86,6
September	356,27	349,34	378,56	4,09	1370	95,1
Oktober	360,55	355,81	377,60	3,43	1300	87,4
November	362,96	357,56	380,53	3,52	1144	79,4
Dezember	362,69	359,59	373,59	2,35	1143	76,8

Tab. A.4-2 Kohlendioxid Perzentile für 1996

Angaben in [ppmv]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	353,16	354,68	358,44	362,06	364,69	367,21	369,55
Januar	361,31	361,47	362,06	362,95	364,21	365,38	366,03
Februar	362,86	363,26	364,26	365,54	367,40	372,20	379,41
März	362,79	363,24	364,12	366,09	368,30	371,35	373,70
April	363,67	364,04	364,82	365,85	368,14	369,91	370,91
Mai	360,32	361,31	362,77	363,82	364,72	365,76	366,58
Juni	353,50	354,81	357,11	360,02	361,87	363,89	365,26
Juli	351,98	352,82	355,14	357,79	359,55	361,19	361,74
August	351,18	352,11	353,37	354,75	356,59	358,91	359,67
September	351,42	352,17	353,81	356,12	357,34	359,61	361,96
Oktober	357,15	358,09	358,88	359,46	360,94	363,69	369,02
November	358,46	359,52	360,89	362,19	364,15	367,27	369,64
Dezember	359,90	360,02	360,83	362,49	363,76	365,45	367,26

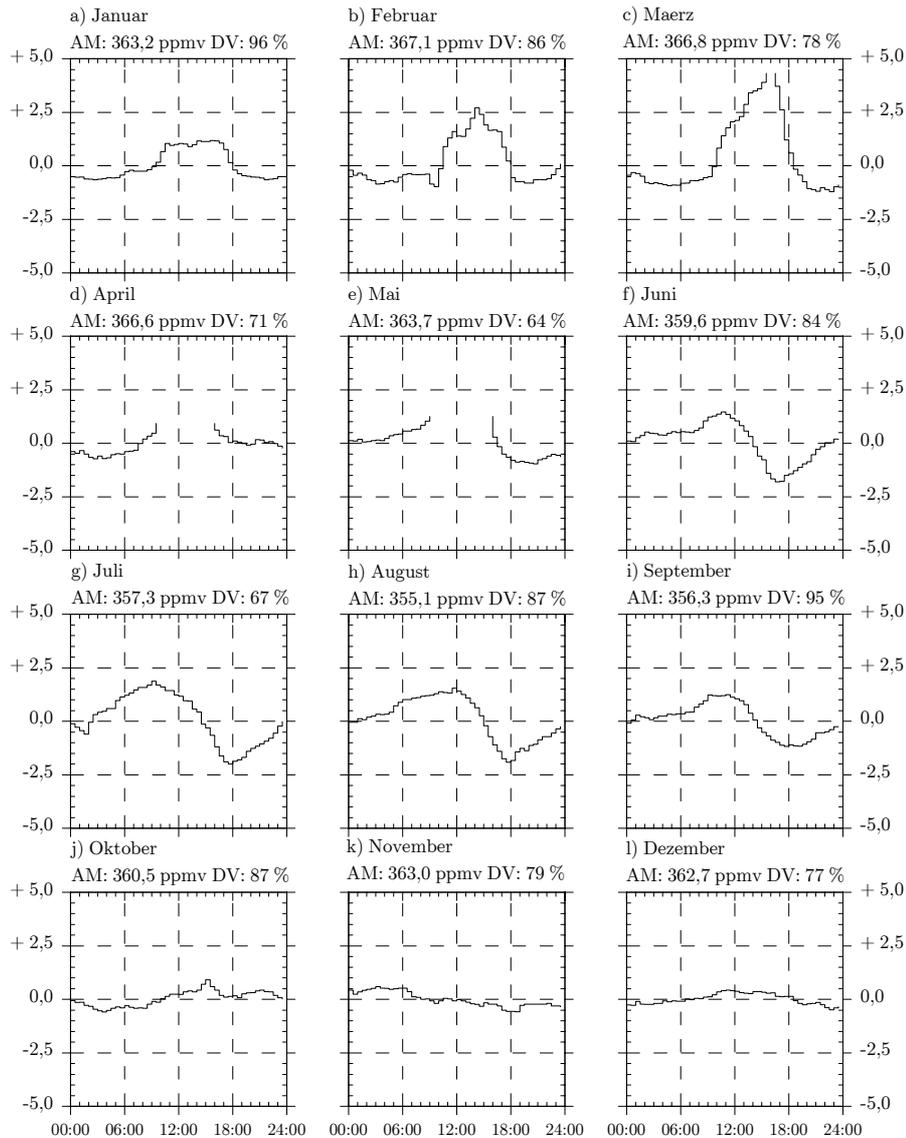


Abb. A.4-4 Kohlendioxid Mittlere Tagesgänge für 1996

Normierter Monats-Tagesgang für Kohlendioxid im Jahr 1996 als mittlere Abweichung [ppmv] der Halbstundenwerte vom Tagesmittel.

AM: Arithmetisches Monatsmittel; DV: Datenverfügbarkeit eines Monats, 100% entspricht 1440 bzw. 1488, 1392 Halbstundenwerten (30 bzw. 31 Tage-Monat, Februar)

Tab. A.4-3 Kohlendioxid Korrelationen für 1996

		CO	CH <sub>4</sub>	NO	NO <sub>x</sub>	NO <sub>y</sub>	O <sub>3</sub>	N. Rad.
Januar	rs	0,8	0,7	0,3	0,4	0,8	-0,2	0,6
	N	1428	1203	1406	1289	1360	1390	1422
Februar	rs	0,8	0,8	0,5	0,6	0,8	-0,4	0,4
	N	1200	1135	1159	1070	920	1170	1086
März	rs	0,9	0,7	0,5	0,6	0,8	0,0	0,5
	N	1164	1120	1043	781	1039	1165	1142
April	rs	0,8	0,8	0,1	0,2	0,4	0,1	-0,2
	N	1020	959	897	396	896	984	1009
Mai	rs	0,0	0,1	0,2	0,0	-0,3	-0,2	-0,3
	N	940	930	842	254	821	929	936
Juni	rs	-0,1	-0,2	-0,2	-0,3	-0,2	0,0	0,0
	N	1200	1130	1097	864	1096	1182	1153
Juli	rs	-0,1	0,2	0,2	-0,1	-0,5	-0,5	-0,5
	N	998	538	894	135	895	974	991
August	rs	-0,2	0,0	0,1	0,0	-0,1	0,0	-0,4
	N	1062	674	1163	1163	1164	1259	1274
September	rs	0,5	0,2	0,2	0,3	-0,1	0,0	-0,2
	N	1354	631	1170	540	1122	1340	1370
Oktober	rs	0,6	0,6	0,2	0,6	0,4	-0,5	0,3
	N	1262	527	1166	1099	270	1270	1298
November	rs	0,9	0,8	0,7	0,5	0,8	-0,4	0,2
	N	1133	864	1017	453	1012	1119	1135
Dezember	rs	0,9	0,9	-0,1	0,3	0,7	-0,5	0,7
	N	1123	1046	1016	756	1013	1118	1040

rs: Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman  
N: Anzahl der Datensätze

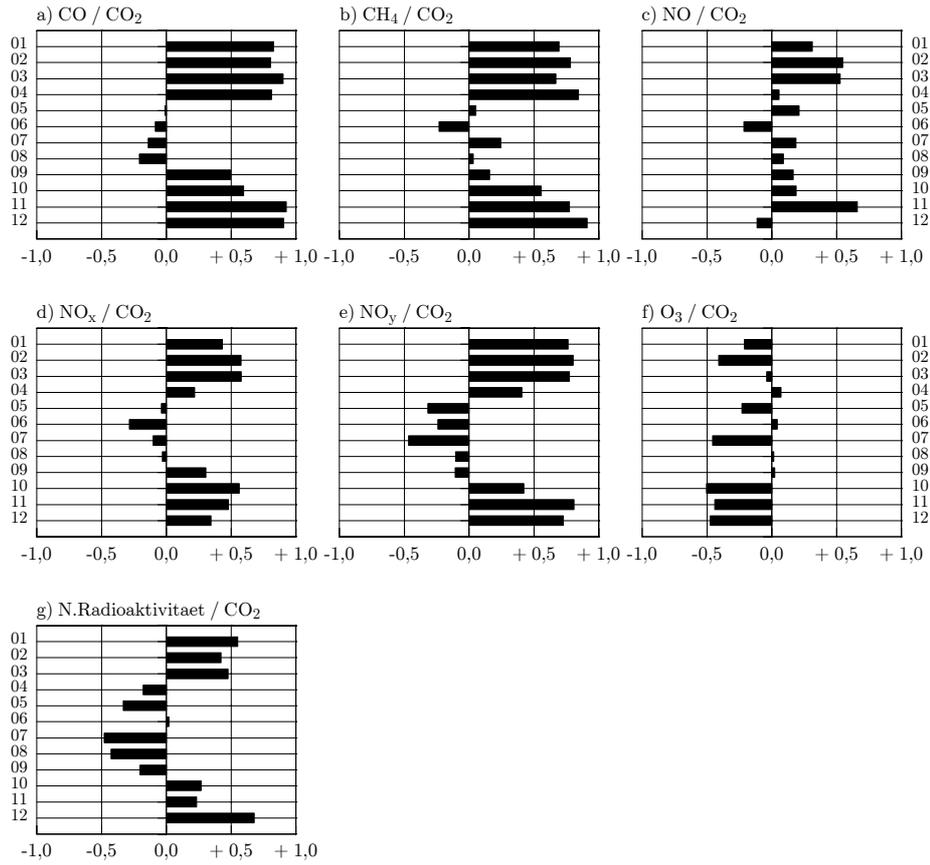


Abb. A.4-5 Kohlendioxid Grafik der Korrelationskoeffizienten für 1996  
Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman



