





**Integrated Monitoring Serie** 

2002 IM - Rep - 033



# Analyse der Herkunft der gemessenen NO<sub>2</sub>-, SO<sub>2</sub>- und Ozonkonzentration an der Hintergrundmessstelle Zöbelboden mittels Trajektorien-Verweilzeitstatistik für 2000

von

ZENTRALANSTALT FÜR METEOROLOGIE UND GEODYNAMIK Abteilung für Umweltmeteorologie

> August Kaiser Helfried Scheifinger Matthias Langer

UMWELTBUNDESAMT

Wolfgang Spangl Michael Mirtl

Integrated Monitoring Serie: IM - Rep – 033 Wien, Dezember 2002 *Projektleitung:* Michael Mirtl, Wolfgang Spangl *Editorische Bearbeitung:* Maria-Theresia Grabner *Redaktion:* Michael Mirtl, Maria-Theresia Grabner

*Autor:* August Kaiser, Helfried Scheifinger, Matthias Langer, Wolfgang Spangl, Michael Mirtl

## Impressum

Medieninhaber und Herausgeber: Umweltbundesamt, 1090 Wien, Spittelauer Lände 5

Eigenvervielfältigung

© Umweltbundesamt, Wien, 2002 Alle Rechte vorbehalten ISBN 3-85457-711-7



## Wesen und Ziele des Integrated Monitoring

Unter der Schirmherrschaft der Europäischen Wirtschaftskommission (UNECE) arbeiten 31 Staaten in der Genfer Luftreinhaltekonvention an der Verminderung der grenzüberschreitenden Luftverschmutzung in Europa. Eines der internationalen Programme im Rahmen der Genfer Luftreinhaltekonvention ist das Programm zur "Umfassenden Beobachtung der Wirkung von Luftverschmutzung auf Ökosysteme", kurz "Integrated Monitoring".

Das Integrated Monitoring dient der Untersuchung der langfristigen ökosystemaren Wirkung jener Luftverschmutzung, die nicht aus lokalen Quellen, sondern aus dem großräumigen Hintergrund an Schadstoffen herrührt.

Die Langzeit-Umweltbeobachtungsgebiete des Integrated Monitoring repräsentieren wichtige Naturräume des jeweiligen Staates. Die Projektgebiete von ca. 1 km<sup>2</sup> Größe sind gut abgrenzbare Kleinökosysteme und bilden ein europaweites Netzwerk. Mit standardisierten Methoden werden

- die Stoffeinträge (Schad- und Nährstoffe) durch Luft und Niederschläge gemessen,
- die Wirkungen <u>auf</u> das Ökosystem und das Verhalten dieser Stoffe <u>im</u> Ökosystem umfassend festgestellt
- die langfristige Enwicklung der Ökosystem-Segmente untersucht und
- die Austräge durch Oberflächenwässer und ins Grundwasser erhoben.

Wegen der Komplexität und kleinräumigen Variabilität der meisten Ökosysteme sind zu diesem Zweck eine Vielzahl von Untersuchungen mit sehr spezifischem räumlichen und zeitlichen Design durchzuführen.

Vom Integrated Monitoring und seinen langfristigen Ergebnissen ist zu erwarten:

• das Erkennen von Ursachen-Wirkungs-Beziehungen in Ökosystemen in Hintergrundgebieten

• Beiträge zur Ableitung von tolerierbaren Konzentrationen und Frachten von Luftschadstoffen (wirkungsbezogenen Grenzwerten) unter dem Aspekt der Nachhaltigkeit in Hintergrundgebieten

• zusätzliche Daten zur Überprüfung der ausreichenden Wirksamkeit von Abkommen zur Reduktion von Schadstoffbelastungen durch weiträumige Verfrachtung

• und Beiträge zur Überprüfung der Ergebnisse europaweiter Modelle der Luftqualität und der Belastbarkeit von Gebieten mit Luftverschmutzung

## **Integrated Monitoring in Österreich**

Das Umweltbundesamt ist mit der Verwirklichung des Integrated Monitoring in Österreich betraut. Österreich hat besonderes Interesse an der Teilnahme an dem UNECE-Programm, weil es u.a. durch den Staueffekt der Alpen sehr hohen Schadstoffeinträgen aus dem Ausland ausgesetzt ist. Zwischen 1992 und 2000 erfolgten im Reichraminger Hintergebirge am "Zöbelboden" die Einrichtungsarbeiten und Grundinventuren für den ersten österreichischen Wald-Standort zur umfassenden Langzeit-Kontrolle.

In der folgenden Abbildung ist die Lage des Integrated Monitoring Standortes Zöbelboden in Österreich ersichtlich.



Die wichtigsten Kriterien zur Auswahl des Zöbelboden waren:

- Ausreichende Entfernung zu lokalen Quellen von Luftverschmutzung ("Hintergrund-Waldstandort")
- Lage in den Nördlichen Kalkalpen (Ursprungsgebiet eines wesentlichen Teiles der Trinkwasserreserven Österreichs, im österreichweiten Vergleich schlechter Waldzustand)
- Vorhandensein typischer Wälder für diesen Naturraum (steile Schutzwälder mit naturnahem Buchenmischwald und Wirtschaftswaldbereich mit dominierender Fichte auf einem Hochplateau)

## Die Bedeutung der Trajektorien-Analysen im Integrated Monitoring

Im Gesamt-Kontext des Integrated Monitoring besteht eine der zentralen Fragestellungen in der Abklärung der Herkünfte luftbürtiger Schadstoffe. Als Beitrag zur Beantwortung dieser Frage für den Zöbelboden zielt diese Studie darauf ab, anhand von Trajektorien-Verweilzeitstatistiken die relevanten Herkunftsgebiete für Ozon, Stickstoffdioxid und Schwefeldioxid im Jahr 2000 zu analysieren.

# INHALTSVERZEICHNIS

KURZFASSUNG2
ABSTRACT
1. EINLEITUNG
2. LAGE DER MESSSTELLE ZÖBELBODEN4
3. METHODIK
4. ERGEBNISSE
4.1 Die gemessenen Immissionszeitreihen7
4.2 Trajektorien-Verweilzeitstatistiken
4.2.1 Ozon
4.2.2 Stickstoffdioxid
4.2.3 Schwefeldioxid
4.3 Einzelfallstudien – feinauflösende Trajektorien 12
4.3.1 Die markanteste Schwefeldioxidepisode (23. und 24. Jänner 2000) 12
4.3.2 Kurze Stickstoffdioxidspitzen im Herbst (17. bis 31. Oktober 2000)16
5. DISKUSSION, BEWERTUNG UND ZUSAMMENFASSUNG DER ERGEBNISSE 21
6. LITERATUR
7. ABBILDUNGEN
8. ANHANG 69
8.1. Erläuterungen

## KURZFASSUNG

Der vom Umweltbundesamt betriebene Standort "Zöbelboden" im oberösterreichischen Randkalkalpin (Reichraminger Hintergebirge) ist der österreichische Beitrag zum International Cooperative Programme "Integrated Monitoring of Air Pollution Effects on Ecosystems" der Genfer Luftreinhaltekonvention innerhalb der UNECE. Die dabei vorgesehenen Messungen und Untersuchungen dienen u. a. der Überprüfung der Wirksamkeit von Maßnahmen zur Schadstoffreduktion und von bereits unterzeichneten Abkommen, z. B. der Protokolle für die Reduktion der Emissionen von SO<sub>2</sub> und NO<sub>2</sub> sowie des Göteborg-Protokolls aus dem Jahre 2000. In diesem Zusammenhang besteht eine der zentralen Fragestellungen des Integrated Monitoring in der Abklärung der Herkünfte luftbürtiger Schadstoffe. Als Beitrag zur Beantwortung dieser Frage für den Zöbelboden zielt diese Studie darauf ab, anhand von Trajektorien-Verweilzeitstatistiken die relevanten Herkunftsgebiete für Ozon, Stickstoffdioxid und Schwefeldioxid zu analysieren. Auswertezeitraum ist das Jahr 2000. Ähnliche Methoden haben sich in zahlreichen Studien für derartige Zwecke als geeignet erwiesen (z.B. Stohl, 1996 und 1998, Stohl und Trickl, 1999, Kaiser, 2000 und Kaiser et al., 2001).

Die Statistiken und ergänzenden Episodenstudien zeigen, dass stickstoffdioxidreiche Luftmassen hauptsächlich aus dem Alpenvorland nördlich und westlich der Messstelle stammen. Für Schwefeldioxid finden sich deutliche Hinweise für Ferntransport: Während der Wintermonate (Jänner, Februar und Dezember 2000) aus der Tschechischen Republik und Südpolen, während der Sommermonate (Juni bis August 2000) hingegen aus Slowenien, vermutlich als Folge des weitgehenden Ausbleibens von Luftströmungen aus Ost und Nordost. Die dann gemessenen Konzentrationen sind aber bei weitem nicht so hoch wie im Winter. Deutliche jahreszeitliche Unterschiede zeigen die Statistiken für Ozon: Die verschmutzten, bodennahen Luftmassen sind im Winter relativ ozonarm, ozonreiche Luft stammt im Winter nahezu ausnahmslos aus Höhen oberhalb von 1000 m aus typischen Föhngebieten am Nordrand der Alpen. Im Sommer sind bodennahe stickstoffdioxidreiche Luftmassen aus Nordwest dagegen relativ ozonreich und es gibt Hinweise für Ozonferntransport aus der Po-Ebene.

#### ABSTRACT

The measurement site "Zöbelboden", situated in the Northern Limestone Alps (Reichraminger Hintergebirge, Upper Austria) is Austria's contribution to the International Cooperative Programme "Integrated Monitoring of Air Pollution Effects on Ecosystems" of the Convention on Long Range Transboundary Air Pollution (CLRTAP, UNECE). The measurements, carried out by the Austrian Environmental Agency, serve to surveille the

effects of emission reduction measures, e.g. the Protocol for the Reduction of the Emission of SO<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> and the Göteborg-Protocol from 2000. In this context, the origin of polluted air masses is one of the central questions of the Integrated Monitoring. In this paper, the origin of ozone, NO<sub>2</sub> and SO<sub>2</sub> is studied by trajectory residence time analysis. There is a wealth of experience with trajectories and their application from various studies mostly dealing with air pollution problems. Trajectories have been successfully applied to define air pollution source regions and calculate the dispersion of pollutants (e. g., Stohl, 1996 and 1998, Stohl and Trickl, 1999, Kaiser, 2000 and Kaiser et al., 2001). The trajectory residence time analysis is based on the immission concentration data of the year 2000.

The trajectory statitics and additional case studies show that the pre-alpine region in the north and in the west of the station is the main source of relatively NO<sub>2</sub>-rich air masses. SO<sub>2</sub> is also transported from more remote regions like the Czech Republic and the southern Poland during the winter months (January, February and December 2000) and from Slovenia during the summer months (June to August 2000) due to the absence of air flow from easterly and northeasterly directions during summer 2000. However, the SO<sub>2</sub> concentration measured during the summer months is much lower than during winter. The statistics for ozone strongly depend on the season: During the winter months, the polluted boundary layer air masses are relatively ozone-poor and relatively ozone-rich air originates from heights above 1000 m from typical Foehn regions north of the Alps. During summer, the NO<sub>2</sub>-rich air masses from northwest prove to be ozone-rich and there is ozone long range transport from the Po basin.

#### **1. EINLEITUNG**

Der vom Umweltbundesamt betriebene Standort "Zöbelboden" im oberösterreichischen Randkalkalpin (Reichraminger Hintergebirge) ist der österreichische Beitrag zum International Cooperative Programme "Integrated Monitoring of Air Pollution Effects on Ecosystems" der Genfer Luftreinhaltekonvention innerhalb der UN-ECE.

Die Langzeit-Umweltbeobachtungsgebiete des Integrated Monitoring repräsentieren wichtige Naturräume des jeweiligen Staates. In einem europaweiten Netzwerk werden Ökosysteme mit Methoden standardisierten untersucht, um den augenblicklichen Zustand, die Belastungssituation sowie die Stoff-Flüsse und deren Veränderungen zu dokumentieren. Dabei werden die Stoffeinträge (Schad- und Nährstoffe) durch Luft und Niederschläge gemessen, die Wirkungen und das Verhalten dieser Stoffe im Ökosystem umfassend festgestellt und die Austräge durch Oberflächenwässer und ins Grundwasser erhoben. Die Ergebnisse dienen u. a. der Überprüfung der Wirksamkeit von Maßnahmen zur Schadstoffreduktion und von bereits unterzeichneten Abkommen, z. B. der Protokolle für die Reduktion der Emissionen von SO<sub>2</sub> und NO<sub>2</sub> sowie des Göteborg-Protokolls aus dem Jahre 2000 (Emissionsobergrenzen für SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub> und VOC für die integrierte Behandlung von

bodennahem Ozon, Versauerung und Eutrophierung). Sie werden als Grundlage für weitere internationale Protokolle zur europaweiten Reduktion von Schadstoffbelastungen durch weiträumige Schadstoffverfrachtung verwendet.

In diesem Zusammenhang besteht eine der zentralen Fragestellungen des Integrated Monitoring in der Abklärung der Herkünfte luftbürtiger Schadstoffe. Als Beitrag zur Beantwortung dieser Frage für den Zöbelboden zielt diese Studie darauf ab, anhand von Trajektorienverweilzeitstatistiken die relevanten Herkunftsgebiete für Ozon, Stickstoffdioxid und Schwefeldioxid zu analysieren. Ähnliche Methoden haben sich in zahlreichen Studien für derartige Zwecke als geeignet erwiesen (z.B. Stohl, 1996 und 1998, Stohl und Trickl, 1999, Kaiser, 2000 und Kaiser et al., 2001). Auswertezeitraum ist das Jahr 2000.