## A.5 Stickoxide

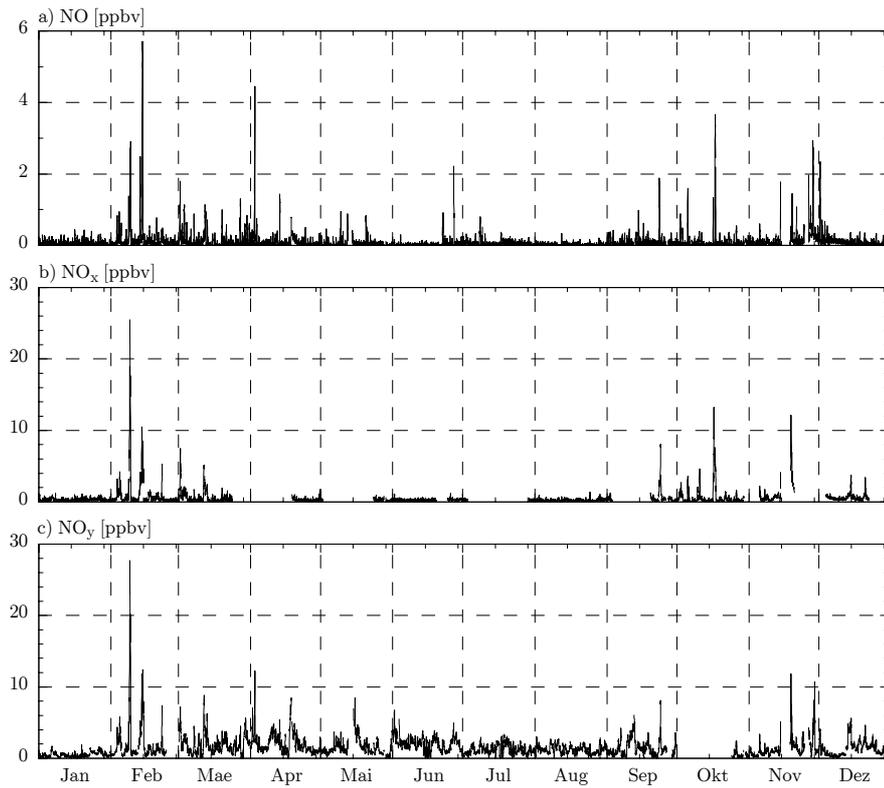


Abb. A.5-1 Stickoxide Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

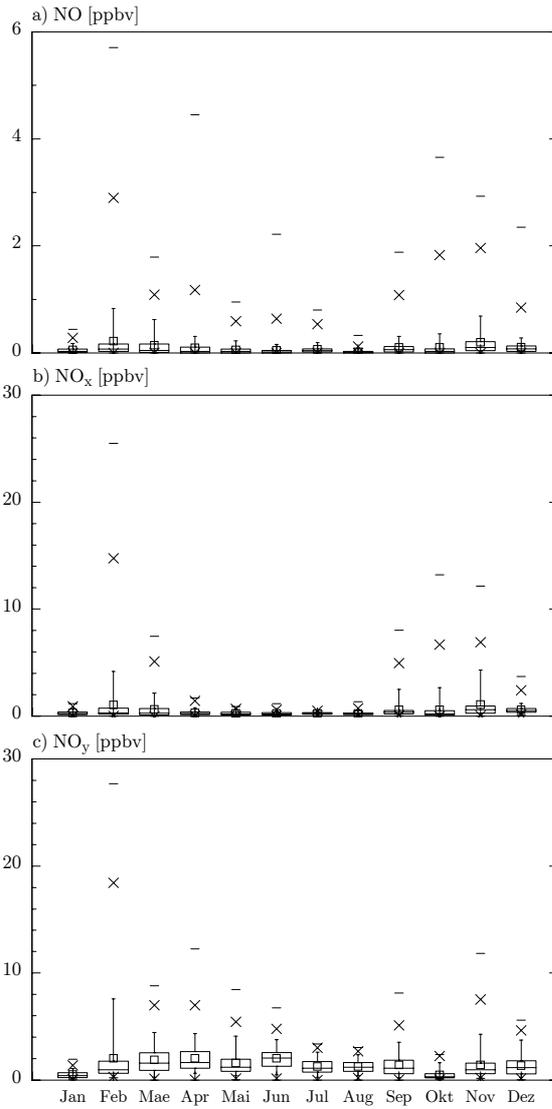


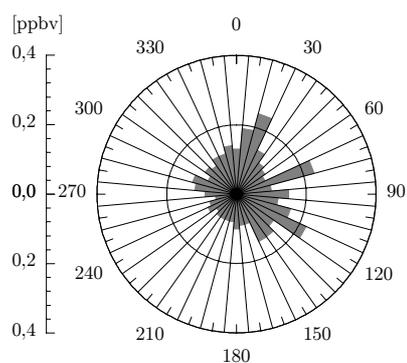
Abb. A.5-2 Stickoxide  
Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

## A.5.1 NO

Abb. A.5-3 NO Spurengaswindrose für 1996

Mittlere Konzentrationen [ppbv] pro Windrichtungssektor.



Tab. A.5-1 NO Statistik für 1996

Angaben in [ppbv]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	0,10	0,00	5,71	0,26	15604	88,8
Januar	0,06	0,00	0,44	0,06	1458	98,0
Februar	0,22	0,00	5,71	0,59	1335	95,9
März	0,14	0,00	1,79	0,23	1354	91,0
April	0,10	0,00	4,45	0,24	1299	90,2
Mai	0,06	0,00	0,95	0,10	1220	82,0
Juni	0,05	0,00	2,22	0,16	1306	90,7
Juli	0,07	0,00	0,80	0,09	1350	90,7
August	0,02	0,00	0,33	0,03	1361	91,5
September	0,10	0,00	1,88	0,18	1228	85,3
Oktober	0,10	0,00	3,66	0,32	1313	88,2
November	0,20	0,00	2,93	0,33	1043	72,4
Dezember	0,11	0,00	2,35	0,19	1337	89,9

Tab. A.5-2 NO Perzentile für 1996

Angaben in [ppbv]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	0,00	0,00	0,01	0,04	0,10	0,21	0,35
Januar	0,00	0,00	0,01	0,03	0,07	0,14	0,18
Februar	0,00	0,00	0,03	0,07	0,17	0,43	0,83
März	0,00	0,00	0,01	0,05	0,17	0,41	0,62
April	0,00	0,00	0,00	0,03	0,11	0,22	0,31
Mai	0,00	0,00	0,00	0,03	0,07	0,12	0,23
Juni	0,00	0,00	0,00	0,02	0,05	0,09	0,16
Juli	0,00	0,00	0,02	0,04	0,08	0,14	0,19
August	0,00	0,00	0,00	0,01	0,03	0,06	0,08
September	0,00	0,00	0,02	0,06	0,12	0,21	0,31
Oktober	0,00	0,00	0,00	0,03	0,08	0,16	0,36
November	0,00	0,01	0,04	0,10	0,21	0,44	0,68
Dezember	0,00	0,01	0,03	0,08	0,13	0,20	0,28

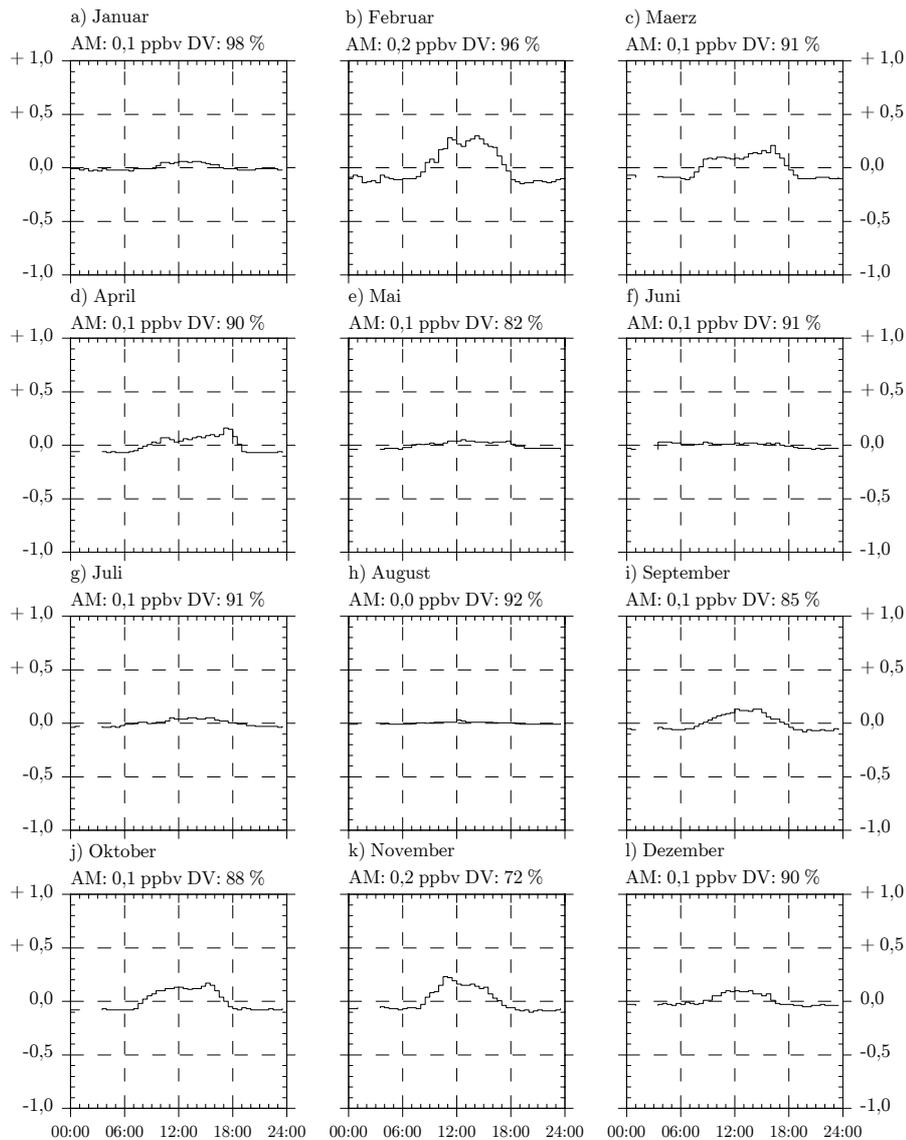


Abb. A.5-4 NO Mittlere Tagesgänge für 1996

Normierter Monats-Tagesgang für NO im Jahr 1996 als mittlere Abweichung [ppbv] der Halbstundenwerte vom Tagesmittel.

AM: Arithmetisches Monatsmittel; DV: Datenverfügbarkeit eines Monats, 100% entspricht 1440 bzw. 1488, 1392 Halbstundenwerten (30 bzw. 31 Tage-Monat, Februar).