## 2. LAGE DER MESSSTELLE ZÖBELBODEN

Die Messstelle befindet sich im Reichraminger Hintergebirge, ca. 42 km südlich von Linz etwa in der Mitte zwischen dem Steyrtal im Westen und dem Ennstal im Osten. Sie liegt in einer Seehöhe von 899 m. Das Gelände in der näheren Umgebung der Station ist stark strukturiert und steigt im Süden und Südwesten zum Sengsengebirge (Höhe des Rückens zwischen 1800 m und 1963 m) und zum Größtenberg (Seehöhe 1724 m) hin an. Nach Norden werden Gipfelhöhen bis nahe 1300 m erreicht, dann fällt das Gelände zum Alpenvorland ab.

## **3. METHODIK**

Die Trajektorien wurden mit dem Modell FLEXTRA berechnet (Stohl, 1999). Für die statistischen Untersuchungen für das gesamte Jahr 2000 wurden die Windfelder des Modells des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF, 1995) zugrunde gelegt. Die horizontale Auflösung der hier verwendeten Windfelder beträgt 1° x 1° (dem entspricht auf der geografischen Breite von Österreich rund 75 km in Ost-West-Richtung und rund 111 km in Nord-Süd-Richtung). Das Modell hat insgesamt 60 Höhenschichten bis zum oberen Modellrand (0 hPa) bzw. 12 Schichten bis 850 hPa (rund 1500 m). Die Windfelder liegen alle 6 Stunden vor, für die Zwischentermine wurden die Windfelder interpoliert.

Die Trajektorien wurden alle 3 Stunden über der Station Zöbelboden in einer Höhe von 100 m über jener Höhe, die dem Zöbelboden im Modell entspricht (807 m), freigesetzt und –96 Stunden rückwärts verfolgt ("Rückwärtstrajektorien"). Man erhält somit den Weg, den die Luft innerhalb eines Zeitraums von 4 Tagen zurückgelegt hat, bevor sie am Zöbelboden ankommt. Die Trajektorien sind dreidimensional, d.h. die Vertikalkomponente des Windes ist berücksichtigt. Eine Beurteilung der Genauigkeit von Trajektorien ist nur durch Vergleich mit geeigneten Tracern möglich und daher schwierig. Grundsätzlich wird die Unsicherheit von Trajektorien mit rund 20% ihrer Länge angegeben (Stohl, 1998). Bei Windsprüngen nahe dem Ankunftspunkt der Trajektorie (z.B. bei Kaltfrontpassagen) kann der Fehler jedoch auch sehr groß sein. Der Unsicherheit der Trajektorien wird hier insofern Rechnung getragen, als nicht nur Trajektorien für den Aufpunkt selbst (Zöbelboden), sondern fünf zusätzliche "Unsicherheitstrajektorien", gleichverteilt auf einem Umkreis mit 0,5° Radius um den Aufpunkt, berechnet wurden.

Für die Verweilzeitstatistiken wird ein geografisches Gitter mit 0,5° x 0,5° Auflösung (37,5 km in Ost-West- bzw. 55,5 km in Nord-Süd-Richtung) und Höhenintervallen von 250 m verwendet. Für jede Trajektorie wird die Zeit (in Stunden), die sie in den jeweiligen Gitterelementen verbringt, ermittelt. Dividiert man die Stundensumme jedes Gitterelements durch die Gesamtzahl an Stunden, so erhält man eine relative Verweilzeitstatistik, die angibt, wie groß der Anteil an Stunden ist, während dessen sich die Luft in einem bestimmten Gebiet aufhält, bevor sie die Station erreicht.

Die Verweilzeitstatistiken wurden in Abhängigkeit von der gemessenen Immissionskonzentration ermittelt. Die Trajektorienankunftstermine sind alle 3 Stunden, folglich wurden auch die Immissionskonzentrationen auf dreistündige Mittelwerte umgerechnet. Da Schadstoffzeitreihen einen Jahresgang aufweisen, würde die Verwendung der Rohdatenreihen zu einer jahreszeitlichen Gewichtung der statistischen Analyse führen. Hohe bzw. niedrige Werte treten dann eben zu bestimmten Jahreszeiten auf, wobei sich die Ergebnisse der Trajektorienstatistik ebenfalls nur auf bestimmte Jahreszeiten beziehen würden. Möchte man Analyseergebnisse, die alle Jahreszeiten etwa gleich berücksichtigen, muss der Jahresgang entfernt werden. Der einfachste Ansatz besteht darin, beispielsweise langjährige monatliche Mittelwerte oder langjährige gleitende Mittelwerte zu berechnen, die dann von der aktuellen Zeitreihe abgezogen werden. In diesem Fall stehen Zeitreihen nur über einen Zeitraum von einem Jahr zur Verfügung, so dass ein anderer Weg, die Messreihen vom Jahresgang zu bereinigen, gesucht werden musste. Es wurden zwei unterschiedliche Methoden angewandt:

 Anhand einer Gauß´schen Tiefpassfilterung wurden gleitende Mittelwerte der Immissionskonzentration berechnet (Mittelungszeitraum: 3 Monate) und von den Messwerten abgezogen. Überdurchschnittliche Konzentrationswerte erhalten so ein positives, unterdurchschnittliche Werte ein negatives Vorzeichen, siehe dazu z.B. Abbildungen 3 und 4 am Beispiel Ozon. Für jede Trajektorie wurden die Verweilzeiten mit der Abweichung der aktuellen Immissionskonzentration vom Durchschnittswert gewichtet. Nach Aufsummieren der gewichteten Verweilzeiten aller Trajektorien aus einem gewünschten Auswertezeitraum werden die Verweilzeiten jedes Gitterelements durch die *Totalsumme der Absolutbeträge der Verweilzeiten aus dem gesamten Untersuchungsgebiet* dividiert. Man erhält so eine mit der Immissionskonzentration gewichtete relative Verweilzeitstatistik.

Alle Trajektorien konvergieren an der Messstelle: Sie repräsentieren jene Luft, die an der Messstelle ankommt - zu den Ankunftsterminen muss sich die Luft also immer an der Messstelle aufhalten. Die beste Abdeckung des Untersuchungsgebiets durch Trajektorien und daher auch die längsten gewichteten Verweilzeiten (Summe über den gesamten Auswertezeitraum) treten daher immer im Umkreis der Stationen auf. Das hier verwendete Verfahren beinhaltet die Konvergenz der Trajektorien und gibt somit Aufschluss über die *Strömungsverhältnisse*, mit denen relativ belastete oder unbelastete Luftmassen zur Messstelle geführt werden. Mögliche Emissionsgebiete in größerer Entfernung von den Messstellen lassen sich mit dieser Methode jedoch nicht mit hinreichender Genauigkeit eingrenzen.

Verweilzeitstatistiken wurden jeweils nur für jene Fälle berechnet, in denen das 75. Perzentil der monatsweise ermittelte Dreistundenmittelwerte der Immissionskonzentration überschritten bzw. das 25. Perzentil unterschritten wird. Setzt man *Gitterelement für Gitterelement* die beiden Statistiken zueinander in Beziehung, so erhält man Auskunft, um wie viel länger sich die Luft über einem bestimmten Gebiet aufgehalten hat, wenn z.B. die Immissionskonzentration "hoch" war (> 75. Perzentil) im Vergleich zu Situationen mit "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil). Dieses Verfahren ist unabhängig von der Konvergenz der Trajektorien im Nahbereich der Stationen und ermöglicht daher ein Auffinden auch entfernt gelegener potentieller Emissionsquellen.

Auf die Vor- und Nachteile der beiden Methoden wird in Abschnitt 4.2 näher eingegangen.

Ergänzend zu den auf den ECMWF-Windfeldern beruhenden Trajektorien wurden für zwei ausgewählte Episoden zudem räumlich und zeitlich hochaufgelöste Rückwärtstrajektorien (Ankunftstermine: alle halben Stunden) berechnet: In einem dreistufigen Nestingverfahren wurden die ECMWF Windfelder mit dem Penn State/NCAR mesoscaligen nichthydrostatischen meteorologischen Modell MM5 (Grell et al., 1994) bis auf eine horizontale Gitterdistanz von 3 km x 3 km und einstündige Zeitschritte heruntergerechnet. Diese Trajektorien sollten kleinräumige und kurzzeitige Windänderungen, sowie den Einfluss der Topographie besser erfassen und sollen eine qualitative Beurteilung der großräumigen Trajektorien ermöglichen.

#### 4. ERGEBNISSE

#### 4.1 Die gemessenen Immissionszeitreihen

Die Abbildungen 3, 9 und 15 geben einen Überblick über die Ozon-, Stickstoffdioxid- und Schwefeldioxidkonzentration (dreistündige Mittelwerte) am Zöbelboden für das Jahr 2000. Die Ozonkonzentration (Abbildung 3) zeigt bis zum Juni einen dem Jahresgang entsprechenden Anstieg; im Juli werden relativ niedrige Werte gemessen. Ursache ist der Witterungsverlauf im Jahr 2000: Nach den sehr warmen Monaten Februar bis Juni ist es im Juli insgesamt, vor allem aber um die Monatsmitte deutlich zu kalt; besonders in Westösterreich und im nördlichen Oberösterreich werden überdurchschnittlich hohe Niederschlagsmengen gemessen. Angaben über die für die photochemische Ozonbildung maßgebliche Sonnenscheindauer bzw. Bewölkung liegen leider nicht vor.

Nach einem Anstieg im August geht die Ozonkonzentration im weiteren jahreszeitbedingt wieder zurück, wobei ab September immer wieder besonders niedrige Werte auffallen.

Die Stickoxidkonzentration (Abbildung 9) zeigt einen schwachen Jahresgang mit höheren Konzentrationen während der Wintermonate und niedrigeren Werten im Sommer; besonders auffällig sind hohe Konzentrationsspitzen im Winter, vor allem im November und Dezember.

Bemerkenswert ist die Schwefeldioxid-Zeitreihe (Abbildung 15). Bis zum Juni treten immer wieder recht markante Konzentrationsspitzen auf, danach fehlen derart hohe Werte, sogar während der Wintermonate November und Dezember.

Weitere Details über das Verhalten der Immissionszeitreihen (Halbstundenmittelwerte) können den Abbildungen 1 und 2 entnommen werden. Hier wurden die Monate Jänner (als typischer Wintermonat) und August (für den Sommer) ausgewählt. Im Jänner (Abb. 1) ist ein Anstieg der NO<sub>2</sub>-Konzentration mit einem Rückgang der Ozonkonzentration verbunden. Die SO<sub>2</sub>-Konzentration kann gleichzeitig mit NO<sub>2</sub> ansteigen (15./16. und 23./24. Jänner), kann aber auch niedrig bleiben (3./4. und 12. Jänner). Im Sommer (Abb. 2) hingegen sind die NO<sub>2</sub>- und Ozonzeitreihen nahezu parallel, NO<sub>2</sub>-Anstieg ist im allgemeinen mit Ozonanstieg verbunden (besonders eindrucksvoll zu Monatsbeginn und –ende). Dennoch gibt es auch im Sommer Situationen, in denen NO<sub>2</sub> ansteigt und Ozon markant zurückgeht (22./23. August). Die SO<sub>2</sub>-Konzentration ist im Sommer generell sehr niedrig.

Negative Korrelation zwischen Ozon und  $NO_2$  im Winter wurde auch für andere Hintergrundstationen gefunden (z. B. Kaiser, 2000) und ist auf Ozonabbau in der Grundschicht und geringe photochemische Ozonproduktion zurückzuführen. Die positive Korrelation von  $NO_2$  und Ozon im Sommer ist ein Hinweis für photochemische Ozonproduktion.

#### 4.2 Trajektorien-Verweilzeitstatistiken

Die folgenden Abschnitte enthalten für jede Komponente grafische Darstellungen der Gauß'schen Tiefpassfilterung der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte (Abbildungen 3 und 4 für Ozon, 9 und 10 für Stichstoffdioxid und 15 und 16 für Schwefeldioxid). Es wurden mehrere Filterparameter getestet (siehe Abbildung 3), im weiteren wurde ein dreimonatiger gleitender Mittelwert (Periode 501) mit dreifacher Standardabweichung verwendet. Die Abweichungen der aktuellen dreistündigen Immissionskonzentration zur Gauß'schen Tiefpassfilterung (Gauß'scher Hochpass) sind die Basis für die Gewichtung der Trajektorien-Verweilzeiten. Überdurchschnittliche Konzentrationen erhalten ein positives, unterdurchschnittliche ein negatives Vorzeichen. Die Ergebnisse der Trajektorien-Verweilzeitstatistiken sind sowohl als Landkarten als auch als Vertikalquerschnitte dargestellt. Je blauer die Einfärbung, desto länger hält sich umso schadstoffärmere Luft (Immissionsmessung am Zöbelboden) im entsprechenden Gebiet (bzw. in der entsprechenden Höhe) auf, bevor sie den Zöbelboden erreicht; je roter die Einfärbung, desto länger umso schadstoffreichere Luft.

Diese Methode hat den Vorteil, dass alle Trajektorien berücksichtigt werden und weite Teile Europas gut mit Trajektorien abgedeckt sind. Sie ermöglicht für den Nahbereich der Messstelle eine gute Trennung von Regionen, aus denen über- oder unterdurchschnittlich mit Schadstoffen belastete Luftmassen antransportiert werden. Da die Häufigkeit der Luftströmungen mit in die Statistik eingeht und mit zunehmender Entfernung von der Station die Herkunft der Luft aus immer unterschiedlicheren Gebieten erfolgen kann, müssen die gewichteten Verweilzeiten mit zunehmender Entfernung zur Messstelle abnehmen. Entfernte Schadstoffquellgebiete können mit dieser Methode daher nur ungenau erfasst werden. Zudem ist eine quantitative Beurteilung der Ergebnisse schwierig, weil hier ein Produkt aus Verweilzeit und Immissionskonzentration dargestellt ist.

Im Anhang sind daher auch Statistiken zusammengestellt, wie sie sich aus dem Verhältnis der Verweilzeiten für "hohe" Immissionskonzentration (> 75. Perzentil der dreistündigen Mittelwerte der Immissionskonzentration) zu jener für "niedrige" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil)

$$\frac{VZ_r 75\% P}{VZ_r 25\% P} * 100$$

ergeben.  $VZ_r$  ist die relative Verweilzeit in einer Gitterzelle unter der Bedingung, dass die Ozonkonzentration größer als das 75. Perzentil bzw. kleiner als das 25. Perzentil ist. Der Vorteil dieser Methode ist, dass daraus unmittelbar abgelesen werden kann, um wie viel länger sich Luft z.B. bei "hoher" Immissionskonzentration, d.h. > 75. Perzentil, in einem bestimmten Gebiet aufgehalten hat im Vergleich zu Luft bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil). Die Nachteile dieser Methode liegen darin, dass nur 50% aller Trajektorien verwendet werden und gelegentlich Lücken in der Abdeckung des Untersuchungsgebiets auftreten; vor allem darf der Nenner nicht beliebig klein, jedenfalls nicht gleich Null werden. Folglich kann in solchen Fällen z.B. trotz eines bedeutenden Antransports von Schadstoffen, ausgedrückt durch  $VZ_r75\%P$ , eine Identifikation unmöglich gemacht werden. Um derartige Situationen zu vermeiden oder beurteilen zu können, sind im Anhang zudem auch die räumlichen Darstellungen für beide Perzentil – Trajektorienstatistiken enthalten.

Für beide Methoden werden sowohl die Trajektorien für den Aufpunkt (= Zöbelboden), als auch die Unsicherheitstrajektorien zugrunde gelegt.

Grundsätzlich ist wichtig, festzuhalten, dass eine Trajektorie alleine keine Information enthält, wo am Weg der Luft zur Messstelle der Schadstoffeintrag stattgefunden hat. Die Auswahl der Trajektorie nach der Höhe der gemessenen Immissionskonzentration bzw. ihre Gewichtung mit der Konzentration bezieht sich immer auf den gesamten Trajektorienzug in seiner ganzen Länge. Berücksichtigt man die Verweilzeit der Trajektorie, so erhält man einen ersten, groben Hinweis über einen möglichen Schadstoffeintrag, weil man annehmen kann, dass die Luft vor allem die Eigenschaften aus jenem Gebiet annimmt, wo sie sich lange aufhält. Verweilzeitstatistiken über einen längeren Zeitraum "verfeinern" diese Information, da die Trajektorien im allgemeinen mit zunehmender Entfernung vom Ankunftspunkt "auffächern" und so Gebiete mit häufigen und langen Verweilzeiten stärker hervortreten. Dennoch gibt es z.T. klimatologisch bedingte Umstände, die eine räumliche Eingrenzung von möglichen Emissionsgebieten erschweren, etwa dann, wenn häufig Luftströmungen aus demselben Richtungssektor mit annähernd gleicher Geschwindigkeit über räumlich große Gebiete kommen (vgl. dazu z.B. Abbildung 13: Hier führen Nordwestströmungen bei hoher Stickstoffdioxidkonzentration zu einer Zone mit hohen Verweilzeiten, die sich unrealistisch weit bis in die Nordsee hinaus erstreckt).

#### 4.2.1 Ozon

Grundsätzlich erweisen sich Luftmassen, die aus großen Höhen aus dem Bereich der Alpen zum Zöbelboden absinken, als ozonreich (Abbildungen 5 bis 8). Besonders im Winter (Monate November bis Februar, Abb. 5) spielen Leeeffekte und Föhn für hohe Ozonkonzentrationen eine bedeutende Rolle (Seibert et al., 2000, Baumann et al., 2001): Die Statistiken zeigen deutliches Absinken und hohe Verweilzeiten unmittelbar am Alpennordrand (Nordtirol bis Salzburg), also in typischen Föhngebieten. Schon im Frühjahr (Monate März bis Mai, Abb. 6) tritt zudem ein Gebiet nordöstlich der Messstelle als mögliche Quelle erhöhter Ozonkonzentration hervor. Im Sommer (Juni bis August, Abb. 7) stammt ozonreiche Luft generell aus dem Nahbereich der Station, das Alpenvorland nordwestlich der Station und die Po-Ebene sind als mögliche Ozonquellen zu erkennen. Der Vertikalquerschnitt zeigt, dass im Sommer neben absinkenden Luftmassen auch bodennahe Luftmassen und Luftmassen aus rund 1000 m Höhe im allgemeinen ozonreich sind. Die Vertikalverteilung zeigt somit eindeutig die Bedeutung der regionalen photochemischen Ozonproduktion für die während der Sommermonate am Zöbelboden gemessene Ozonkonzentration.

Relativ ozonarme Luft hingegen erreicht den Zöbelboden außerhalb der Sommermonate aus bodennahen Luftschichten vor allem aus dem Alpenvorland nordwestlich der Station.

Die Statistik für den Herbst (Monate September bis November, Abbildung 8) weist – im Unterschied zu allen anderen Jahreszeiten – das Gebiet südöstlich der Messstelle als Quelle relativ ozonarmer Luft aus; die Vertikalverteilung der Trajektorien vermittelt ein eher unsystematisches Bild. Wie aus Abbildung 3 ersichtlich ist, traten in allen Herbstmonaten markante kurzzeitige Konzentrationsspitzen auf. Möglicherweise spielten dabei kleinräumige Prozesse, die von den großräumigen Trajektorien nicht hinreichend genau erfasst werden können, eine wichtige Rolle, siehe dazu auch Abschnitt 4.3.2).

Aus den Abbildungen A.2 bis A.5 im Anhang kann direkt abgelesen werden, um wie viel länger sich z.B. ozonreiche Luft in den relevanten Gebieten aufgehalten hat als ozonarme Luft, bevor sie den Zöbelboden erreicht. Im wesentlichen decken sich die potentiellen Ozonquellgebiete, wie sie anhand der beiden Methoden ermittelt wurden, recht gut; gewisse Unterschiede sind auf den Umstand zurückzuführen, dass bei der im Anhang verwendeten Methode eher Extremsituationen verglichen werden, während bei der Gauß'schen Tiefpassfilterung alle Fälle berücksichtigt sind. Während der Frühjahrs- und Sommermonate tritt hier besonders die östliche Po-Ebene als mögliche Ozonquelle hervor: Die Luft kommt dann bei hoher Ozonkonzentration mehr als 8 mal so häufig aus diesem Gebiet als bei niedriger Ozonkonzentration.

## 4.2.2 Stickstoffdioxid

Relativ hohe Stickstoffdioxidkonzentration wird am Zöbelboden generell bei Luftmassen aus bodennahen Schichten aus dem Alpenvorland, hauptsächlich aus Gebieten nordwestlich der Station gemessen (Abbildungen 11 bis 14). Besonders im Sommer (Abbildung 13) ist der Antransport stickstoffdioxidreicher Luft auf bodennahe Luftschichten aus einem relativ engen Sektor aus Nordwest begrenzt.

Ähnlich wie für Ozon zeigen die Statistiken für Herbst (Abbildung 14) ein teilweise von den übrigen Jahreszeiten abweichendes Verhalten mit einem relativ hohen Anteil von Südströmungen und z.T. absinkenden Luftmassen bei hoher Stickstoffdioxidkonzentration am Zöbelboden. Auch hier sei für eine quantitative Beurteilung der Strömungsunterschiede bei hoher und niedriger Stickstoffdioxidkonzentration auf den Anhang verwiesen (Abbildungen A.7 bis A.10). Hier tritt im Winter und Frühjahr auch das Alpenvorland östlich vom Zöbelboden bis in den Raum Wien als mögliche Stickstoffdioxidquelle hervor. In den Vertikalschnitten fehlt z.T. der untere Höhenbereich: Hohe Stickstoffdioxidkonzentration kommt hier nahezu ausschließlich aus bodennahen Luftschichten, niedrige Konzentration praktisch nie, sodass sich das Verhältnis nicht bestimmen lässt.

#### 4.2.3 Schwefeldioxid

Vor allem während der Wintermonate, weniger deutlich auch noch im Frühjahr erweisen sich Gebiete im Nordwesten (westliche Tschechische Republik) und im Nordosten (Tschechische Republik bis Südpolen) als potentielle Quellen schwefeldioxidreicher Luftmassen (Abbildungen 17 und 18), wobei der Antransport der belasteten Luftmassen im Winter vor allem in bodennahen Schichten, im Frühjahr jedoch auch aus größerer Höhe (ca. 2500 m) erfolgt. Es sind dies jene Monate, in denen immer wieder markante Konzentrationsspitzen auftraten (vgl. dazu Abbildung 15).

Schon im Frühjahr (Abbildung 18), besonders aber im Sommer (Abbildung 19) zeichnet sich im Bereich Slowenien eine markante potentielle Schwefeldioxidquelle ab. Als möglicher Verursacher kommt das Kraftwerk Sostanje in Frage. Schwefeldioxidreiche Luftmassen aus dem Bereich Slowenien müssten die Alpen überqueren, um auf direktem Weg die Station Zöbelboden erreichen zu können. Das häufige Absinken der Trajektorien (Abbildung 19) beweist, dass bei solchen Situationen häufig Hochdruckeinfluss geherrscht hat. Gerade am Südrand der Alpen sollte die dann im Sommer wirksame thermische Turbulenz, unterstützt durch die Hangwindzirkulation, durchaus in der Lage sein, bodennah emittierte Schadstoffe in eine Höhe von rund 3000 m zu transportieren (vgl. dazu Prevot et al., 1998, und Carnuth et al., 2000). Der "Schwanz" großer Verweilzeiten in rund 3000 m bei hoher Schwefeldioxidkonzentration am Zöbelboden reicht bis in eine Entfernung von rund 1500 km. Dies muss jedoch nicht heißen, dass das Schwefeldioxid in dieser Entfernung eingebracht wurde, sondern ist vielmehr ein Hinweis, dass die in dieser Höhe befindlichen Luftmassen meist nur geringe Vertikalbewegungen ausführen, bevor sie unter Hochdruckeinfluss absinken. Daneben erreicht schwefeldioxidreiche Luft auch aus rund 1300 m Höhe die Station. Zu beachten ist, dass die dann gemessenen Konzentrationen jedoch bei weitem nicht jene Spitzenwerte wie in der ersten Jahreshälfte erreichen.

Auch Abbildung 20 (Herbst-Situation) weist Slowenien und absinkende Luftmassen als mögliche Quelle schwefeldioxidreicher Luft aus. Besonders auffällig ist jedoch das völlige Fehlen von Strömungen aus dem Nordsektor; schon während der Sommermonate zeigt die Verweilzeitstatistik zahlreiche Lücken in einem weiten Sektor nördlich und nordöstlich vom Zöbelboden. Offensichtlich werden stark belastete Luftmassen im wesentlichen aus Nord bis Nordost antransportiert; das seltene Auftreten entsprechender Strömungen im Sommer bzw. das völlige Ausbleiben von Nordströmungen im Herbst könnte die Ursache für das Fehlen entsprechender Konzentrationsspitzen während der zweiten Jahreshälfte sein. Aufgrund der ungewöhnlich hohen Temperaturen in den Monaten Oktober bis Dezember mögen zudem die Schwefeldioxidemissionen niedriger als in Normaljahren gewesen sein.

Für eine quantitative Beurteilung der Strömungsunterschiede bei hoher im Vergleich zu niedriger Schwefeldioxidkonzentration sei wieder auf den Anhang (Abbildung A.12 bis A.15) verwiesen.

## 4.3 Einzelfallstudien – feinauflösende Trajektorien

In diesem Abschnitt werden ausgewählte Episoden anhand zusätzlicher meteorologischer Messreihen und zeitlich und räumlich hochaufgelöster Trajektorien genauer untersucht. Ziel ist ein besseres Verständnis jener meteorologischen Prozesse, die zu Transport von schadstoffreichen Luftmassen zum Zöbelboden führen; insbesonders soll die Rolle von thermisch bedingten Vertikaltransporten (hervorgerufen durch thermische Turbulenz und lokale Windsysteme) untersucht werden. Diese Prozesse sind in den Trajektorien nicht enthalten. Anhand von Vergleichen der großräumigen, auf den ECMWF-Feldern beruhenden Trajektorien mit räumlich und zeitlich hochaufgelösten Trajektorien wird untersucht, ob die in den Verweilzeitstatistiken verwendeten großräumigen Trajektorien die Strömungsverhältnisse im Umfeld der Messstelle hinreichend genau erfassen.