Tab. A.5-3 NO Korrelationen für 1996

		CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	NO <sub>x</sub>	NO <sub>y</sub>	O <sub>3</sub>	N. Rad.
Januar	rs	0,2	0,3	0,1	0,2	0,4	-0,3	0,1
	N	1456	1406	1230	1337	1407	1426	1446
Februar	rs	0,5	0,5	0,5	0,6	0,7	-0,5	0,2
	N	1334	1159	1249	1238	1072	1306	1107
März	rs	0,4	0,5	0,4	0,7	0,5	-0,3	0,0
	N	1348	1043	1268	984	1348	1354	1320
April	rs	0,2	0,1	0,1	0,6	0,4	0,2	0,1
	N	1296	897	1185	534	1292	1253	1285
Mai	rs	0,1	0,2	0,0	0,2	0,2	-0,1	-0,2
	N	1198	842	1173	357	1196	1192	1187
Juni	rs	0,0	-0,2	0,1	0,1	0,0	-0,4	-0,3
	N	1297	1097	1209	1064	1296	1276	1242
Juli	rs	0,2	0,2	0,2	0,2	0,1	-0,1	-0,1
	N	1350	894	579	199	1349	1319	1337
August	rs	-0,1	0,1	-0,1	0,1	0,0	-0,2	-0,2
	N	1116	1163	691	1361	1360	1330	1347
September	rs	0,2	0,2	-0,2	0,4	0,3	-0,2	-0,1
	N	1217	1170	572	552	1146	1200	1228
Oktober	rs	0,2	0,2	0,2	0,4	0,3	-0,1	0,0
	N	1281	1166	498	1246	282	1284	1310
November	rs	0,7	0,7	0,5	0,5	0,6	-0,4	0,1
	N	1032	1017	810	454	1036	1018	1034
Dezember	rs	-0,1	-0,1	-0,2	0,1	-0,1	-0,2	-0,2
	N	1315	1016	1193	775	1330	1303	943
rs: Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman N: Anzahl der Datensätze								

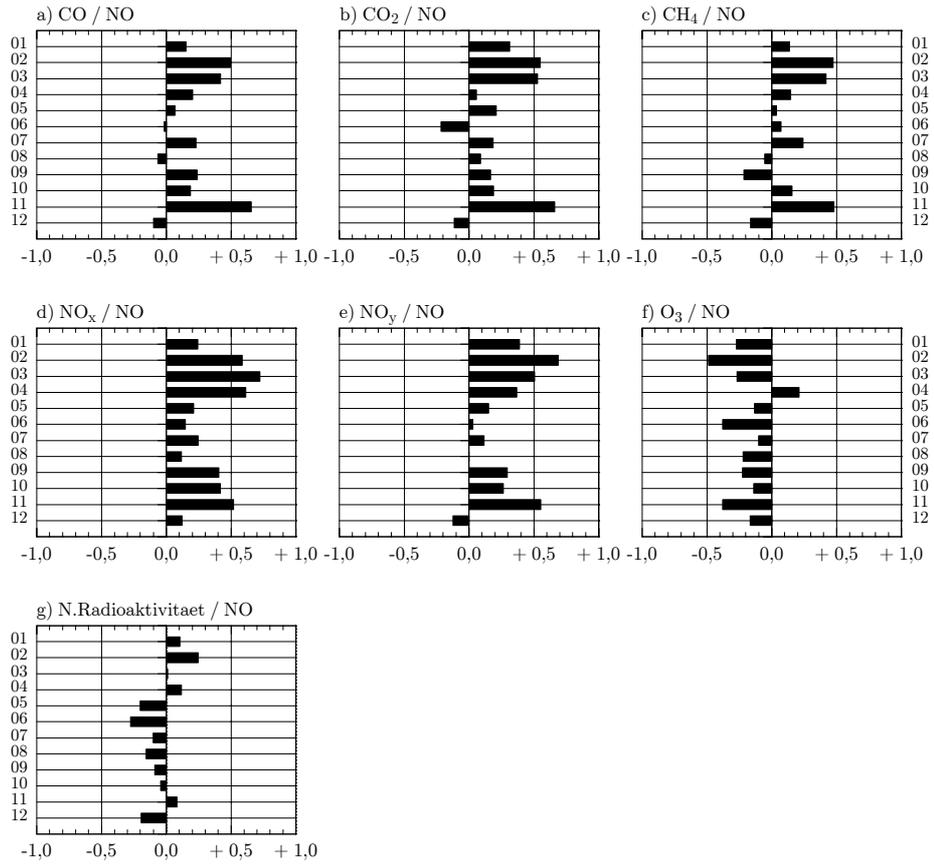
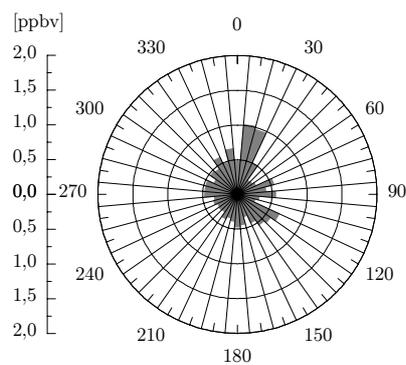


Abb. A.5-5 NO Grafik der Korrelationskoeffizienten für 1996  
Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman

A.5.2 NO<sub>x</sub>Abb. A.5-6 NO<sub>x</sub> Spurengaswindrose für 1996

Mittlere Konzentrationen [ppbv] pro Windrichtungssektor.

Tab. A.5-4 NO<sub>x</sub> Statistik für 1996

Angaben in [ppbv]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	0,52	0,00	25,48	1,13	10101	57,5
Januar	0,29	0,01	1,18	0,19	1337	89,9
Februar	1,04	0,00	25,48	2,43	1238	88,9
März	0,62	0,00	7,48	0,97	984	66,1
April	0,30	0,00	1,69	0,25	534	37,1
Mai	0,26	0,01	0,89	0,16	357	24,0
Juni	0,24	0,00	1,18	0,14	1064	73,9
Juli	0,25	0,01	0,58	0,11	199	13,4
August	0,24	0,00	1,34	0,15	1361	91,5
September	0,59	0,03	8,05	0,96	552	38,3
Oktober	0,61	0,00	13,20	1,29	1246	83,7
November	1,07	0,00	12,15	1,53	454	31,5
Dezember	0,60	0,08	3,70	0,42	775	52,1

Tab. A.5-5 NO<sub>x</sub> Perzentile für 1996  
Angaben in [ppbv]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	0,05	0,08	0,15	0,27	0,46	0,88	1,52
Januar	0,07	0,09	0,15	0,25	0,38	0,53	0,69
Februar	0,07	0,11	0,19	0,31	0,74	2,48	4,17
März	0,03	0,06	0,12	0,28	0,71	1,51	2,14
April	0,05	0,08	0,14	0,23	0,38	0,57	0,77
Mai	0,05	0,08	0,13	0,22	0,35	0,49	0,59
Juni	0,05	0,07	0,13	0,22	0,32	0,42	0,48
Juli	0,09	0,12	0,18	0,24	0,33	0,38	0,44
August	0,06	0,09	0,14	0,21	0,31	0,41	0,51
September	0,09	0,12	0,20	0,35	0,55	0,98	2,51
Oktober	0,02	0,04	0,09	0,21	0,51	1,41	2,64
November	0,12	0,17	0,28	0,59	0,95	2,61	4,36
Dezember	0,24	0,28	0,36	0,50	0,71	1,01	1,20

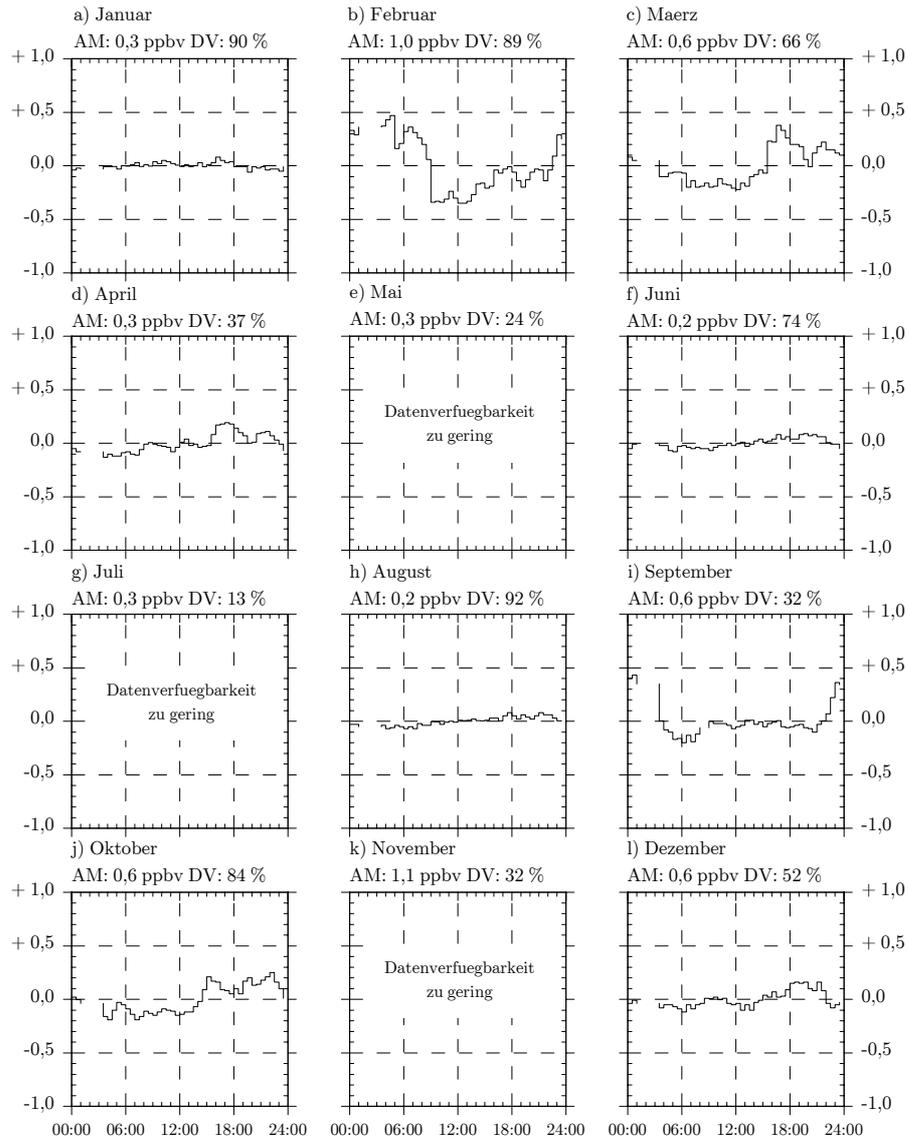


Abb. A.5-7  $\text{NO}_x$  Mittlere Tagesgänge für 1996

Normierter Monats-Tagesgang für  $\text{NO}_x$  im Jahr 1996 als mittlere Abweichung [in ppbv] der Halbstundenwerte vom Tagesmittel.

AM: Arithmetisches Monatsmittel; DV: Datenverfügbarkeit eines Monats, 100% entspricht 1440 bzw. 1488, 1392 Halbstundenwerten (30 bzw. 31 Tage-Monat, Februar).