## 4.3.1 Die markanteste Schwefeldioxidepisode (23. und 24. Jänner 2000)

Während der Nacht von 23. auf 24. Jänner 2000 wird mit 29  $\mu$ g/m<sup>3</sup> die höchste Schwefeldioxidkonzentration des Jahres 2000 gemessen. Die Stickstoffdioxidkonzentration steigt ebenfalls stark an und die Ozonkonzentration geht zurück. Die Konzentrationsverläufe (Halbstundenmittelwerte) von Schwefeldioxid und Stickstoffdioxid sind in den Abbildungen 21a und b grafisch dargestellt und – als Grundlage für die Trajektorienanalysen – nach der Höhe der Konzentration eingefärbt.

Die Wetterlage ist gekennzeichnet durch ein Tiefdruckgebiet, das am 22. Jänner noch über Dänemark liegt und sich rasch in den Mittelmeerraum verlagert. Am 23. Jänner, 6 UTC, liegt das Zentrum des Tiefs über der Adria; zum 24. Jänner verlagert es sich weiter nach Südosten und erstreckt sich um 6 UTC von Brindisi bis zum Schwarzen Meer. Im Zuge der Verlagerung des Tiefdruckgebiets setzt Zustrom kalter Luftmassen aus Nord ein. Der Wind weht am Zöbelboden beide Tage hindurch nahezu konstant aus Nordwest (Abbildung 22), ebenso am Feuerkogel an den Beobachtungsterminen (alle 6 Stunden, ohne Abbildung). Aus der Windrichtung am Zöbelboden lässt sich kein Hinweis für den Verlauf der Immissionskonzentration erkennen. Die frei anströmbare Messstelle Schoberstein ist leider ausgefallen. Ein erstes Windgeschwindigkeitsmaximum am 23. Jänner um 11 Uhr ist mit Stickstoffdioxidrückgang (und mit Ozonanstieg) verbunden. Das zweite Windgeschwindigkeitsmaximum um 16 Uhr fällt mit dem Stickstoffdioxidmaximum zusammen.

Wesentlich deutlicher als mit dem Wind ist der Zusammenhang der Immissionskonzentration mit der vertikalen Temperaturschichtung: Am Zöbelboden und in höheren Lagen (Feuerkogel) sinkt die Temperatur am 23. 1. schon seit Mitternacht langsam, aber kontinuierlich, während sie im Alpenvorland (Wels/Schleißheim) noch bis etwa 14 Uhr steigt (Abbildung 23). Von 14 auf 14:30 Uhr, etwa gleichzeitig zum Temperaturmaximum in Wels, wird am Zöbelboden ein kleiner Temperatursprung gemessen. Mit diesem eher unspektakulären Temperaturrückgang beginnen die Schwefelund die Stickstoffdioxidkonzentration markant zu steigen. Offensichtlich bewirkt das Zusammenspiel aus der relativ hohen Temperatur in tieferen Lagen (in Wels wird nahezu gleichzeitig das Temperaturmaximum erreicht) und dem Temperaturrückgang am Zöbelboden eine hinreichende Labilisierung der vertikalen Temperaturschichtung, die ausreicht, dass schadstoffreiche Luft aus dem Alpenvorland den Zöbelboden erreichen kann. Mit einem zweiten, markanten Temperaturrückgang am Zöbelboden von 15:30 auf 16 Uhr wird das Stickstoffdioxidkonzentration und ein Maximum der erstes Maximum der Schwefeldioxidkonzentration erreicht. In dieser Phase führen offensichtlich ähnliche Emissionsgebiete zum Konzentrationsanstieg für beide Komponenten.

Im weiteren verhalten sich die beiden Komponenten jedoch unterschiedlich: Während die Stickstoffdioxidkonzentration nun kontinuierlich sinkt, steigt die Schwefeldioxidkonzentration erneut und erreicht ihr Hauptmaximum erst um Mitternacht zum 24. Jänner. Das abweichende Verhalten der Schwefeldioxidkonzentration zeigt, dass jetzt andere Emissionsquellen als für Stickstoffdioxid eine Rolle spielen müssen.

In der zweiten Nachthälfte sinkt die Temperatur im Alpenvorland (Wels) stärker als am Zöbelboden und am Feuerkogel, die vertikale Temperaturschichtung wird stabil, in den frühen Morgenstunden des 24. 1. herrscht nahezu Isothermie. Parallel dazu wird für beide Komponenten ein Konzentrationsminimum gemessen, die stabile Schichtung unterbindet einen weiteren Schadstofftransport. Mit wieder zunehmender Labilisierung (starker Temperaturanstieg im Alpenvorland) steigt die Immissionsbelastung vorübergehend noch einmal an.

Mit dem MM5 Modell wurden zeitlich und räumlich hochaufgelöste –24-stündige Rückwärtstrajektorien (hier ist nur der "Nahbereich" der Station von Interesse) berechnet und in Abbildung 24 zusammengestellt. Die Auflösung der stündlichen Windfelder ist 3 km x 3 km, Ankunftstermine der Trajektorien sind alle halben Stunden, insgesamt wurden 133 Trajektorien berechnet. Die auf den ECMWF-Feldern beruhenden großräumigen –96-stündigen Rückwärtstrajektorien (Ankunftstermine: alle 3 Stunden, insgesamt 23 Trajektorien) sind aus Abbildung 25 ersichtlich. Die Trajektorienzüge sind nach ihrer Höhe gefärbt und einheitlich nach der Halbstunde nummeriert (Nr. 1 entspricht 23. 1., 2:30 bis 3:00 Uhr).

Transporte verunreinigter Luftmassen, die meist in bodennahen Schichten ihren Ursprung nehmen und daher stark von der Topographie beeinflusst werden, lassen sich realitätsnäher simulieren, wenn man für den Trajektorien-Ankunftspunkt die Höhe der Modelltopographie anstelle der tatsächlichen Höhe zugrunde legt. Die Topographie, die in den beiden Modellen verwendet wird, unterscheidet sich entsprechend der unterschiedlichen Auflösung der Modelle: Der Zöbelboden hat im ECMWF-Modell eine Höhe von 807 m, im MM5-Modell von 974 m. Aufgrund dieser Unterschiede ist von vorne herein keine völlige Übereinstimmung der beiden Trajektorientypen zu erwarten.

Abgesehen vom Zeitraum zwischen 10 Uhr und 22:30 Uhr am 23. Jänner (Trajektorien-Nr. 15 bis 39) zeigen die klein- (Abb. 24) und großräumigen Trajektorien (Abb. 25) gute Übereinstimmung: Beide Modelle zeigen zunächst eine Strömung aus Westnordwest, später West. Nach 10 Uhr bis ca. 22:30 drehen die hochaufgelösten Trajektorien sprunghaft auf Ost bis Südost. In den Beginn dieser Phase fällt das erste Maximum der Windgeschwindigkeit am Zöbelboden; hier haben zunächst relativ unbelastete Luftmassen die Messstelle erreicht. Die Drehung der Strömung auf Ost bis Südost ist in den großräumigen Trajektorien nicht enthalten (die Trajektorien (auch die Unsicherheitstrajektorien, die in der Abbildung nicht dargestellt sind) kommen während dieser Zeit nach wie vor aus dem Westsektor) und ist auch aus den Windmessungen vom Zöbelboden nicht zu erkennen. Sie entspricht im Grunde dem zeitlichen Verlauf des bodennahen Luftdruckgradienten, wie er durch die Zugbahn des Tiefdruckgebiets zu erwarten wäre und kann durch Windmessungen an tiefer gelegenen Stationen belegt werden: In Niederösterreich wird schon während der Morgenstunden Wind aus Ost bis Südost gemessen. Deutlich später messen auch Stationen im oberösterreichischen Alpenvorland Wind aus östlichen Richtungen: Kremsmünster zwischen 15 und 19 Uhr (Abbildung 26), Wels/Schleißheim zwischen 17 und 21 Uhr (Abbildung 27). Weiter im Westen (an allen Salzburger Stationen) und im Alpenbereich (Windischgarsten) wird hingegen ausschließlich Wind aus nördlichen Richtungen, z.T. auch mit Westkomponente, gemessen; in Linz und Gmunden wehen Winde aus uneinheitlichen Richtungen. Die höher gelegenen Stationen Jauerling und Rax messen ganztägig Nordwestwind. Die Ost- bis Südostströmung ist also auf bodennahe Luftschichten Ostösterreichs beschränkt und erreicht gerade noch das westliche Oberösterreich. Die Messstelle Zöbelboden befindet sich im Nahbereich horizontaler, vor allem aber deutlicher vertikaler Windrichtungsänderungen. Die Windmessungen am Zöbelboden sind von der Topographie beeinflusst; ohne die für die großräumigen Windverhältnisse repräsentativen Daten vom Schoberstein (leider ausgefallen) lässt sich nicht beurteilen, ob sich der Zöbelboden tatsächlich noch im Bereich der von Osten antransportierten Luftmassen befunden hat. Da beide Modelle im fraglichen Zeitraum im Nahbereich der Station immer Strömungen mit nördlichen Komponenten zeigen, ist ein gewisser Einfluss der im Alpenvorland von Osten antransportierten Luftmassen jedoch durchaus wahrscheinlich.

Ab 23 Uhr zeigen beide Modelle übereinstimmend eine rasche Drehung der Strömung auf Nordost.

Die Trajektorien sind in beiden Modellen während der untersuchten Episode bodennah, Vertikalbewegungen werden im wesentlichen von der Topographie verursacht: Deutlich ist das Überströmen der Alpen, bei den hochaufgelösten Trajektorien auch des Böhmerwaldes, zu erkennen.

Der Zusammenhang zwischen den Trajektorien und der Stickstoffdioxid- bzw. der Schwefeldioxidkonzentration ist aus den Abbildungen 28 und 29 ersichtlich. Hier wurden die Trajektorien nach der Höhe der Immissionskonzentration eingefärbt (vgl. dazu Abbildung 22). Auf den genauen Ort, wo im Verlauf der Trajektorie der Schadstoffeintrag stattgefunden hat, kann daraus jedoch nicht geschlossen werden.

Für Schwefeldioxid (Abbildung 28) zeigen beide Modelle übereinstimmend Antransport belasteter Luftmassen aus Nordnordost, wobei ein schmaler Sektor über der Tschechischen Republik bis Südpolen überstrichen wird. Die – längeren – großräumigen Trajektorien beschreiben Schleifen über Südpolen und der Tschechischen Republik (d.h. die Aufenthaltszeit der Luft über diesem Gebiet ist relativ lange), der Verlauf der kürzeren kleinräumigen Trajektorien legt solche Schleifen nahe. Bei schon geringfügiger Verlagerung der Strömung gegen West geht die Schwefeldioxidkonzentration kontinuierlich wieder zurück.

Weniger gut ist die Übereinstimmung für Stickstoffdioxid (Abbildung 29); hier fällt das Konzentrationsmaximum in jene Zeit, für die die kleinräumigen Trajektorien gerade noch Strömung aus Ost bis Südost zeigen. Mit Drehung der Strömung auf Nordost bleibt die Konzentration zunächst hoch, dann geht sie mit weiterer Verlagerung der Strömung nach West deutlich zurück. Die großräumigen Trajektorien lassen in Übereinstimmung mit den kleinräumigen Trajektorien Gebiete im Nordosten, zudem aber auch im Nordwesten, nicht aber im Ostsektor als Quellen stickstoffdioxidreicher Luft vermuten.

Zusammenfassend kann die untersuchte Episode wie folgt beschrieben werden: Labilisierung der bodennahen Atmosphäre infolge von Temperaturanstieg im Alpenvorland - gleichzeitig mit Temperaturrückgang in höheren Lagen (Zöbelboden) \_ ermöglicht, dass schwefeldioxidreiche, davor aber vor allem stickstoffdioxidreiche, Luftmassen aus nördlicher Richtung die Messstelle erreichen können. Da jedenfalls in tiefer gelegenen Luftschichten Winde aus östlichen Richtungen gemessen werden, kann angenommen werden, dass zumindest als Folge von turbulenter Durchmischung diese Luftmassen auch von Emissionsquellen im Osten mitbeeinflusst sind. Tatsächlich zeigen die Trajektorien-Verweilzeitstatistiken für Winter auch relevante Stickstoffdioxidquellen im Alpenvorland östlich vom Zöbelboden (Abbildung 12): Besonders schön ist aus den Abbildungen A.7 (Winter) und A.8 (Frühling) ersichtlich. dass diese Gebiete fiir Stickstoffdioxidkonzentrationen, die über dem 75. Perzentil liegen, eine wichtige Rolle spielen.

Bei Drehung der Strömung auf Nord bis Nordost bleibt die Stickstoffdioxidkonzentration zunächst noch hoch, geht dann aber rasch zurück. Erst jetzt erreicht Schwefeldioxid sein Maximum. Schwefeldioxid dürfte daher auch aus vergleichsweise weiter entfernt gelegenen Emissionsquellen (Tschechische Republik, Südpolen) herantransportiert worden sein.

Turbulente Durchmischung ist in beiden Trajektorientypen nicht enthalten. Auch wenn Plausibilitätsüberlegungen einen Einfluss von Stickstoffdioxidquellen im Osten möglich erscheinen lassen, kann ohne repräsentative Windmessungen vor Ort nicht entschieden werden, ob die kleinräumigen, zeitlich hochaufgelösten Trajektorien für diese Episode bessere Ergebnisse bringen als die großräumigen Trajektorien.