Tab. A.5-6 NO<sub>x</sub> Korrelationen für 1996

		CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	NO	NO <sub>v</sub>	O <sub>3</sub>	N. Rad.
Januar	rs	0,4	0,4	0,4	0,2	0,6	-0,3	0,3
	N	1335	1289	1126	1337	1286	1305	1325
Februar	rs	0,7	0,6	0,6	0,6	0,9	-0,6	0,4
	N	1237	1070	1154	1238	975	1209	1026
März	rs	0,6	0,6	0,6	0,7	0,7	-0,3	0,2
	N	979	781	939	984	982	984	963
April	rs	0,6	0,2	0,6	0,6	0,6	0,2	0,2
	N	534	396	515	534	534	517	534
Mai	rs	0,2	0,0	0,0	0,2	0,4	-0,1	0,1
	N	357	254	324	357	357	348	338
Juni	rs	0,1	-0,3	0,3	0,1	0,3	-0,2	0,0
	N	1063	864	1008	1064	1055	1039	1007
Juli	rs	0,3	-0,1	0,3	0,2	0,2	-0,1	0,2
	N	199	135	111	199	199	194	186
August	rs	0,3	0,0	0,3	0,1	0,4	-0,1	0,1
	N	1116	1163	691	1361	1360	1330	1347
September	rs	0,6	0,3	-0,3	0,4	0,5	-0,4	0,0
	N	550	540	95	552	475	539	552
Oktober	rs	0,6	0,6	0,5	0,4	0,7	-0,6	0,2
	N	1215	1099	466	1246	215	1218	1243
November	rs	0,5	0,5	0,0	0,5	0,8	-0,6	0,3
	N	449	453	351	454	449	442	447
Dezember	rs	0,4	0,3	0,3	0,1	0,5	-0,2	0,2
	N	759	756	712	775	772	757	773
rs: Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman N: Anzahl der Datensätze								

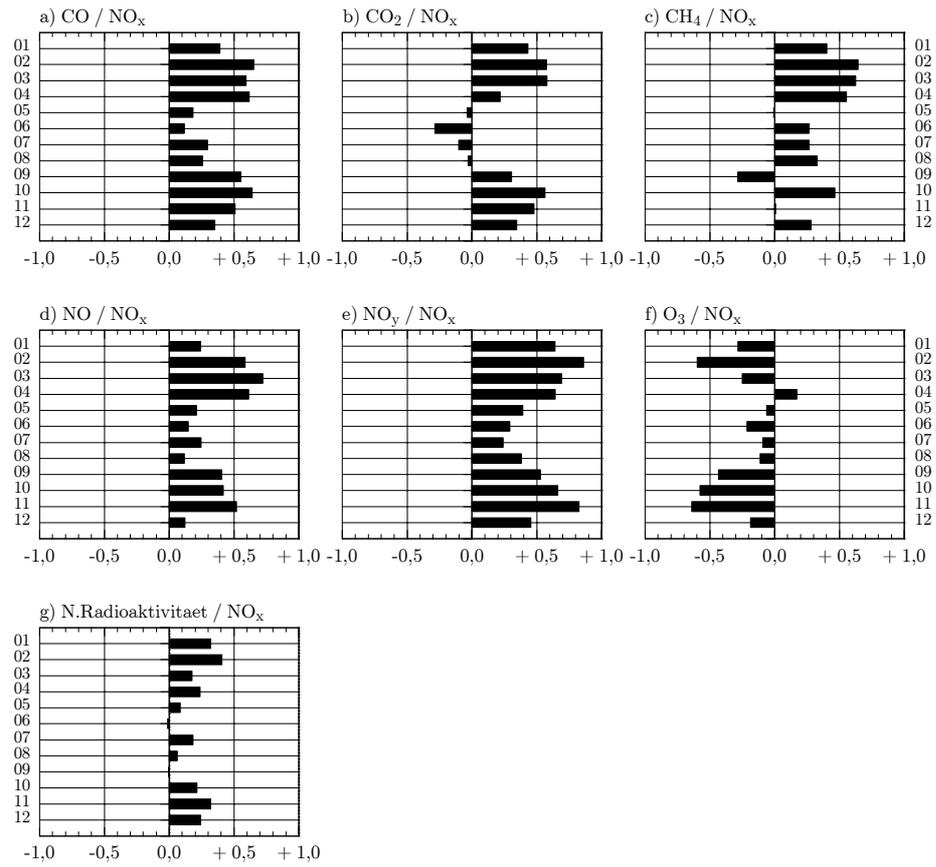
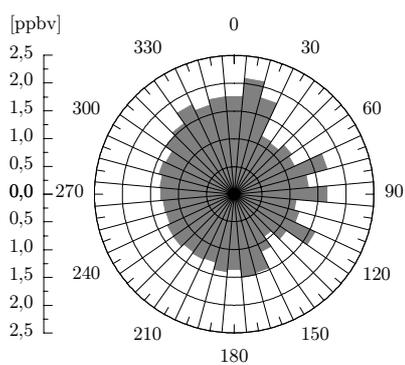


Abb. A.5-8  $\text{NO}_x$  Grafik der Korrelationskoeffizienten für 1996  
Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman

A.5.3 NO<sub>y</sub>Abb. A.5-9 NO<sub>y</sub> Spurengaswindrose für 1996

Mittlere Konzentrationen [ppbv] pro Windrichtungssektor.

Tab. A.5-7 NO<sub>y</sub> Statistik für 1996  
Angaben in [ppbv]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	1,49	0,00	27,69	1,43	14154	80,6
Januar	0,50	0,02	1,94	0,31	1407	94,6
Februar	2,02	0,22	27,69	3,30	1072	77,0
März	1,89	0,00	8,80	1,34	1348	90,6
April	2,05	0,00	12,24	1,38	1292	89,7
Mai	1,57	0,04	8,46	1,16	1196	80,4
Juni	2,05	0,01	6,74	1,00	1296	90,0
Juli	1,25	0,00	3,37	0,70	1352	90,9
August	1,26	0,01	3,05	0,59	1362	91,5
September	1,40	0,00	8,12	1,13	1181	82,0
Oktober	0,49	0,05	2,38	0,46	282	19,0
November	1,40	0,14	11,84	1,41	1036	71,9
Dezember	1,36	0,02	5,58	1,00	1330	89,4

Tab. A.5-8 NO<sub>y</sub> Perzentile für 1996  
Angaben in [ppbv]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	0,23	0,34	0,65	1,14	1,94	2,87	3,73
Januar	0,13	0,16	0,25	0,42	0,70	0,93	1,08
Februar	0,39	0,44	0,63	0,97	1,77	4,44	7,76
März	0,27	0,49	0,91	1,57	2,54	3,54	4,44
April	0,63	0,82	1,10	1,63	2,67	3,80	4,34
Mai	0,43	0,59	0,82	1,20	1,94	3,07	4,10
Juni	0,48	0,78	1,29	2,07	2,58	3,31	3,76
Juli	0,27	0,47	0,75	1,10	1,72	2,25	2,59
August	0,41	0,53	0,80	1,20	1,64	2,08	2,36
September	0,22	0,32	0,61	1,10	1,85	2,97	3,52
Oktober	0,10	0,13	0,20	0,30	0,61	1,03	1,60
November	0,26	0,39	0,61	0,97	1,57	2,82	4,29
Dezember	0,25	0,34	0,58	1,17	1,78	2,64	3,75

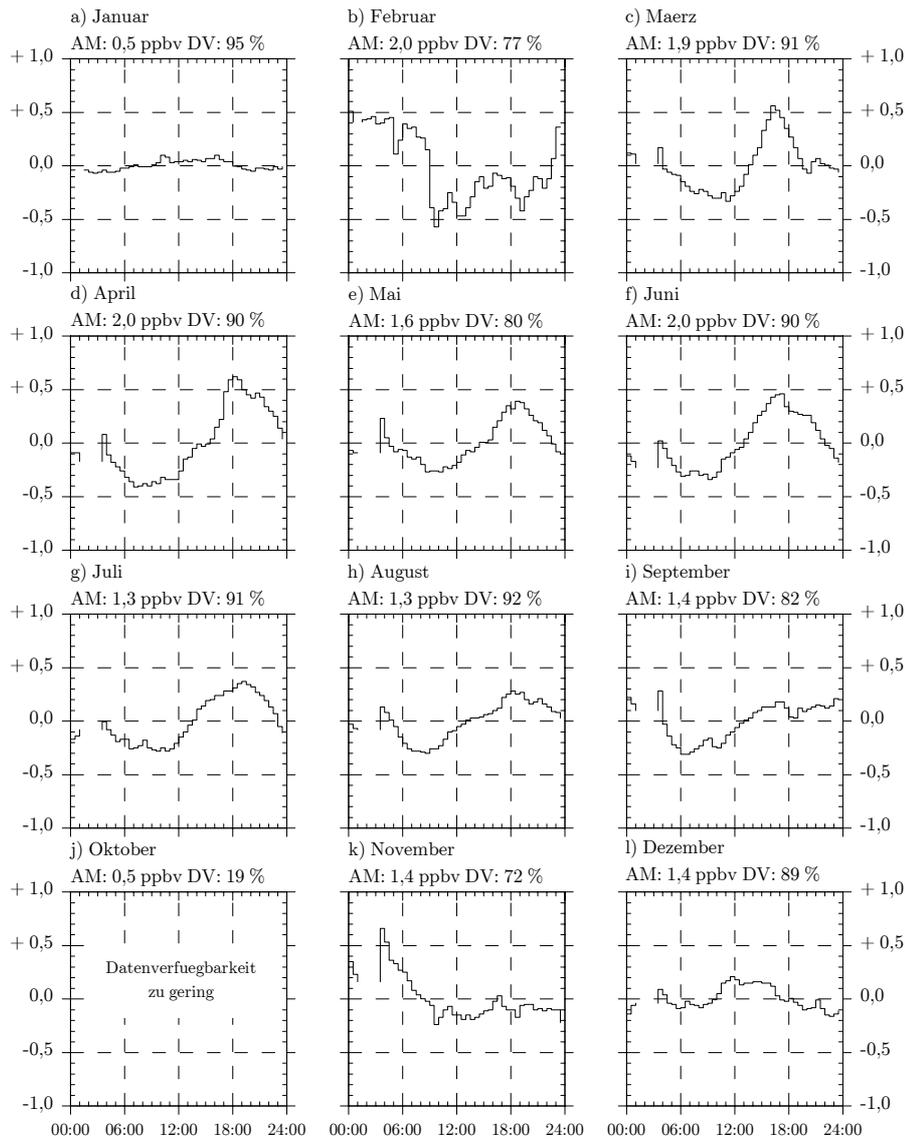


Abb. A.5-10NO<sub>y</sub> Mittlere Tagesgänge für 1996

Normierter Monats-Tagesgang für NO<sub>y</sub> im Jahr 1996 als mittlere Abweichung [ppbv] der Halbstundenwerte vom Tagesmittel.

AM: Arithmetisches Monatsmittel; DV: Datenverfügbarkeit eines Monats, 100% entspricht 1440 bzw. 1488, 1392 Halbstundenwerten (30 bzw. 31 Tage-Monat, Februar).