Die Ergebnisse dieser Episodenstudie zeigen, dass Messdaten vor Ort alleine nicht ausreichen, die Herkunft der Luftmassen zu beurteilen. Sie zeigen aber auch die Wichtigkeit repräsentativer Messdaten für die Interpretation der Modellergebnisse, selbst bei Verwendung räumlich und zeitlich gut auflösender Modelle.

## 4.3.2 Kurze Stickstoffdioxidspitzen im Herbst (17. bis 31. Oktober 2000)

Während der Herbstmonate traten häufig kurzzeitige Strickstoffdioxidspitzen, verbunden mit Minima der Ozonkonzentration auf. Es liegt der Verdacht nahe, dass diese kurzen Extrema von den großräumigen Trajektorien nur ungenau erfasst werden. Der Zeitraum von 17. bis 31. Oktober wird daher anhand der hochaufgelösten MM5-Windfelder genauer untersucht. Dieser Zeitraum zeichnet sich dadurch aus, dass zu dieser Jahreszeit die ersten markanten Stickstoffdioxidspitzen gemessen werden, zudem dann aber auch noch deutliche Tagesgänge der Temperatur auftreten. Daher kann auch der Einfluss der thermischen Durchmischung der Atmosphäre auf die Immissionskonzentration studiert werden. Die Länge des Untersuchungszeitraums rechtfertigt hier neben einer Gegenüberstellung der Trajektorienzüge auch die Berechnung von Verweilzeitstatistiken. Voraussetzung dafür ist, dass auch die kleinräumigen Trajektorien das Untersuchungsgebiet halbwegs abdecken. Aus diesem Grunde wurden hier (abweichend von der vorherigen Episode) –48-stündige kleinräumige Rückwärtstrajektorien berechnet.

Die großräumige Wetterlage ist im wesentlichen durch Hochdruckeinfluss und Warmluftzufuhr, zunächst (bodennah) aus südöstlicher oder östlicher, später aus südwestlicher bis westlicher Richtung gekennzeichnet. Die Warmluftzufuhr wurde nur kurzzeitig Kaltfrontdurchgängen unterbrochen. Eine dauernde von länger Schlechtwetterphase tritt nur zu Beginn auf: In der Nacht zum 17. Oktober beendet eine Kaltfront eine ungewöhnlich warme Wetterphase; die Kaltfront bleibt bis zum 19. Oktober über Österreich liegen und löst sich mit Drehung der Strömung auf Ost langsam auf. Die Kaltfront verursacht einen kontinuierlichen Temperaturrückgang in Wels, Zöbelboden und Feuerkogel (Abbildung 30); der Wind dreht auf nordwestliche Richtung, wird aber rasch schwach (Abbildung 31). Auch die Drehung der Strömung auf östliche Richtung am 19. Oktober ist an den Winddaten vom Schoberstein gut zu erkennen. Ein weiterer Kaltfrontdurchgang am 24. Oktober macht sich lediglich durch eine Störung des Temperaturtagesgangs am Feuerkogel (Abb. 30) und durch eine Zunahme der Windgeschwindigkeit am Schoberstein (West- bis Nordwestwind, Abb. 31) bemerkbar. In der Nacht von 26. auf 27. Oktober führt eine Kaltfront zu einem markanten, jedoch nur kurzen Temperaturrückgang (Abb. 30). Am 29. Oktober erreicht eine Kaltfront den westlichen Bereich Österreichs und löst sich dann dort auf; sie führt im Untersuchungsgebiet ebenfalls zu einem deutlichen, aber nur kurzzeitigen Temperaturrückgang (Abb. 30) mit vorübergehender Winddrehung auf Nordwest (Abb. 31). Am 31. Oktober führt eine weitere Kaltfront zu einem markanten Temperaturrückgang (Abb. 30).

Zwischen den Kaltfrontdurchgängen treten immer wieder Inversionen oder stabile Temperaturschichtung auf: So misst der Feuerkogel zwischen 21. und 26. Oktober höhere oder annähernd gleiche Temperaturen als Wels (Abb. 30); die schwache Kaltfront am 24. Oktober kann die stabile Schichtung nicht auflösen. Auch nach den Kaltfrontdurchgängen am 26./27. und am 29. Oktober bildet sich rasch wieder eine Inversion aus.

Obwohl die Stickstoffdioxidkonzentration nahezu ausnahmslos Maxima während der späten Nachmittagsstunden zeigt (Abbildung 32) und daher thermische Durchmischung als Ursache für den Konzentrationsanstieg nahe legt, zeigt schon die Analyse der Wetterlagen, dass die markanteren Konzentrationsanstiege (17. und 18., 24., 29. und 31. Oktober) immer in Zusammenhang mit der großräumigen Wetterlage stehen: Kaltfrontpassagen und großräumige Winddrehung auf Nordwest. Gleichzeitig geht dann entsprechend der Jahreszeit Ozon zurück; Schwefeldioxid verhält sich "unauffällig". Thermisch bedingte Durchmischung dürfte jedoch

die Wirkung der Kaltfrontpassagen mit beeinflussen. Die einzigen, nicht durch die großräumige Wetterlage bedingten Stickstoffdioxidmaxima treten am 21. und 22., sowie zwischen 25. und 27. Oktober auf und sind eher unspektakulär.

Aus der gesamten Episode wurden als erstes zwei Zeitabschnitte ausgewählt und wiederum die groß- und kleinräumigen Trajektorien verglichen. Der Zeitraum von 17. bis 19. Oktober umfasst den Kaltfronteinbruch von 16. auf 17. Oktober, verbunden mit einem markanten Stickstoffdioxidanstieg und Ozonrückgang, und die allmähliche Auflösung der Front während der beiden Folgetage. Als zweites wurde der Zeitraum von 24. bis 25. Oktober ausgewählt, der durch einen schwachen Kaltfrontdurchgang, vor allem aber durch deutliche Tagesgänge der Stickstoffdioxidkonzentration gekennzeichnet ist, wenngleich die Konzentrationswerte selbst nicht spektakulär sind.

Die ECMWF-Trajektorien sind für die gesamte Periode (17. bis 31. Oktober) nach ihrer chronologischen Reihenfolge nummeriert, beginnend mit 17. 10. 2000, 03 UTC (insgesamt 121 Trajektorien). Die MM5-Trajektorien können wegen ihrer großen Zahl (insgesamt 766 Trajektorien) aus technischen Gründen nicht nummeriert werden; zur Veranschaulichung der zeitlichen Entwicklung wurden daher hier bestimmte charakteristische Strömungsmuster, wie sie aus den Abbildungen ersichtlich sind, nummeriert (siehe z.B. Abbildung 33a). Generell sollen die Trajektorienvergleiche einen Überblick geben, ob beide Modelle annähernd dieselben Strömungsmuster erfassen; ein direkter Vergleich einzelner Trajektorien ist hier nicht von primärem Interesse.

Die nach der Höhe der Stickstoffdioxidkonzentration eingefärbten Trajektorien für die Periode 17. bis 19. Oktober sind in den Abbildungen 33a (kleinräumge Trajektorien, halbstündliche Ankunftstermine) und 33b (großräumige Trajektorien, Ankunftstermine: alle 3 Stunden) dargestellt. Beide Modelle zeigen übereinstimmend zunächst eine Strömung aus Süd (Bereich 1 in Abbildung 33a); ab 17. Oktober, 10 Uhr (MEZ), mit Eintreffen der Kaltfront, springt die Strömung auf West und die Stickstoffdioxidkonzentration steigt markant an (Bereich 2 in Abbildung 33a bzw. ab Trajektorien-Nummer 6 in Abbildung 33b): Die MM5-Trajektorien folgen während dieser Phase in bodennahen Schichten dem Donautal, ab 18. Oktober, 8:30 Uhr, dem Böhmerwald (Bereich 3). Die ECMWF-Trajektorien überqueren anfangs noch die Alpen. Mit allmählicher Drehung der Strömung auf nördlichere Komponenten am 19. Oktober nachmittags geht die Stickstoffdioxidkonzentration rasch zurück (Übergang zu Bereich 4 in Abbildung 33a bzw. ab Nr. 16 in Abbildung 33b). Am 19. Oktober beschreiben beide Trajektorien übereinstimmend Schleifen unmittelbar südlich der Messstelle, obwohl der großräumige Antransport der Luftmassen nach wie vor aus West bis Nordwest erfolgt. Genau in diese Zeit fällt ein markantes Ozonminimum (während der Nacht von 19. auf 20. Oktober, vgl. Abb. 32). Aus diesen "Schleifen" resultieren lange - und für

niedrige Ozonkonzentration untypische - Verweilzeiten südlich der Station. Tatsächlich aber erfolgt der Antransport der ozonarmen Luft aus West bis Nordwest.

Die entsprechenden Gegenüberstellungen der klein- und großräumigen Trajektorien für 24. und 25. Oktober finden sich in den Abbildungen 34 und 35. Beide Tage sind durch eine recht einheitliche Strömung aus West gekennzeichnet, beide Modelle zeigen ein Überströmen der Alpen. Die Trajektorien überstreichen Gebiete westlich der Messstelle, die typisch sind für hohe Stickstoffdioxidkonzentrationen, aus den Trajektorien alleine lässt sich jedoch kein unmittelbarer Hinweis für die Konzentrationsverläufe ableiten. Die höchste Stickstoffdioxidkonzentration am 24. Oktober wird bei Eintreffen der Kaltfront gemessen (die Front ist vor allem in den kleinräumigen Trajektorien am Sprung von Bereich 1 zu Bereich 2 (24. Oktober, 18 Uhr) in Abbildung 34a zu erkennen). Infolge der Kaltfront geht die Temperatur am Schoberstein und am Feuerkogel geringfügig früher, als es dem Tagesgang entspricht, zurück (Abbildung 30; vgl. z.B. die ungestörten Temperaturtagesgänge vom Feuerkogel am 21. oder am 23. Oktober, die ein etwas "breiteres" Temperaturmaximum zeigen); im Alpenvorland bewirkt die Kaltfront als Folge einer gewissen Durchmischung (die Schichtung bleibt allerdings stabil) einen Temperaturanstieg. Am 25. Oktober steigt die Temperatur in Wels im Tagesgang recht markant an und erreicht höhere Werte als am Schoberstein und am Feuerkogel; die höchste Stickstoffdioxidkonzentration wird während des Temperaturmaximums in Wels gemessen, also zum Zeitpunkt der besten Durchmischung der bodennahen Atmosphäre. Vertikale Durchmischung, am 24. Oktober verursacht durch eine schwache Kaltfront nach einer längeren Inversionswetterlage und am 25. Oktober durch den starken Temperaturtagesgang im Alpenvorland, dürfte hier Hauptursache für den Stickstoffdioxidanstieg sein. Auch hier zeigt sich nochmals, dass sich synoptische Prozesse (Kaltfrontdurchgang) stärker auf die Stickstoffdioxid- und Ozonkonzentration auswirken als thermische bedingte Durchmischung alleine.

Die Ergebnisse von Trajektorien-Verweilzeitstatistiken, basierend auf den groß- und kleinräumigen Trajektorien für die gesamte Periode, sind in den Abbildungen 36 (alle Trajektorien), 37 (gewichtet mit der Ozonkonzentration) und 38 (gewichtet mit der Stickstoffdioxidkonzentration) zusammengestellt. Für die Verweilzeitstatistik wurde ein sehr feines Gitter mit 0,05° (3,75 km in Ost-West- bzw. 5,55 km in Nord-Süd-Richtung) horizontaler Auflösung bzw. mit 5 km x 50 m in den Höhenquerschnitten verwendet. Dieses feine Gitter ermöglicht bis zu einem gewissen Grad noch ein Erkennen einzelner Trajektorienzüge. Betrachtet wird hier primär der Nahbereich der Station bis zu einer Entfernung von rund 500 km.

Grundsätzlich folgen die kleinräumigen Trajektorien häufig der Topographie (Abbildung 36): Sie verlaufen oft entlang dem nördlichen Alpenrand und entlang dem Böhmerwald und überqueren lediglich die niedrigeren Alpenbereiche südöstlich vom Zöbelboden, nicht aber die Hohen Tauern. Die großräumigen Trajektorien scheinen die Alpen hingegen weitgehend zu ignorieren. Übereinstimmend zeigen beide Trajektorientypen das Fehlen von Strömungen aus Nord bis Nordost, was der Grund für die generell geringe Schwefeldioxidkonzentration sein dürfte.

Trotz dieser Unterschiede sind die mit der Immissionskonzentration gewichteten Verweilzeiten im Nahbereich der Station sehr ähnlich: Bei überdurchschnittlich hoher Ozonkonzentration (Abbildung 37) kommen beide Trajektorientypen meist aus dem Westsektor, auch der Bereich der Po-Ebene ist als mögliche Ozonquelle angedeutet. Bei unterdurchschnittlicher Ozonkonzentration kommen die Trajektorien aus Nordwest oder aus südlicher Richtung. Unterschiede treten vor allem dadurch auf, dass die großräumigen Trajektorien bei hoher Ozonkonzentration den Alpenbereich westlich vom Zöbelboden häufig queren (was Föhneffekte als Ursache für die hohe Ozonkonzentration nahe legt), die kleinräumigen Trajektorien hingegen dem nördlichen Alpenrand folgen.