Tab. A.5-9 NO<sub>y</sub> Korrelationen für 1996

		CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	NO	NO <sub>x</sub>	O <sub>3</sub>	N. Rad.
Januar	rs	0,8	0,8	0,7	0,4	0,6	-0,4	0,7
	N	1407	1360	1194	1407	1286	1407	1395
Februar	rs	0,8	0,8	0,8	0,7	0,9	-0,6	0,7
	N	1071	920	999	1072	975	1072	849
März	rs	0,8	0,8	0,6	0,5	0,7	0,0	0,6
	N	1342	1039	1262	1348	982	1348	1314
April	rs	0,7	0,4	0,6	0,4	0,6	0,6	0,2
	N	1289	896	1182	1292	534	1247	1279
Mai	rs	0,5	-0,3	0,3	0,2	0,4	0,4	0,6
	N	1196	821	1149	1196	357	1169	1163
Juni	rs	0,7	-0,2	0,6	0,0	0,3	0,4	0,5
	N	1288	1096	1205	1296	1055	1266	1232
Juli	rs	0,6	-0,5	0,2	0,1	0,2	0,3	0,3
	N	1352	895	580	1349	199	1321	1339
August	rs	0,2	-0,1	0,1	0,0	0,4	0,2	0,3
	N	1117	1164	691	1360	1360	1331	1348
September	rs	0,3	-0,1	-0,3	0,3	0,5	-0,1	0,1
	N	1173	1122	593	1146	475	1154	1181
Oktober	rs	0,4	0,4	0,4	0,3	0,7	-0,4	0,6
	N	281	270	221	282	215	279	282
November	rs	0,8	0,8	0,6	0,6	0,8	-0,5	0,4
	N	1026	1012	806	1036	449	1012	1027
Dezember	rs	0,5	0,7	0,5	-0,1	0,5	-0,3	0,4
	N	1310	1013	1189	1330	772	1299	940
rs: Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman								
N: Anzahl der Datensätze								

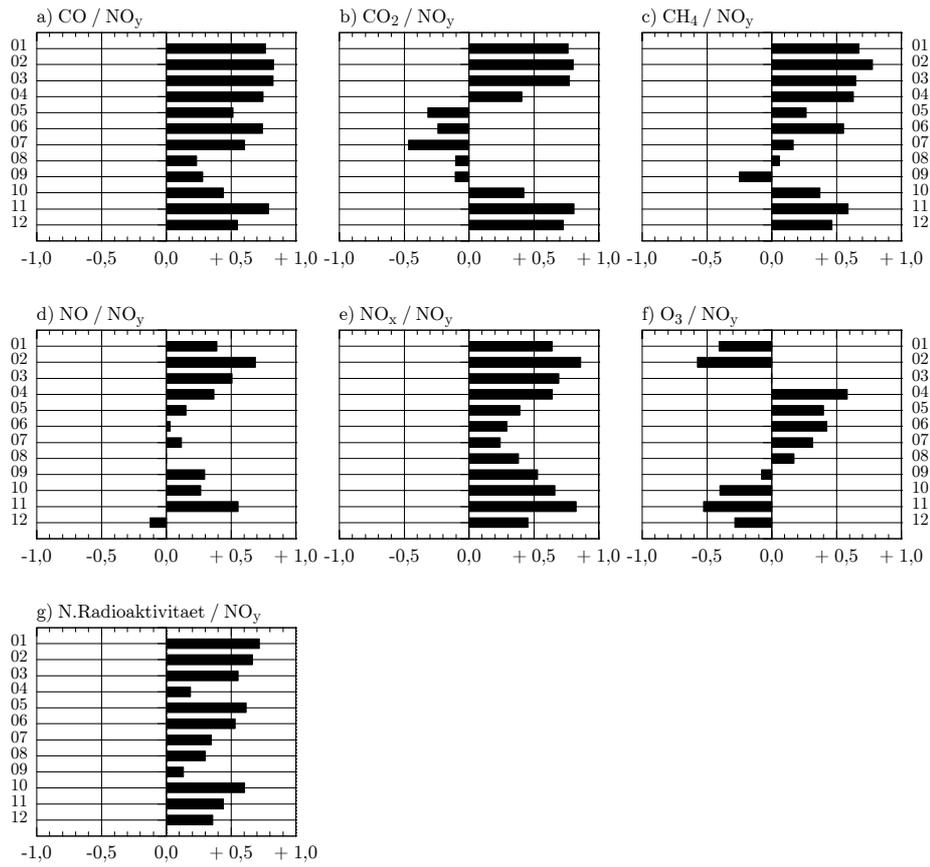


Abb. A.5-11  $\text{NO}_y$  Grafik der Korrelationskoeffizienten für 1996  
Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman



## A.6 Ozon

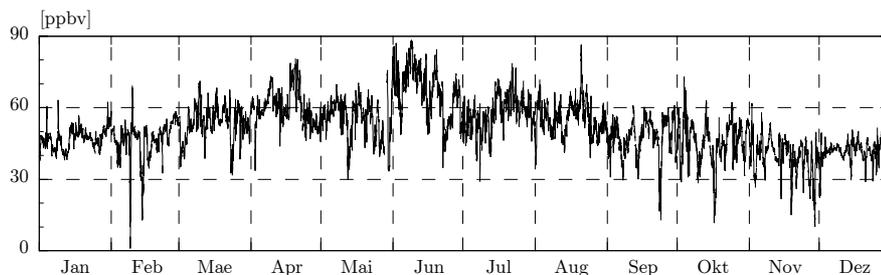


Abb. A.6-1 Ozon Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. A.6-2 Ozon Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

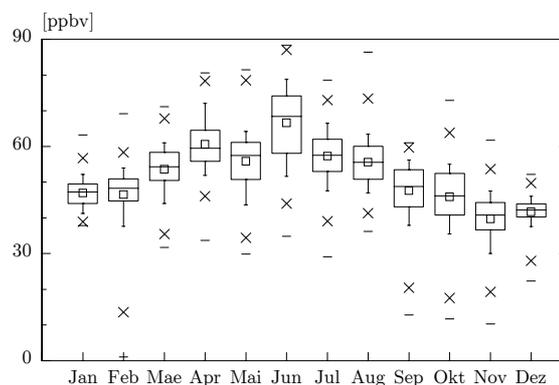
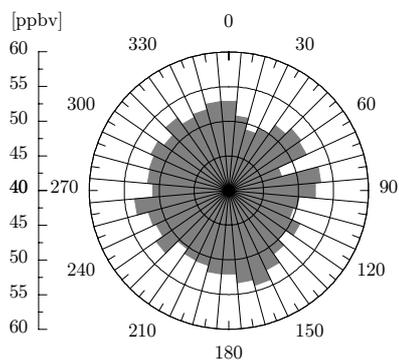


Abb. A.6-3 Ozon Spurengaswindrose für 1996

Mittlere Konzentrationen [ppbv] pro Windrichtungssektor.



Tab. A.6-1 Ozon Statistik für 1996

Angaben in [ppbv]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	51,49	1,09	88,26	10,67	17098	97,3
Januar	47,02	37,87	63,16	4,15	1445	97,1
Februar	46,55	1,09	69,20	8,26	1355	97,3
März	53,60	31,70	71,21	6,75	1476	99,2
April	60,64	33,75	80,62	7,38	1393	96,7
Mai	55,81	29,81	81,51	8,34	1396	93,8
Juni	66,61	34,91	88,26	10,32	1406	97,6
Juli	57,27	29,12	78,56	7,37	1457	97,9
August	55,56	36,19	86,39	6,68	1456	97,8
September	47,57	12,85	61,01	7,76	1410	97,9
Oktober	45,85	11,74	72,91	8,66	1455	97,8
November	39,69	10,27	61,76	7,21	1395	96,9
Dezember	41,73	22,30	52,17	4,00	1454	97,7

Tab. A.6-2 Ozon Perzentile für 1996

Angaben in [ppbv]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	35,91	39,53	44,18	50,93	58,08	65,01	70,72
Januar	40,17	41,22	44,02	47,25	49,52	52,19	53,94
Februar	31,21	37,64	44,70	48,31	50,90	53,99	56,11
März	40,37	44,04	50,43	54,30	58,37	61,06	63,36
April	50,37	51,92	55,86	59,53	64,50	72,04	74,44
Mai	41,08	43,66	50,78	57,43	61,17	64,13	66,81
Juni	48,09	51,60	58,09	68,40	74,14	78,79	81,81
Juli	44,62	47,60	52,97	57,54	61,99	66,56	69,41
August	45,49	46,96	50,86	55,57	60,10	63,50	65,91
September	33,53	37,88	43,09	48,74	53,48	56,17	57,69
Oktober	31,90	35,56	40,77	46,13	52,45	55,01	56,98
November	25,99	30,02	36,60	40,83	44,25	47,49	49,80
Dezember	34,15	37,54	40,21	42,20	43,90	46,05	47,32

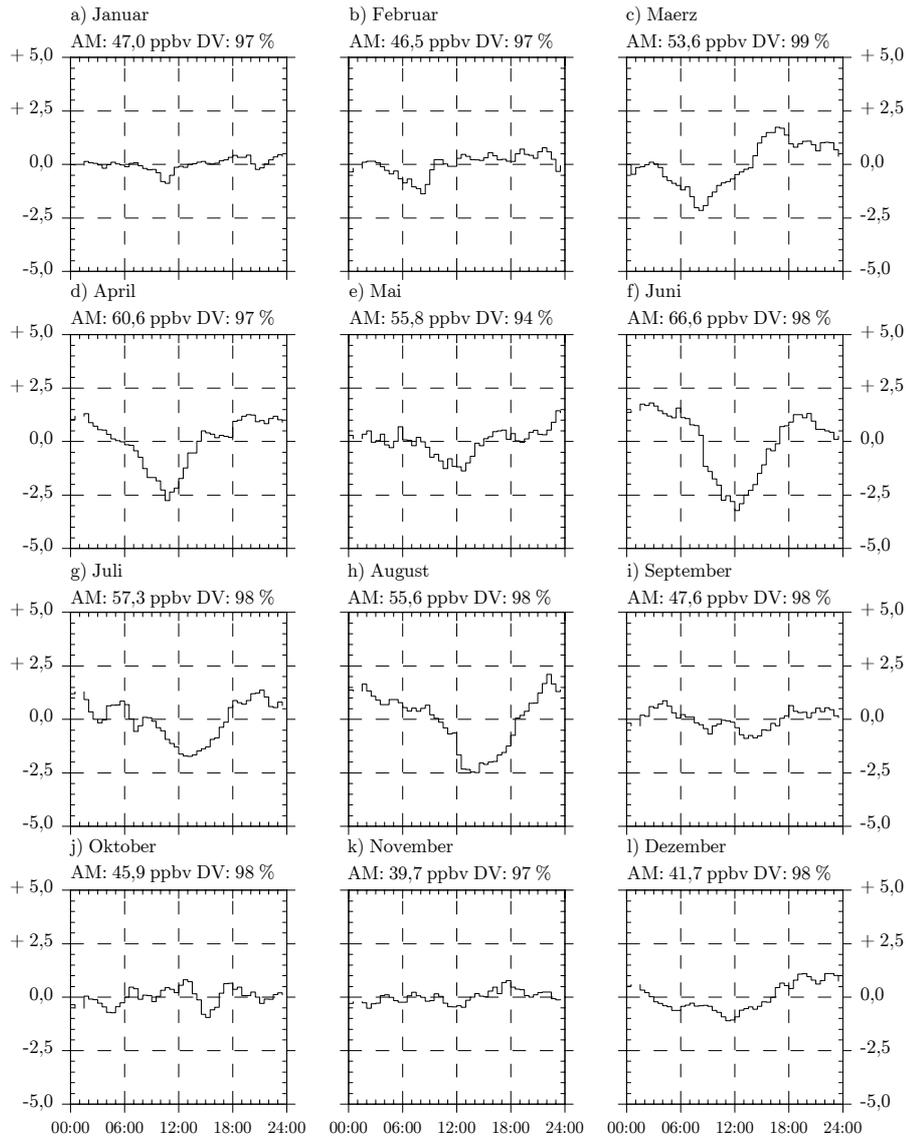


Abb. A.6-4 Ozon Mittlere Tagesgänge für 1996

Normierter Monats-Tagesgang für Ozon im Jahr 1996 als mittlere Abweichung [ppbv] der Halbstundenwerte vom Tagesmittel.

AM: Arithmetisches Monatsmittel; DV: Datenverfügbarkeit eines Monats, 100% entspricht 1440 bzw. 1488, 1392 Halbstundenwerten (30 bzw. 31 Tage-Monat, Februar)

Tab. A.6-3 Ozon Korrelationen für 1996

		CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	NO	NO <sub>x</sub>	NO <sub>y</sub>	N. Rad.
Januar	rs	-0,3	-0,2	-0,3	-0,3	-0,3	-0,4	-0,5
	N	1439	1390	1208	1426	1305	1407	1433
Februar	rs	-0,5	-0,4	-0,6	-0,5	-0,6	-0,6	-0,1
	N	1354	1170	1250	1306	1209	1072	1125
März	rs	0,1	0,0	0,0	-0,3	-0,3	0,0	0,4
	N	1470	1165	1385	1354	984	1348	1441
April	rs	0,4	0,1	0,3	0,2	0,2	0,6	0,2
	N	1390	984	1270	1253	517	1247	1380
Mai	rs	0,4	-0,2	0,1	-0,1	-0,1	0,4	0,6
	N	1295	929	1342	1192	348	1169	1357
Juni	rs	0,4	0,0	-0,1	-0,4	-0,2	0,4	0,6
	N	1397	1182	1305	1276	1039	1266	1342
Juli	rs	0,1	-0,5	-0,2	-0,1	-0,1	0,3	0,4
	N	1456	974	629	1319	194	1321	1443
August	rs	0,2	0,0	0,2	-0,2	-0,1	0,2	0,2
	N	1196	1259	732	1330	1330	1331	1442
September	rs	0,1	0,0	0,1	-0,2	-0,4	-0,1	0,4
	N	1393	1340	649	1200	539	1154	1410
Oktober	rs	-0,4	-0,5	-0,5	-0,1	-0,6	-0,4	-0,2
	N	1380	1270	579	1284	1218	279	1452
November	rs	-0,4	-0,4	-0,2	-0,4	-0,6	-0,5	-0,1
	N	1137	1119	942	1018	442	1012	1386
Dezember	rs	-0,5	-0,5	-0,4	-0,2	-0,2	-0,3	-0,5
	N	1433	1118	1295	1303	757	1299	1036
rs: Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman N: Anzahl der Datensätze								

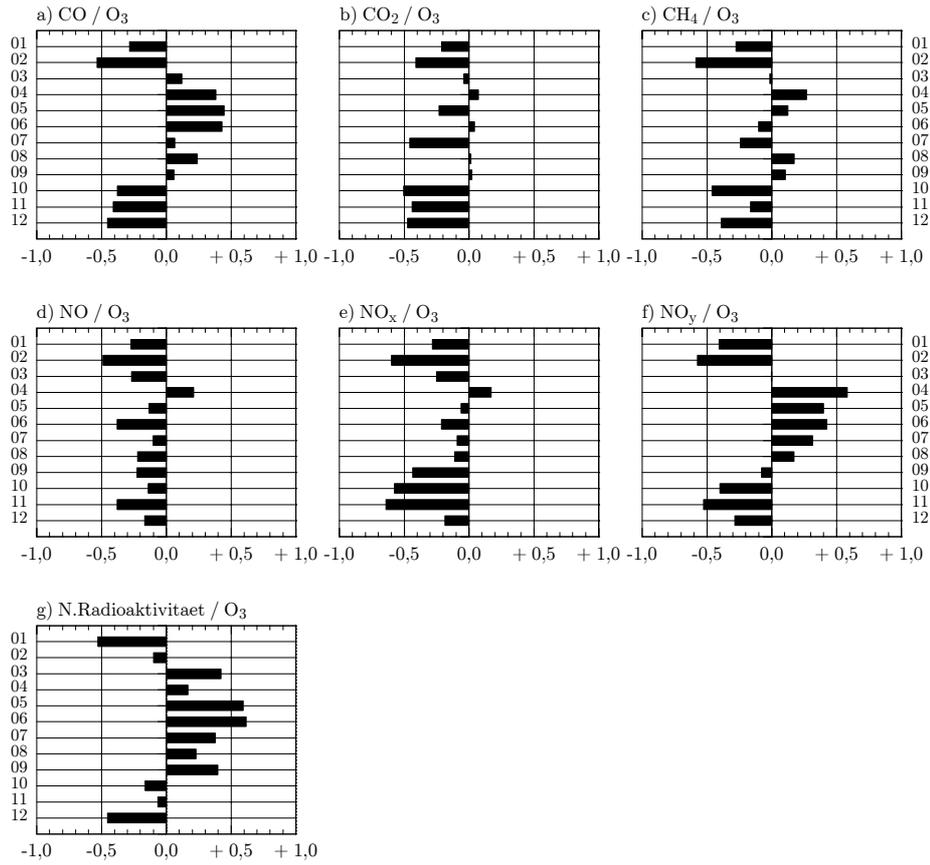


Abb. A.6-5 Ozon Grafik der Korrelationskoeffizienten für 1996  
Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman



## A.7 Natürliche Radioaktivität

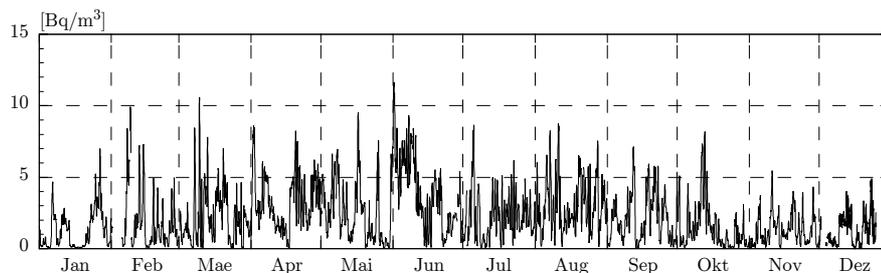


Abb. A.7-1 Nat.Radioaktivität Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. A.7-2 Nat.Radioaktivität Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.

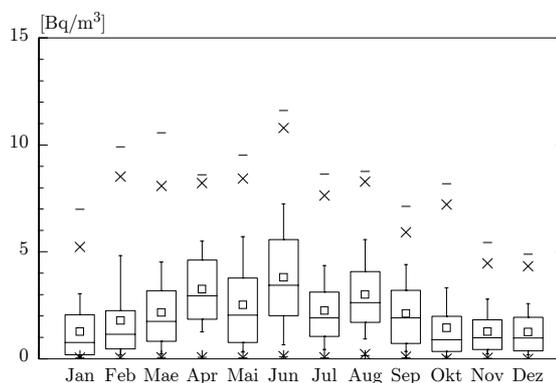
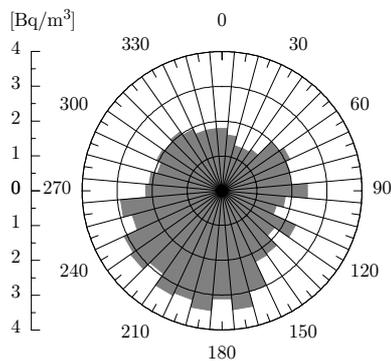


Abb. A.7-3 Nat.Radioaktivität Spurengaswindrose für 1996  
Mittlere Konzentrationen [Bq/m<sup>3</sup>] pro Windrichtungssektor.



Tab. A.7-1 Nat.Radioaktivität Statistik für 1996  
Angaben in [Bq/m<sup>3</sup>]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	2,20	0,00	11,61	1,89	16689	95,0
Januar	1,26	0,05	6,99	1,28	1476	99,2
Februar	1,79	0,02	9,91	1,92	1158	83,2
März	2,17	0,06	10,57	1,80	1441	96,8
April	3,26	0,07	8,60	1,79	1426	99,0
Mai	2,53	0,05	9,52	2,07	1449	97,4
Juni	3,82	0,09	11,61	2,46	1376	95,6
Juli	2,25	0,04	8,64	1,58	1474	99,1
August	3,00	0,15	8,75	1,79	1474	99,1
September	2,12	0,05	7,12	1,58	1440	100,0
Oktober	1,45	0,01	8,18	1,58	1485	99,8
November	1,28	0,03	5,44	1,04	1431	99,4
Dezember	1,25	0,00	4,88	1,00	1059	71,2

Tab. A.7-2 Nat.Radioaktivität Perzentile für 1996  
Angaben in [Bq/m<sup>3</sup>]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	0,13	0,24	0,67	1,74	3,16	4,93	5,94
Januar	0,08	0,10	0,20	0,76	2,06	3,05	3,66
Februar	0,13	0,19	0,46	1,15	2,25	4,82	5,95
März	0,10	0,23	0,82	1,75	3,18	4,53	5,43
April	0,81	1,26	1,85	2,95	4,62	5,48	6,61
Mai	0,18	0,31	0,76	2,04	3,78	5,70	6,51
Juni	0,38	0,66	2,02	3,43	5,57	7,24	7,94
Juli	0,21	0,43	1,04	1,91	3,12	4,36	4,96
August	0,61	0,92	1,70	2,63	4,08	5,57	6,28
September	0,20	0,34	0,71	1,91	3,20	4,41	5,35
Oktober	0,10	0,12	0,34	0,90	1,99	3,30	4,86
November	0,15	0,23	0,43	0,98	1,83	2,79	3,47
Dezember	0,11	0,20	0,38	0,97	1,94	2,59	3,04