Nahezu identisch sind die Statistiken für Stickstoffdioxid (Abbildung 38): Bei überdurchschnittlicher Stickstoffdioxidkonzentration verlaufen die der Topographie besser folgenden kleinräumigen Trajektorien häufig über weite Strecken entlang dem Donautal. Die (längeren) großräumigen Trajektorien zeigen bei hoher Stickstoffdioxidkonzentration mehrmals am nordwestlichen Randbereich des Untersuchungsgebiets eine markante Drehung der Trajektorien von Nordwest auf südöstliche Richtung; dies hat zur Folge, dass so auch jenen Gebieten im Alpenbereich, aus denen sonst meist stickstoffdioxidarme Luftmassen antransportiert werden, jetzt stickstoffdioxidreiche Luft zugeordnet wird. Solche markanten, kurzfristigen Strömungsänderungen könnten der Grund für die atypischen Ergebnisse der Trajektorien-Verweilzeitstatistiken für den Herbst sein.

Die Ergebnisse dieser Episodenstudie zeigen zusammenfassend erstens eine im allgemeinen recht gute Übereinstimmung der zeitlich und räumlich hochaufgelösten Trajektorien mit den großräumigen Trajektorien, besonders im Nahbereich der Messstelle. Die kleinräumigen Trajektorien folgen in hohem Maße der Topographie, bei hoher Stickstoffdioxidkonzentration verlaufen die kleinräumigen Trajektorien häufig entlang dem Donautal oder entlang dem Westrand des Böhmerwaldes. Die großräumigen Trajektorien hingegen scheinen die Topographie häufig zu "ignorieren" (im ECMWF-Modell haben die Alpen Gipfelhöhen um nur 1800 m). Zweitens werden Anstiege der Stickstoffdioxidkonzentration im wesentlichen von synoptisch bedingten Prozessen (also durch die großräumige Wetterlage, meist Kaltfrontpassagen) verursacht: thermische Durchmischung modifiziert diese führt aber alleine lediglich zu vergleichsweise Schadstofftransporte, geringen Konzentrationsanstiegen zur Zeit der besten vertikalen Durchmischung der bodennahen Atmosphäre. Drittens können starke räumliche und zeitliche Strömungsänderungen zu "Schleifen" in den Trajektorien führen. Solche "Schleifen" können unter Umständen die Ergebnisse der Trajektorien-Verweilzeitstatistiken verfälschen, etwa wenn die Luft charakteristische Eigenschaften aus einem Gebiet angenommen hat, dann aber woanders, wo sich diese Eigenschaften nicht mehr ändern, "Schleifen" vollführt. Eine solche Situation trat am 19. Oktober auf. Die Windmessungen vom Feuerkogel zeigen für den gesamten November ein ständiges "Pendeln" der Windrichtung zwischen Nordwest und südlichen Richtungen (ohne Abbildung). Das häufige "Hin und Herschwappen" der Luftmassen während der Herbstmonate könnte der Grund für die wenig plausiblen Ergebnisse der Trajektorienstatistiken für diese Jahreszeit sein.

#### 5. DISKUSSION, BEWERTUNG UND ZUSAMMENFASSUNG DER ERGEBNISSE

Vergleichbare Techniken zur statistischen Auswertung von Trajektorien wurden schon in den Achtzigerjahren entwickelt (Ashbaugh, 1983, und Ashbaugh et al., 1985), dennoch liegen für den Alpenraum nur wenige systematische Untersuchungen vor. Häufig konnten nur kurze Messzeiträume ausgewertet werden oder es waren nur bestimmte Tageszeiten von Interesse. In den älteren Arbeiten wurden oft nur zweidimensionale Trajektorien verwendet oder die Trajektorien wurden für lediglich zwei Ankunftstermine pro Tag berechnet: Im Rahmen des ALPTRAC-Projekts untersuchten Seibert et al, 1994, Aerosoldaten (Halbstundenmittelwerte), sowie Nitrat und Sulfat (Tagesmittelwerte) an den Stationen Sonnblick und Jungfraujoch (Daten vom Sonnblick von 26. 2. bis 25. 8. 1992) mittels zweidimensionaler Trajektorien (Ankunftstermine: alle 12 Stunden). Tscherwenka et al., 1998, analysierten SO<sub>2</sub>-Daten vom Sonnblick von insgesamt 114 Messtagen (dreidimensionale Trajektorien, Ankunftstermine: alle 3 Stunden). Die bisher umfassendste Arbeit liegt aus dem VOTALP-Projekt vor (Wotawa et al., 2000), in dem Ozondaten mehrerer alpiner Stationen aus dem Zeitraum Jänner 1995 bis März 1998 (soweit Daten vorlagen) analysiert wurden. Je nach Fragestellung wurden hier unterschiedliche Trajektorientypen und Tageszeiten berücksichtigt: Zur Charakterisierung der großräumigen Advektion wurden dreidimensionale Trajektorien (Ankunftstermine: alle 3 Stunden) verwendet; die Auswertungen wurden auf die Nacht- und Morgenstunden (21:00 -11:00 Uhr) beschränkt, um Einflüsse von Hangaufwinden auszuklammern. Als Ankunftshöhe der Trajektorien wurde die tatsächliche Höhe der Stationen gewählt, wodurch Transporte aus der Grundschicht eher schlecht erfasst werden. Daher wurden zudem für zwei Sommerhalbjahre (1995 und 1996) für jene Fälle, in denen die Ozonkonzentration das 90. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte überschreitet, zweidimensionale "Grundschichttrajektorien" ausgewertet. Kaiser et al., 2000, untersuchten die am Sonnblick gemessene Ozon-, NO<sub>x</sub>- und CO-Konzentration aus den Jahren 1993 bis 1996 (soweit Daten vorlagen) mittels dreidimensionaler Trajektorien (Ankunftstermine: alle 12 Stunden).

In dieser Arbeit wird für alle drei Komponenten derselbe einjährige Zeitraum analysiert. Neben einer "Gesamtbeschau" ist auch eine gewisse Möglichkeit gegeben, jahreszeitliche Unterschiede zu diskutieren. Die Ankunftstermine der Trajektorien (alle 3 Stunden) wurden möglichst eng gewählt (die Windfelder liegen für alle 6 Stunden vor) und je 5 Unsicherheitstrajektorien um den Aufpunkt herum sind bei den statistischen Auswertungen mit berücksichtigt, wodurch sich jedenfalls im Vergleich zu den zitierten Studien eine gute flächenhafte Abdeckung des Untersuchungsgebiets ergibt. Als Ankunftshöhe der Trajektorien wurde die Höhe der Topographie im Modell verwendet, was für das Studium von Transporten aus der Grundschicht vorteilhaft erscheint. Jedenfalls sind hier die Unterschiede zur tatsächlichen Höhe der Station gering.

Die hier verwendete Gewichtung der Trajektorienverweilzeiten mit der gemessenen Immissionskonzentration entspricht am ehesten der Methode von Ashbaugh et al, 1985. Einige Autoren verwenden den Logarithmus der Immissionskonzentration, weil einige Komponenten eine annähernd logarithmische Konzentrationsverteilung aufweisen. Für Ozon gilt das jedoch sicher nicht. Aus Gründen der Vergleichbarkeit wird hier für alle Komponenten mit der Konzentration, genauer - und abweichend von den zitierten Studien mit der Abweichung der Konzentration vom Gauß'schen Tiefpassfilter gewichtet. Dies hat den Vorteil, dass Gebiete, aus denen bei überdurchschnittlicher Immissionskonzentration am wird Zöbelboden häufig Luft antransportiert (positives Vorzeichen der Konzentrationsabweichung), von jenen, aus denen häufig "saubere" Luft antransportiert wird (negatives Vorzeichen), optisch scharf von einander abgegrenzt sind.

Die Ergebnisse der Trajektorien-Verweilzeitstatistiken für Zöbelboden, unterstützt durch Einzelfallstudien mit zeitlich und räumlich hochaufgelösten Trajektorien, entsprechen recht gut den zitierten Analysen für den österreichischen Alpenraum: Bodennahe Luftmassen aus Gebieten nördlich der Alpen als Ursache für relativ hohe Stickstoff- und Schwefeldioxidkonzentration wurden auch für den Raum der Tiroler Kalkalpen (Achenkirch, Kaiser, 1996) bis hinauf zu den Gipfeln der Zentralalpen nachgewiesen (Hoher Sonnblick, 3105 m Seehöhe: Seibert, 1994, Tscherwenka, 1998, Kaiser, 2000). Im Winter sind diese bodennahen, verschmutzen Luftmassen relativ ozonarm, weil dann Ozonabbau überwiegt und die photochemische Ozonproduktion gering ist. Während der Sommermonate hingegen führt photochemische Ozonproduktion in ebendiesen Luftmassen meist zu überdurchschnittlicher Ozonkonzentration am Zöbelboden. Im Winter wird relativ hohe Ozonkonzentration im wesentlichen nur dann gemessen, wenn Luft aus größerer Höhe absinkt; für den Zöbelboden spielen Föhneffekte dann eine wichtige Rolle.

Für Schwefeldioxid, das im Vergleich zu Stickstoffdioxid eine längere Lebensdauer hat, erweisen sich zudem weiter entfernt gelegene Gebiete nördlich der Alpen (Tschechische Republik bis Südpolen) als wichtige potentielle Quellgebiete. Auch diese Ergebnisse stehen in Einklang mit Untersuchungen der Sulfat- und Schwefeldioxidbelastung am Sonnblick (Seibert et al., 1994, Tscherwenka et al., 1998).

Bemerkenswert erscheint, dass sogar Gebiete südlich der Alpen zu relativ hoher Immissionskonzentration am Zöbelboden beitragen können: Die Po-Ebene als Ozonquelle (vgl. dazu Wotawa et al., 2000, und die Ergebnisse für Sonnblick, Kaiser 2000) und Slowenien als mögliche Quelle relativ schwefeldioxidreicher Luft (vgl. dazu Tscherwenka et al., 1998). Beide Gebiete wirken sich nur während der Sommermonate aus. Die Schwefeldioxidkonzentration, die dann am Zöbelboden gemessen wurde, ist im Vergleich zu den während der Monate Jänner bis Juni 2000 gemessenen Konzentrationsspitzen jedoch gering.

Die Gründe, warum der Bereich Slowenien lediglich während der Sommermonate, nicht aber zu anderen Jahreszeiten so deutlich als mögliche Schwefeldioxidquelle hervortritt, dürften jedenfalls in der Meteorologie zu suchen sein: Entweder ist nur im Sommer die Konvektion, unterstützt durch Hangaufwinde am Südrand der Alpen, so stark, dass sie bodennah in Slowenien emittierte oder nach Slowenien transportierte schwefeldioxidreiche Luft so hoch heben kann, dass sie die Alpen überqueren kann. Oder aber bedingt das weitgehende Fehlen von Strömungen aus Nordost (und den damit verbundenen Schwefeldioxidspitzen) während der Sommer- und Herbstmonate 2000, dass nun eine Quelle mit vielleicht doch eher sekundärer Bedeutung für den Zöbelboden so deutlich hervortreten kann.

Recht breiter Raum wurde dem – nicht immer trivialen - Vergleich der großräumigen Trajektorien mit räumlich und zeitlich hochaufgelösten Trajektorien beigemessen: Beide Trajektorientypen zeigen im näheren Umfeld der Messstelle im allgemeinen eine recht gute Übereinstimmung. Die großräumigen Trajektorien, die die Grundlage der Verweilzeitstatistiken sind, beschreiben daher im allgemeinen trotz ihrer relativ groben räumlichen Auflösung die Strömungsverhältnisse im Umfeld der Alpen hinreichend genau. Die hochaufgelösten Trajektorien folgen häufig der Topographie (Donautal, Alpenrand), während die großräumigen Trajektorien die Alpen vielfach "ignorieren". Diese Unterschiede bewirken zunehmende Unsicherheiten mit weiter zunehmender Entfernung zur Messstelle. Die größten Unsicherheiten treten erwartungsgemäß dann auf, wenn im Nahbereich des Zöbelbodens starke räumliche (vor allem vertikale) oder zeitliche Windrichtungsänderungen beobachtet werden. Vor allem während der Herbstmonate traten häufig markante kurzfristige Strömungsänderungen auf. Die Ergebnisse der Statistiken sind dann vor allem für jene Komponenten, deren Konzentration sich im Zuge von kurzen Windrichtungsschwankungen sprunghaft ändern kann (Ozon und Stickstoffdioxid) mit großer Vorsicht zu interpretieren. Weitere Unsicherheiten bei der Zuordnung möglicher Schadstoff-Quellgebiete kommen zustande, wenn häufig Strömungen mit annähernd konstanter Geschwindigkeit aus demselben Richtungssektor auftreten: Dann lassen sich mögliche Schadstoff-Quellgebiete kaum nach ihrer Entfernung zum Zöbelboden eingrenzen.

Thermische Durchmischung der bodennahen Atmosphäre, Tal- und Hangwindsystemen beeinflussen die Immissionskonzentration am Zöbelboden und können im Zusammenwirken mit Schadstofftransporten, die von der großräumigen Wetterlage verursacht sind, zu markanten Konzentrationsanstiegen während des Zeitpunkts der besten vertikalen Durchmischung (meist nachmittags) führen. Für sich alleine, ohne gleichzeitigem großräumigen Schadstofftransport, sind thermisch bedingte Vertikaltransporte für die untersuchten Komponenten jedoch von untergeordneter Bedeutung. Trajektorien, die lediglich die großräumigen (synoptischen) Transporte, nicht aber thermische Durchmischung und Hangwinde beinhalten, sind daher durchaus geeignet, die relevanten Transportprozesse in erster Näherung hinreichend genau zu beschreiben.