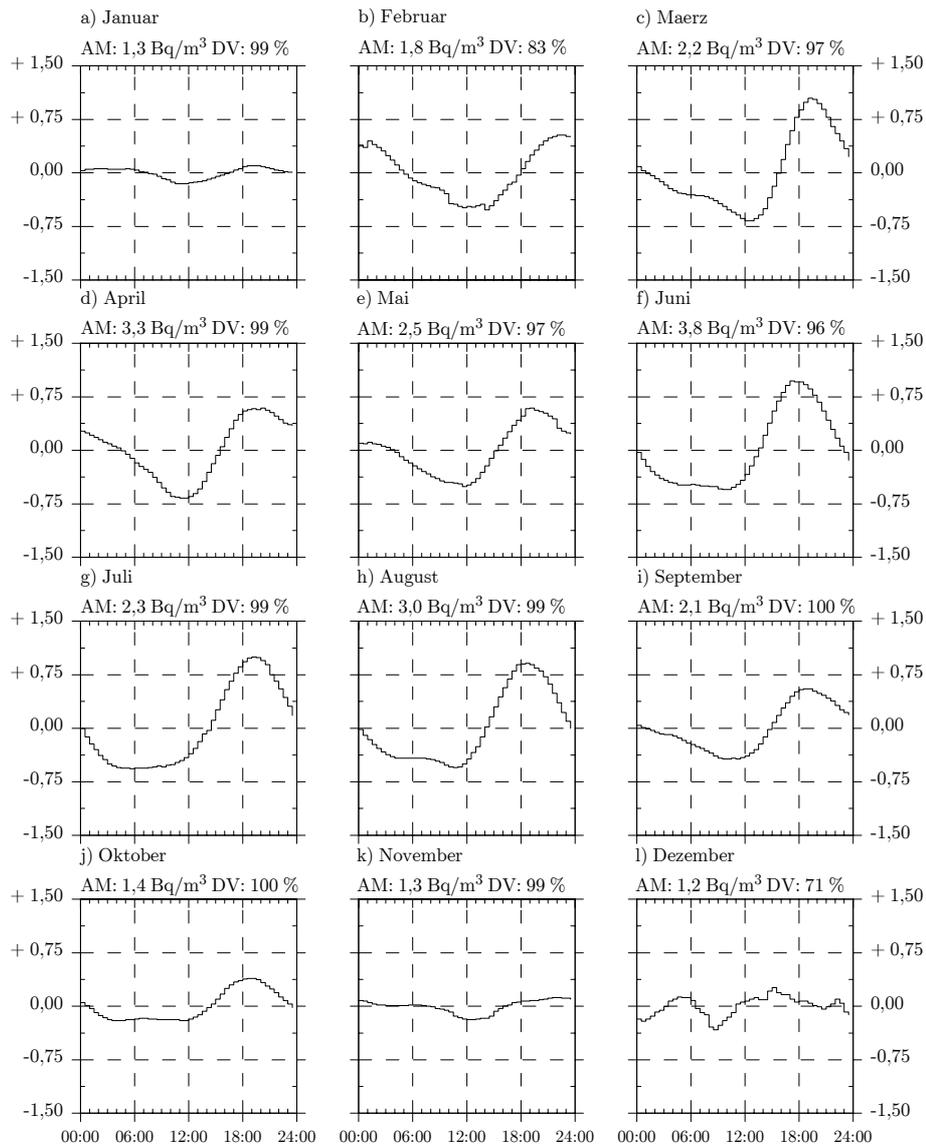


Abb. A.7-4 Nat.Radioaktivität Mittlere Tagesgänge für 1996

Normierter Monats-Tagesgang für Natürliche Radioaktivität im Jahr 1996 als mittlere Abweichung [ $\text{Bq/m}^3$ ] der Halbstundenwerte vom Tagesmittel.

AM: Arithmetisches Monatsmittel; DV: Datenverfügbarkeit eines Monats, 100% entspricht 1440 bzw. 1488, 1392 Halbstundenwerten (30 bzw. 31 Tage-Monat, Februar)

Tab. A.7-3 Nat.Radioaktivität Korrelationen für 1996

		CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	NO	NO <sub>x</sub>	NO <sub>y</sub>	O <sub>3</sub>
Januar	rs	0,6	0,6	0,6	0,1	0,3	0,7	-0,5
	N	1470	1422	1235	1446	1325	1395	1433
Februar	rs	0,6	0,4	0,5	0,2	0,4	0,7	-0,1
	N	1157	1086	1068	1107	1026	849	1125
März	rs	0,6	0,5	0,3	0,0	0,2	0,6	0,4
	N	1435	1142	1358	1320	963	1314	1441
April	rs	0,1	-0,2	0,0	0,1	0,2	0,2	0,2
	N	1423	1009	1314	1285	534	1279	1380
Mai	rs	0,5	-0,3	0,2	-0,2	0,1	0,6	0,6
	N	1292	936	1341	1187	338	1163	1357
Juni	rs	0,7	0,0	0,3	-0,3	0,0	0,5	0,6
	N	1362	1153	1276	1242	1007	1232	1342
Juli	rs	0,2	-0,5	-0,1	-0,1	0,2	0,3	0,4
	N	1473	991	630	1337	186	1339	1443
August	rs	0,3	-0,4	0,0	-0,2	0,1	0,3	0,2
	N	1223	1274	749	1347	1347	1348	1442
September	rs	0,3	-0,2	0,1	-0,1	0,0	0,1	0,4
	N	1423	1370	664	1228	552	1181	1410
Oktober	rs	0,5	0,3	0,3	0,0	0,2	0,6	-0,2
	N	1406	1298	592	1310	1243	282	1452
November	rs	0,3	0,2	-0,1	0,1	0,3	0,4	-0,1
	N	1155	1135	966	1034	447	1027	1386
Dezember	rs	0,6	0,7	0,6	-0,2	0,2	0,4	-0,5
	N	1043	1040	972	943	773	940	1036
rs: Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman N: Anzahl der Datensätze								

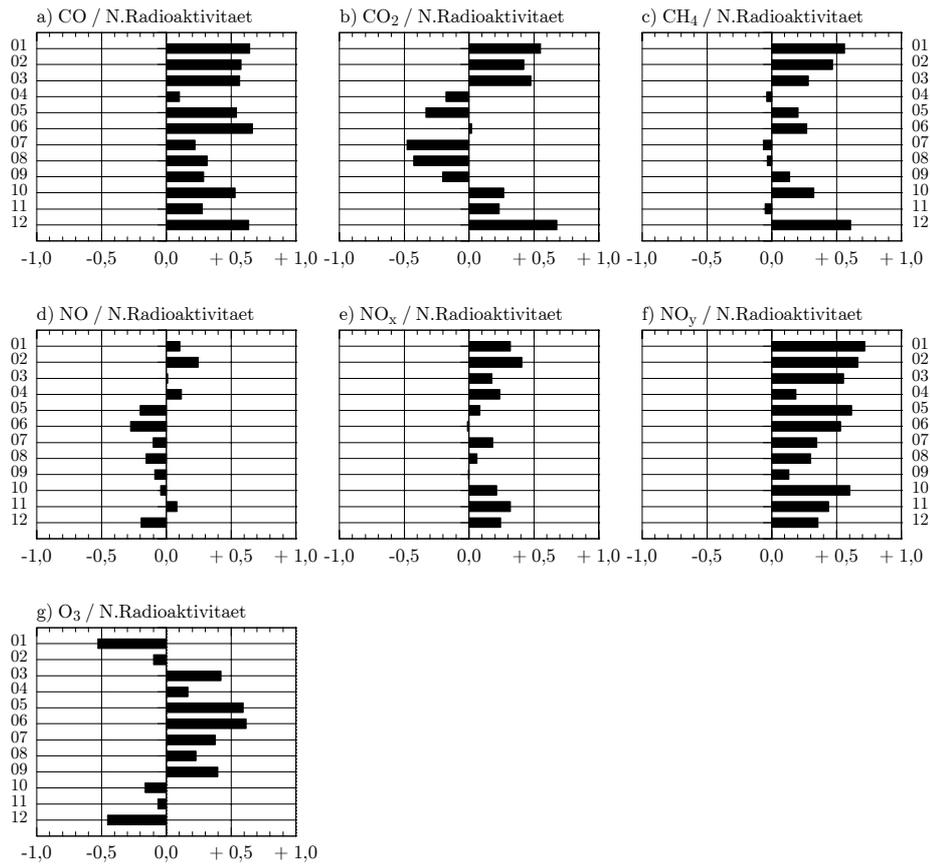


Abb. A.7-5 Nat. Radioaktivität Grafik der Korrelationskoeffizienten für 1996  
Rangkorrelations-Koeffizient nach Spearman



## A.8 Beryllium-7

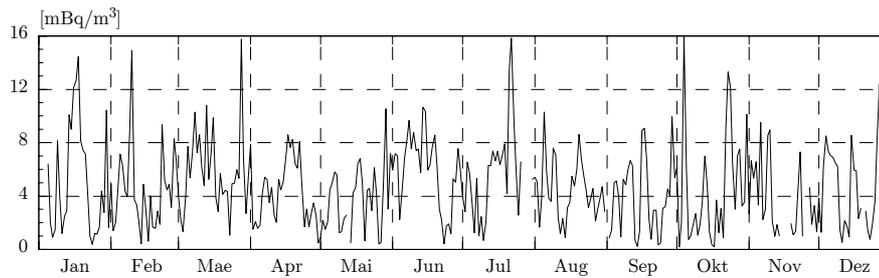
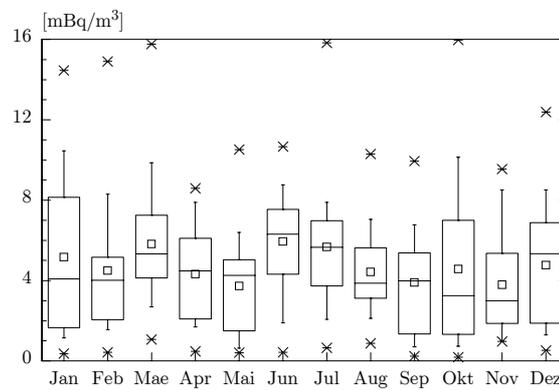


Abb. A.8-1 Beryllium-7 Zeitreihe der Tagesmittelwerte für 1996

Abb. A.8-2 Beryllium-7  
Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Kreuz- mit Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert. Mit der Datenbasis als Tagesmittel für einen Monat entsprechen die minimalen und maximalen Werte dem 1%- bzw. 99%-Perzentil.