Die räumliche Eingrenzung von relevanten Quellgebieten könnte durch Hinzunahme zusätzlicher vergleichbarer Messstellen verbessert werden: Je weiter zusätzliche Stationen von einander entfernt sind, desto unterschiedlicher ist der Richtungssektor, aus dem sich eine bestimmte Emissionsquelle auf die jeweilige Station auswirkt. Durch Überlagerung der Trajektorienstatistiken für eine größere Zahl möglichst weit auseinander liegender Stationen kann eine wirksame Eingrenzung von Quellgebieten erreicht werden. Für Ozon könnte zudem die Rolle der Photochemie durch eine Berücksichtigung der Bewölkung entlang der Trajektorie genauer studiert werden.

Eine Ausdehnung der Untersuchungen auf einen mehrjährigen Zeitraum würde zu einer Reduktion des Einflusses klimatologischer Besonderheiten des Jahres 2000 führen: Der Juli 2000 war zu kalt und zeigt ein untypisches Minimum der Ozonkonzentration. Es ist möglich, dass die photochemische Ozonproduktion in "normalen" Sommern noch deutlicher hervortritt als im Jahr 2000. Ab Juli 2000 fehlen Strömungen aus dem Nordostsektor, im Herbst zudem auch aus dem gesamten Nord- und Nordwestsektor fast völlig. Für diesen Zeitraum können daher weder die Auswirkungen von Schwefeldioxidquellen nordöstlich vom Zöbelboden studiert werden, noch sind Vergleiche mit der Relevanz der slowenisch-österreichischen Grenzregion möglich. Umgekehrt könnte anhand eines mehrjährigen Zeitraums ebendieser Einfluss von Witterungsschwankungen (z.B. das hier beobachtete Ausbleiben von Strömungen aus Nordost während der zweiten Jahreshälfte) auf die gemessene Immissionskonzentration studiert werden, also z. B. die Frage, ob eine Konzentrationszuoder Abnahme auf meteorologische Ursachen (Strömungsänderungen) zurückzuführen ist.

#### 6. LITERATUR

- Ashbaugh, L.L. (1983): A statistical trajectory technique for determing air pollution source regions. J. Air Pollut. Control. Ass. 33, 1096-1098.
- Ashbaugh, L.L., W.C. Malm, W.Z. Sadeh (1985): A residence time probability analysis of sulfur concentrations at Grand Canyon National Park. Atmospheric Environment 19, 1263-1270.
- Baumann, K., H. Maurer, G. Rau, M. Piringer, U. Pechinger, A. Prevot, M. Furger, B. Neininger, U. Pellegrini (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.
- Carnuth, W., T. Trickl (2000): Transport studies with the IFU three-wavelength aerosol lidar during the VOTALP Mesolcina experiment. Atmospheric Environment 34, 1425-1434.
- ECMWF (1995): User Guide to ECMWF Products 2.1. Meteorological Bulletin M3.2 ECMWF, Reading, UK.
- Grell, G.A., J. Dudhia, D.R. Stauffer (1994): A description of the fifth generation Penn State/NCAR Mesoscale Model (MM5). National Center of Atmospheric Research Technical Note. NCAR/TN-398 + STR.
- Kaiser, A. (1996): Die meteorologischen Verhältnisse im Achental und ihre Auswirkungen auf die gemessenen Immissionskonzentrationen. In: Ökosystemare Studien im Kalkalpin, Berichte der FBVA, Heft 94, 23-46.
- Kaiser, A., R. Nemeth (2000): Luftchemische Messungen am Sonnblick: Der österreichische Beitrag zum Global Atmosphere Watch Programme der WMO. 96.-97. Jahresbericht des Sonnblick-Vereines für die Jahre 1998-1999, 3-21.
- Kaiser, A., H. Scheifinger, M. Kralik, W. Pepesch, D. Rank and W. Stichler (2001): Links Between Meteorological Conditions and Spatial/Temporal Variations in Long-Term Isotope Records fro the Austrian Precipitation network. International Conference on the Study of Environmental Change Using Isopote Techniques, Vienna, Austria, 23-27 April 2001, IAEA-CN-80.
- Prevot, A., M. Furger, B. Neininger, L. Poggio, W. Graber, J. Dommen (1998): Mesolcina valley = highly efficient pump for vertical transport. American Meteorological Society, Proceedings of the Eighth AMS Conference on Mountain Meteorology, 3-7 August 1998, Flagstaff, AZ, USA.

- Seibert, P., H. Kromp-Kolb, U. Baltensperger, D.T. Jost, M Schwikowski, A. Kasper, H. Puxbaum (1994): Trajectory Analysis of Aerosol Measurements at High Alpine Sites. A contribution to subproject ALPTRAC. The Proceedings of EUROTRAC Symposium '94, 689-693.
- Seibert, P., H. Feldmann, B. Neininger, M. Bäumle, T. Trickl (2000): South foehn and ozone in the Eastern Alps – case study and climatological aspects. Atmospheric Environment 34, 1379-1394.
- Stohl, A. (1996): Trajectory statistics a new method to establish source-receptor relationships of air pollutants and its application to the transport of particulate sulfate in Europe. Atmos. Environ. 30, 579-587.
- Stohl, A. (1998): Computation, accuracy and applications of trajectories a review and bibliography. Atmos. Environ. 32, 947-966.
- Stohl, A., and T. Trickl (1999): A textbook example of long-range transport: Simultaneous observation of ozone maxima of stratospheric and North American origin in the free troposphere over Europe. J. Geophys. Res. 104, 30445-30462.
- Stohl, A. (1999): The FLEXTRA Trajectory Model. Version 3.0. User Guide. Uni München, Lehrstuhl für Bioklimatologie und Immissionsforschung.
- Tscherwenka, W., P. Seibert, H. Puxbaum (1998): On-line measurements of sulfur dioxide at the 3 km level over Central Europe (Sonnblick Observatory, Austria) and statistical trajectory source analysis. Atmos. Environ., 32, 23, 3941-3952.
- Wotawa, G., H. Kröger, and A. Stohl (2000): Horizontal ozone transports towards the Alps results from trajectory analyses and photochemical model studies. Atmospheric Environment 34, 1367-1377.

## 7. ABBILDUNGEN





Abb. 1: Zeitreihen (Halbstundenmittelwerte) von O<sub>3</sub> und NO<sub>2</sub> (oben) sowie SO<sub>2</sub> (unten) vom Zöbelboden, Jänner 2000.





Abb. 2: Zeitreihen (Halbstundenmittelwerte) von O<sub>3</sub> und NO<sub>2</sub> (oben) sowie SO<sub>2</sub> (unten) vom Zöbelboden, August 2000.



Abb 3. : Zeitreihe (3 Stundenmittel) der Ozonkonzentration vom Zöbelboden und mit dem Gauss'schen Tiefpass gefilterte Reihen unter Verwendung unterschiedlicher Filterparameter.



Abb. 4: Zeitreihe (3 Stundenmittel) der hochpassgefilterten Ozonkonzentration vom Zöbelboden als Komplement zur tiefpassgefilterten Reihe, Gauss'scher Tiefpass, Periode: 501, Weite: dreifache Standardabweichung.


Abb. 5: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Ozonkonzentration, Winter 2000 (Monate Dezember bis Februar).Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration,

blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.

31



Abb. 6: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Ozonkonzentration, Frühjahr 2000 (Monate März bis Mai). Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration,

blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.



Abb. 7: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Ozonkonzentration, Sommer 2000 (Monate Juni bis August).



Abb. 8: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Ozonkonzentration, Herbst 2000 (Monate September bis November). Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration,

blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.

NO2 Zoebelboden, Gauss'scher Tiefpass, Periode 501 3 SMWs, Weite 3 sigma NO2 (1/100 ppb) Rohdaten Tiefpassgefilterte Reihe Zeit

Abb. 9: Zeitreihe (3 Stundenmittel) der NO<sub>2</sub>-Konzentration vom Zöbelboden und mit dem Gauss'schen Tiefpass gefilterte Reihe, Periode: 501, Weite: dreifache Standardabweichung.

NO2 Zoebelboden, Hochpassgefilterte Reihe, Periode 501 3 SMWs, Weite 3 sigma NO2 (1/100 ppb) -200 -400 Zeit

Abb. 10: Zeitreihe (3 Stundenmittel) der hochpassgefilterten NO<sub>2</sub>-Konzentration vom Zöbelboden als Komplement zur tiefpassgefilterten Reihe, Gauss'scher Tiefpass, Periode: 501, Weite: dreifache Standardabweichung.



Abb. 11: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Stickstoffdioxidkonzentration, Winter 2000 (Monate Dezember bis Februar). Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration,

blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.



Abb. 12: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Stickstoffdioxidkonzentration, Frühjahr 2000 (Monate März bis Mai).



Abb. 13: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Stickstoffdioxidkonzentration, Sommer 2000 (Monate Juni bis August). Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration,

blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration, am Zöbelboden.



 Abb. 14: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Stickstoffdioxidkonzentration, Herbst 2000 (Monate September bis November).
Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration, blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.

- Rohdaten Tiefpassgefilterte Reihe mound and a second the second and th -5 

Zeit

SO2 (µg/m\*\*3)

Abb. 15: Zeitreihe (3 Stundenmittel) der SO2-Konzentration vom Zöbelboden und mit dem Gauss'schen Tiefpass gefilterte Reihe, Periode: 501, Weite: dreifache Standardabweichung.

SO2 Zoebelboden, Gauss'scher Tiefpass, Periode 501 3 SMWs, Weite 3 sigma

42



Abb. 16 : Zeitreihe (3 Stundenmittel) der hochpassgefilterten SO<sub>2</sub>-Konzentration vom Zöbelboden als Komplement zur tiefpassgefilterten Reihe, Gauss'scher Tiefpass, Periode: 501, Weite: dreifache Standardabweichung.



Abb. 17: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Schwefeldioxidkonzentration, Winter 2000 (Monate Dezember bis Februar) Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration,

blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.



Abb. 18: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Schwefeldioxidkonzentration, Frühjahr 2000 (Monate März bis Mai).



Abb. 19: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Schwefeldioxidkonzentration, Sommer 2000 (Monate Juni bis August).



Abb. 20: Relative Trajektorienverweilzeit (%), gewichtet mit der hochpassgefilterten Schwefeldioxidkonzentration, Herbst 2000 (Monate September bis November). Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration,

blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.





Abb. 21: Zeitreihen (Halbstundenmittel) der SO<sub>2</sub>- (oben eingefärbt) und NO<sub>2</sub>-Konzentration (unten eingefärbt) am 23. und 24. Jänner 2000.



Abb. 22: Zeitreihen (Halbstundenmittel) von Windrichtung und –geschwindigkeit am Zöbelboden am 23. und 24. Jänner 2000.



Abb. 23: Zeitreihen (Halbstundenmittel) der Temperatur an den Stationen Zöbelboden, Wels und Feuerkogel am 23. und 24. Jänner 2000.



Zoebelboden MM5 Trajektorien 3 Domains (27, 9 und 3 km) Hoehe

Abb. 24: Trajektorienbüschel der halbstündlich für Zöbelboden berechneten kleinräumigen Trajektorien, Zeitraum von 23. 1. 2000, 0300, bis 24. 1. 2000, 2400 UTC, -24 Stunden rückwärts (Grundlage: dreifach genestete MM5 Läufe (27, 9 und 3 km). Die Einfärbung gibt die Trajektorienhöhe in Meter wieder. Die Zahlen am Trajektorienanfang sind die Halbstunden seit Periodenbeginn 23. 1. 2000, 0300 UTC.



Zoebelboden ECMWF Trajektorien 1x1 Grad Hoehe

Abb. 25: Trajektorienbüschel der 3-stündigen, für Zöbelboden berechneten großräumigen Trajektorien, Zeitraum von 23. 1. 2000, 0300, bis 24. 1. 2000, 2400 UTC, -96 Stunden rückwärts (Grundlage: ECMWF Windfelder). Die Einfärbung gibt die Trajektorienhöhe in Meter wieder und die Nummerierung erfolgt analog zu den kleinräumigen Trajektorien nach der Halbstunde seit Periodenbeginn 23. 1. 2000, 0300 UTC.



Abb.26: Zeitreihen (Halbstundenmittel) von Windrichtung und –geschwindigkeit in Kremsmünster am 23. und 24. Jänner 2000.



Abb.27: Zeitreihen (Halbstundenmittel) von Windrichtung und –geschwindigkeit in Wels am 23. und 24. Jänner 2000.



Zoebelboden MM5 Trajektorien 3 Domains (27, 9 und 3 km) SO2

Abb. 28a: Trajektorienbüschel der halbstündlich für Zöbelboden berechneten kleinräumigen Trajektorien, Zeitraum von 23. 1. 2000, 0300, bis 24. 1. 2000, 2400 UTC, -24 Stunden rückwärts (Grundlage: dreifach genestete MM5 Läufe (27, 9 und 3 km). Die Einfärbung gibt die SO<sub>2</sub>-Konzentration (ppb) am Trajektorienendpunkt an. Die Zahlen am Trajektorienanfang sind die Halbstunden seit Periodenbeginn 23. 1. 2000, 0300 UTC.