Tab. A.8-1 Beryllium-7 Statistik für 1996

Angaben in [mBq/m<sup>3</sup>]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	4,73	0,19	15,97	3,11	349	95,4
Januar	5,16	0,37	14,46	4,22	27	87,1
Februar	4,49	0,43	14,90	3,09	29	100,0
März	5,82	1,07	15,76	3,02	31	100,0
April	4,31	0,47	8,60	2,37	30	100,0
Mai	3,73	0,41	10,52	2,43	30	96,8
Juni	5,95	0,44	10,65	2,75	30	100,0
Juli	5,68	0,66	15,82	3,44	27	87,1
August	4,43	0,88	10,29	2,15	31	100,0
September	3,91	0,24	9,94	2,78	29	96,7
Oktober	4,57	0,19	15,97	4,12	31	100,0
November	3,79	0,97	9,54	2,76	24	80,0
Dezember	4,77	0,52	12,38	3,11	30	96,8

Tab. A.8-2 Beryllium-7 Perzentile für 1996

Angaben in [mBq/m<sup>3</sup>]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	0,71	1,07	2,12	4,46	6,63	8,60	10,30
Januar	0,93	1,10	1,55	4,08	8,13	11,12	12,51
Februar	0,93	1,53	2,06	4,02	5,17	8,41	9,15
März	1,80	2,70	4,09	5,33	7,23	9,86	10,54
April	1,53	1,67	2,20	4,29	5,93	7,90	8,16
Mai	0,51	0,63	1,64	4,23	5,01	6,44	7,01
Juni	1,43	1,89	4,50	6,28	7,54	8,86	10,05
Juli	1,08	1,74	3,28	5,67	6,81	8,44	12,12
August	1,41	2,12	3,07	3,87	5,56	7,05	8,11
September	0,39	0,65	1,34	3,98	5,37	7,19	9,00
Oktober	0,30	0,74	1,29	3,26	6,70	10,13	12,73
November	0,99	1,03	1,73	2,83	5,66	8,15	8,88
Dezember	0,84	1,26	1,95	4,75	6,79	8,51	9,63

## A.9 Meteorologische Größen

### A.9.1 Temperatur

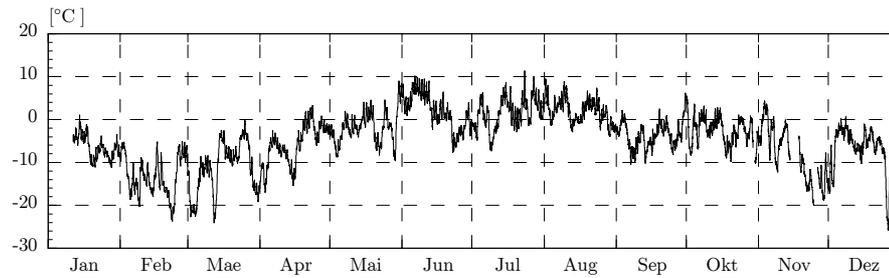
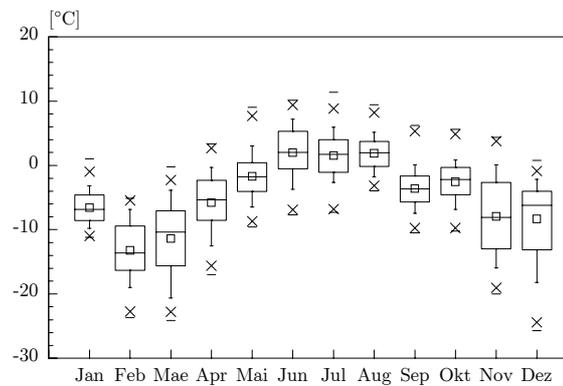


Abb. A.9-1 Temperatur Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. A.9-2 Temperatur  
Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.



Tab. A.9-1 Temperatur Statistik für 1996

Angaben in [°C]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	-4,50	-25,74	11,37	6,56	16739	95,3
Januar	-6,59	-11,17	1,05	2,53	967	65,0
Februar	-13,23	-23,70	-5,10	4,41	1392	100,0
März	-11,36	-24,12	-0,22	5,78	1488	100,0
April	-5,79	-17,00	3,32	4,51	1440	100,0
Mai	-1,71	-9,60	9,05	3,62	1488	100,0
Juni	1,97	-7,68	10,15	4,06	1436	99,7
Juli	1,51	-7,29	11,37	3,46	1488	100,0
August	1,89	-3,95	9,46	2,67	1488	100,0
September	-3,61	-10,49	6,22	3,00	1440	100,0
Oktober	-2,57	-10,24	5,62	3,07	1449	97,4
November	-7,95	-19,98	4,34	6,14	1175	81,6
Dezember	-8,33	-25,74	0,78	6,11	1488	100,0

Tab. A.9-2 Temperatur Perzentile für 1996

Angaben in [°C]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	-16,98	-14,38	-8,08	-3,72	0,02	3,47	5,18
Januar	-10,43	-9,81	-8,57	-6,83	-4,58	-3,17	-2,27
Februar	-20,50	-18,99	-16,29	-13,64	-9,42	-6,85	-6,28
März	-21,67	-20,64	-15,62	-10,40	-7,03	-3,87	-3,25
April	-13,96	-12,52	-8,53	-5,33	-2,31	-0,30	0,97
Mai	-7,71	-6,48	-4,07	-1,77	0,44	3,01	4,47
Juni	-5,17	-3,70	-0,50	2,00	5,33	7,21	8,28
Juli	-4,58	-2,68	-1,06	1,73	3,99	5,97	6,73
August	-2,34	-1,74	-0,18	1,99	3,73	5,16	6,49
September	-8,45	-7,44	-5,68	-3,66	-1,65	0,06	1,11
Oktober	-7,99	-6,83	-4,54	-2,21	-0,30	0,84	1,85
November	-17,43	-15,93	-12,99	-8,08	-2,66	0,07	2,26
Dezember	-19,23	-18,18	-13,12	-6,22	-4,01	-2,14	-1,69

### A.9.2 Relative Feuchte

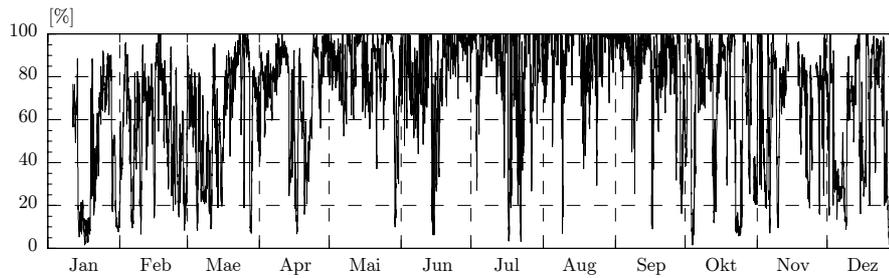
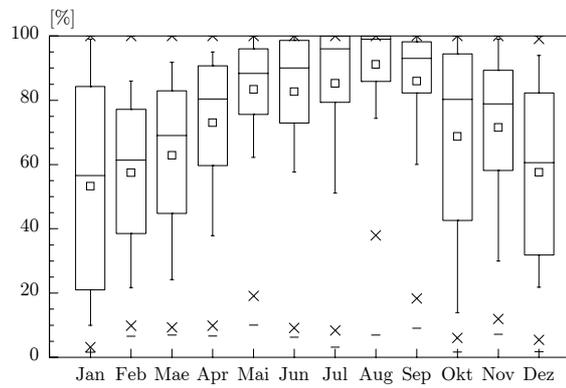


Abb. A.9-3 Relative Feuchte Zeitreihe der Halbstundenwerte für 1996

Abb. A.9-4 Relative Feuchte Boxplots für 1996

Die Boxränder entsprechen dem 25%- bzw. 75%-Perzentil, der Box-Mittelstrich dem Median, die Whisker dem 10%- bzw. 90%-Perzentil. Das Quadrat zeigt Lage des Arithmetischen Mittelwertes, die Strich-Signatur den minimalen bzw. maximalen Wert, die Kreuz-Signatur den 1%- bzw. 99%-Wert.



Tab. A.9-3 Relative Feuchte Statistik für 1996

Angaben in [%]

	Mittelwert	Minimum	Maximum	StAbw	Datensätze (Anzahl, %)	
Jahr 1996	72,48	1,62	100,00	26,78	16722	95,2
Januar	43,21	1,62	91,92	28,89	967	65,0
Februar	57,48	6,56	100,00	23,61	1392	100,0
März	62,84	6,95	100,00	25,16	1488	100,0
April	73,03	6,70	100,00	22,36	1440	100,0
Mai	83,32	10,03	100,00	16,55	1488	100,0
Juni	82,70	6,30	100,00	20,35	1436	99,7
Juli	85,29	3,22	100,00	22,15	1482	99,6
August	91,16	7,02	100,00	13,81	1488	100,0
September	85,95	9,10	100,00	18,60	1440	100,0
Oktober	67,94	1,66	100,00	30,97	1445	97,1
November	67,91	7,16	100,00	24,25	1175	81,6
Dezember	57,35	1,75	100,00	27,74	1481	99,5

Tab. A.9-4 Relative Feuchte Perzentile für 1996

Angaben in [%]

	5%	10%	25%	Median	75%	90%	95%
Jahr 1996	15,67	27,34	57,48	80,73	94,47	100,00	100,00
Januar	6,94	8,65	12,68	44,20	68,69	83,54	87,26
Februar	15,39	21,69	38,51	61,29	77,19	85,96	91,50
März	17,51	24,10	44,78	69,04	83,00	91,83	96,82
April	26,61	37,81	59,63	80,34	90,73	95,00	97,39
Mai	52,87	62,16	75,55	88,35	96,04	100,00	100,00
Juni	34,76	57,66	72,86	90,02	98,59	100,00	100,00
Juli	31,29	51,08	79,51	96,04	100,00	100,00	100,00
August	62,84	74,36	85,85	99,01	100,00	100,00	100,00
September	41,65	60,04	82,31	92,99	98,21	100,00	100,00
Oktober	8,53	13,14	41,90	78,93	93,67	100,00	100,00
November	21,31	27,33	51,61	76,67	86,01	93,32	96,99
Dezember	13,56	21,60	31,57	60,11	82,02	93,80	95,66



## Studium

Ruhr-Universität Bochum

BMBF-Promotions-Stipendium 04/1999 - 10/2002  
Physische Geographie  
Umweltforschungsstation Schneefernerhaus, Zugspitze

Diplom-Geographie 10/1994 - 02/1997  
Schwerpunkt: Klimatologie, Statistik 10/1989 - 07/1993  
Nebenfächer: Verkehrswesen, Kartographie/ Fernerkundung  
Diplomarbeit: Verifikation eines meteorologischen Prognose-  
verfahrens für den Einsatz in Energiemanagementsystemen

Université des Sciences et Technologies de Lille (F)

ERASMUS-Stipendium 10/1993 - 07/1994  
Diplôme d'Etudes supérieures spécialisées (DESS)  
Conception de projets en éco-développement

## Schule

Gymnasium 08/1981 - 05/1989

Grundschule 08/1976 - 07/1980

## Erklärung

Ich erkläre, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig angefertigt und keine anderen als die angegebenen Quellen verwendet habe und dass die Arbeit in dieser oder ähnlichen Form noch bei keiner Fakultät oder anderen Hochschule eingereicht wurde.

Garmisch-Partenkirchen, Oktober 2002

Ilka Kürbis