Zoebelboden ECMWF Trajektorien 1x1 Grad SO2

Abb. 28b: Trajektorienbüschel der 3 stündigen, für Zöbelboden berechneten großräumigen Trajektorien, Zeitraum von 23. 1. 2000, 0300, bis 24. 1. 2000, 2400 UTC, -96 Stunden rückwärts (Grundlage: ECMWF Windfelder). Die Einfärbung gibt die SO<sub>2</sub>-Konzentration (ppb) am Trajektorienendpunkt wieder und die Nummerierung erfolgt analog zu den kleinräumigen Trajektorien nach der Halbstunde seit Periodenbeginn 23. 1. 2000, 0300 UTC.



Zoebelboden MM5 Trajektorien 3 Domains (27, 9 und 3 km) NO2

Abb. 29a: Trajektorienbüschel der halbstündlich für Zöbelboden berechneten kleinräumigen Trajektorien, Zeitraum von 23. 1. 2000, 0300, bis 24. 1. 2000, 2400 UTC, -24 Stunden rückwärts (Grundlage: dreifach genestete MM5 Läufe (27, 9 und 3 km). Die Einfärbung gibt die NO<sub>2</sub>-Konzentration (1/100 ppb) am Trajektorienendpunkt an. Die Zahlen am Trajektorienanfang sind die Halbstunden seit Periodenbeginn 23. 1. 2000, 0300 UTC.



Zoebelboden ECMWF Trajektorien 1x1 Grad NO2

Abb. 29b: Trajektorienbüschel der 3 stündigen, für Zöbelboden berechneten großräumigen Trajektorien, Zeitraum von 23. 1. 2000, 0300, bis 24. 1. 2000, 2400 UTC, -96 Stunden rückwärts (Grundlage: ECMWF Windfelder). Die Einfärbung gibt die NO<sub>2</sub>-Konzentration (1/100 ppb) am Trajektorienendpunkt wieder und die Nummerierung erfolgt analog zu den kleinräumigen Trajektorien nach der Halbstunde seit Periodenbeginn 23. 1. 2000, 0300 UTC.



Abb. 30: Zeitreihen (Halbstundenmittel) der Temperatur an den Stationen Zöbelboden, Wels und Feuerkogel, 16. bis 31. Oktober 2000.



Abb. 31: Zeitreihen (Halbstundenmittel) von Windrichtung und –geschwindigkeit am Schoberstein, 16. bis 31. Oktober 2000.



Abb. 32: Zeitreihen (Halbstundenmittel) der Ozon- (schwarz), Stickstoffdioxid- (rot) und Schwefeldioxidkonzentration (blau) am Zöbelboden, 16. bis 31. Oktober 2000.



Zoebel MM5 Traj 3 Domains (27, 9 und 3 km) NO2 17-191000

Abb. 33a: Trajektorienbüschel der halbstündlich für Zöbelboden berechneten kleinräumigen Trajektorien, Zeitraum von 17. 10. 2000, 0300, bis 19. 10. 2000, 2400 UTC, -48 Stunden rückwärts (Grundlage: dreifach genestete MM5 Läufe (27, 9 und 3 km). Die Einfärbung gibt die NO<sub>2</sub>-Konzentration (1/100 ppb) am Trajektorienendpunkt an. Die Nummerierung zeigt die chronologische Abfolge charakteristischer Strömungsmuster.



Zoebel ECMWF Traj NO2 17-191000

Abb. 33b: Trajektorienbüschel der 3 stündigen, für Zöbelboden berechneten großräumigen Trajektorien, Zeitraum von 17. 10. 2000, 0300, bis 19. 1. 2000, 2400 UTC, -96 Stunden rückwärts (Grundlage: ECMWF Windfelder). Die Einfärbung gibt die NO<sub>2</sub>-Konzentration (1/100 ppb) am Trajektorienendpunkt wieder. Die Nummerierung zeigt die Reihenfolge der Trajektorien beginnend mit 17. 10. 2000, 03 UTC.



Zoebel MM5 Traj 3 Domains (27, 9 und 3 km) NO2 241000

Abb. 34a: Trajektorienbüschel der halbstündlich für Zöbelboden berechneten kleinräumigen Trajektorien für 24. 10. 2000, -48 Stunden rückwärts (Grundlage: dreifach genestete MM5 Läufe (27, 9 und 3 km). Die Einfärbung gibt die NO<sub>2</sub>-Konzentration (1/100 ppb) am Trajektorienendpunkt an. Die Nummerierung zeigt die chronologische Abfolge charakteristischer Strömungsmuster.



Zoebel ECMWF Traj NO2 241000

Abb. 34b: Trajektorienbüschel der 3 stündigen, für Zöbelboden berechneten großräumigen Trajektorien für 24. 10. 2000, -96 Stunden rückwärts (Grundlage: ECMWF Windfelder). Die Einfärbung gibt die NO<sub>2</sub>-Konzentration (1/100 ppb) am Trajektorienendpunkt wieder. Die Nummerierung zeigt die Reihenfolge der Trajektorien beginnend mit 17. 10. 2000, 03 UTC.



Zoebelboden MM5 Trajektorien 3 Domains (27, 9 und 3 km) NO2 251000

Abb. 35a: Trajektorienbüschel der halbstündlich für Zöbelboden berechneten kleinräumigen Trajektorien für 25. 10. 2000, -48 Stunden rückwärts (Grundlage: dreifach genestete MM5 Läufe (27, 9 und 3 km). Die Einfärbung gibt die NO<sub>2</sub>-Konzentration (1/100 ppb) am Trajektorienendpunkt an.



Zoebel ECMWF Traj NO2 251000

 Abb. 35b: Trajektorienbüschel der 3 stündigen, für Zöbelboden berechneten großräumigen Trajektorien, Zeitraum von 25. 10. 2000, -96 Stunden rückwärts (Grundlage: ECMWF Windfelder). Die Einfärbung gibt die NO<sub>2</sub>-Konzentration (1/100 ppb) am Trajektorienendpunkt wieder. Die Nummerierung zeigt die Reihenfolge der Trajektorien beginnend mit 17. 10. 2000, 03 UTC.



Abb. 36a: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) auf Grundlage von MM5, 18. bis 31. Oktober 2000.



Abb. 36b: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) auf Grundlage von ECMWF, 18. bis 31. Oktober 2000.



Abb. 37a: Relative Trajektorienverweilzeit (%) auf Grundlage von MM5, gewichtet mit der hochpassgefilterten Ozonkonzentration, 18. bis 31. Oktober 2000.



Abb. 37b: Relative Trajektorienverweilzeit (%) auf Grundlage von ECMWF, gewichtet mit der hochpassgefilterten Ozonkonzentration, 18. bis 31. Oktober 2000.


 Abb. 38a: Relative Trajektorienverweilzeit (%) auf Grundlage von MM5, gewichtet mit der hochpassgefilterten Stickstoffdioxidkonzentration, 18. bis 31. Oktober 2000.
Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration, blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.



 Abb. 38b: Relative Trajektorienverweilzeit (%) auf Grundlage von ECMWF, gewichtet mit der hochpassgefilterten Stickstoffdioxidkonzentration, 18. bis 31. Oktober 2000.
Rot: überdurchschnittliche Immissionskonzentration, blau: unterdurchschnittliche Immissionskonzentration am Zöbelboden.

## 8. ANHANG

## 8.1. Erläuterungen

Im folgenden sind die Ergebnisse der Trajektorien-Verweilzeitstatistiken dargestellt, wie man sie durch einen Vergleich von Situationen mit "hoher" Immissionskonzentration am Zöbelboden zu Situationen mit "niedriger" Immissionskonzentration erhält. Als Kriterium für "hohe" Immissionskonzentration wurde ein Überschreiten des monatsweise ermittelten 75. Perzentils der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, für "niedrige" Immissionskonzentration ein Unterschreiten des 25. Perzentils definiert.

Die Zeitreihen der dreistündigen Immissionskonzentrationen und die monatsweisen Perzentile sind in den Abbildungen A1 für Ozon, A6 für Stickstoffdioxid und A11 für Schwefeldioxid zusammengestellt. Die übrigen Abbildungen enthalten Darstellungen der Trajektorien-Verweilzeitstatistiken, wie sie für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration am Zöbelboden berechnet wurden (jeweils ganz oben). Daraus kann direkt abgelesen werden, in wie viel Prozent der Stunden sich die Luftmassen in einem bestimmten Gitterelement aufgehalten haben, bevor sie den Zöbelboden erreicht haben (die Gesamtsumme der Stunden über das gesamte, in der Grafik dargestellte Untersuchungsgebiet = 100%).

Die Trajektorien-Verweilzeiten sind generell stark von klimatischen Gegebenheiten – z.B. Überwiegen von Strömungen aus westlicher Richtung – geprägt. Unterschiede zwischen Situationen mit "hoher" im Vergleich zu Situationen mit "niedriger" Immissionskonzentration sind aus diesem Grund oft nicht leicht zu erkennen und treten erst dann optisch deutlich hervor, wenn man das Verhältnis der Statistiken für "hohe" zu "niedriger" Immissionskonzentration betrachtet (Darstellungen in der Mitte). 100% bedeutet hier, dass die Verweilzeiten bei "hoher" und "niedriger" Immissionskonzentration gleich sind. Mit Berücksichtigung einer gewissen Toleranz (100% +/- 25%) wurde der Bereich zwischen 75% und 125% grau schattiert; hier sind die Verweilzeiten bei "hoher" und "niedriger" Immissionskonzentration also recht ähnlich. Die Rotschattierung gibt an, um wie viel länger sich Luft bei "niedriger" Immissionskonzentration (Mitte, links) bzw. umgekehrt (Mitte, rechts). Die höchste Klasse 800 bis 10000 z.B. bedeutet, dass sich dann Luft um 8 bis 100 mal so lange im entsprechend eingefärbten Gebiet aufgehalten hat.

Jeweils unten sind Vertikalschnitte, ebenfalls als Verhältnis "niedriger" zu "hoher" (und umgekehrt) Immissionskonzentration dargestellt. Vor allem bei Stickstoffdioxid fehlt in den Vertikalschnitten oft der untere Höhenbereich; stickstoffdioxidreiche Luft kommt fast ausnahmslos aus bodennahen Schichten, sodass sich hier das Verhältnis oft nicht darstellen lässt (der Nenner darf nicht gleich Null werden).

Ozon Zoebelboden (3 SMW) und monatliche Perzentile, 2000 3 SMW — 25% — 75% Ozonkonzentration (ppb) Zeit

Abb. A1: : Ozonzeitreihe (3 Stundenmittel) und monatsweise 25. und 75. Perzentil, Zöbelboden, Jahr 2000.



Abb. A2: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Ozon, Winter 2000 (Monate Dezember bis Februar).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration ( >75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.



Abb. A3: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Ozon, Frühjahr 2000 (Monate März bis Mai).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration ( > 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.



Abb. A4: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Ozon, Sommer 2000 (Monate Juni bis August).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration (> 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.



Abb. A5: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Ozon, Herbst 2000 (Monate September bis November).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration ( > 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.

NO2 Zoebelboden (3 SMW) und monatliche Perzentile, 2000 NO2 Konzentration (1/100 ppb) 3 SMW — 25% — 75% Zeit

Abb. A6: : NO<sub>2</sub>-Zeitreihe (3 Stundenmittel) und monatsweise 25. und 75. Perzentil, Zöbelboden, Jahr 2000.



Abb. A7: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Stickstoffdioxid, Winter 2000 (Monate Dezember bis Februar).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration ( > 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten:</u> Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.



Abb. A8: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Stickstoffdioxid, Frühling 2000 (Monate März bis Mai).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration (> 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.

> 100% = Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration länger als für "hohe" Immissionskonzentration (links) bzw. umgekehrt (rechts).

DATA SET: zoebel.NOx.75roh.nc

DATA SET: zoebel.NOx.25roh.nc



Abb. A9: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Stickstoffdioxid, Sommer 2000 (Monate Juni bis August).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration ( > 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.

> 100% = Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration länger als für "hohe" Immissionskonzentration (links) bzw. umgekehrt (rechts).

78

DATA SET: zoebel.NOx.75roh.nc

DATA SET: zoebel.NOx.25roh.nc



Abb. A10: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Stickstoffdioxid, Herbst 2000 (Monate September bis November).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration (> 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.



Abb. A11: SO<sub>2</sub>-Zeitreihe (3 Stundenmittel) und monatsweise 25. und 75. Perzentil, Zöbelboden, Jahr 2000.



Abb. A12: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Schwefeldioxid, Winter 2000 (Monate Dezember bis Februar).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration (> 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.



Abb. A13: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Schwefeldioxid, Frühjahr 2000 (Monate März bis Mai).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration (> 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.









<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration ( > 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.



Abb. A15: Relative Trajektorienverweilzeit (% der Stunden) für Schwefeldioxid, Herbst 2000 (Monate September bis November).

<u>Oben:</u> Relative Verweilzeit bei "niedriger" Immissionskonzentration (< 25. Perzentil der dreistündigen Konzentrationsmittelwerte, links) und bei "hoher" Immissionskonzentration (> 75. Perzentil, rechts).

100% = Summe aller Stunden aus dem gesamten Untersuchungsgebiet.

<u>Mitte und unten</u>: Verhältnis der Verweilzeit für "niedrige" Immissionskonzentration/"hohe" Immissionskonzentration \* 100 (links) und umgekehrt (rechts).

100% = Verweilzeit für "niedrige" und "hohe" Immissionskonzentration identisch.