

**STOCHASTISCH-DETERMINISTISCHE MODELLE
ZUR ANALYSE UND PROGNOSE RÄUMLICHER UND
ZEITLICHER OZONIMMISSIONSSTRUKTUREN
IN SACHSEN**

Von der Fakultät für Geowissenschaften, Geotechnik und Bergbau
der Technischen Universität Bergakademie Freiberg

genehmigte

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium

(Dr. rer. nat.),

vorgelegt

von Diplom-Geographin Heike Hoffmann

geboren am 30. Mai 1973 in Saarburg, Rheinland-Pfalz

Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Joachim Menz, Freiberg

Prof. Dr. rer. nat. habil. Dietrich Stoyan, Freiberg

Prof. Dr. rer. nat. habil. Joachim Alexander, Trier

Tag der Verleihung: 5. November 2002

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Professor Joachim Menz und Herrn Professor Dietrich Stoyan, die die Betreuung dieser Dissertation, die nicht unbedingt in ihren üblichen Forschungsgebieten angesiedelt ist, übernommen haben. Herrn Professor Joachim Alexander, der meinen wissenschaftlichen Werdegang seit Beginn meines Studiums der Angewandten Physischen Geographie begleitete, danke ich für die Übernahme des dritten Gutachtens.

Durch ein Stipendium der DFG im Graduiertenkolleg „Räumliche Statistik“ wurde diese Arbeit überhaupt erst ermöglicht.

Dem Landesamt für Umwelt und Geologie (Herr Dr. Drüeke, Herr Dr. Berger, Herr Wolf, Herr Mayer) ist für die Bereitstellung der Messwerte des sächsischen Immissionsmessnetzes zu danken. Vom Ingenieurbüro Lohmeyer in Dresden wurden weitere wichtige Hilfsmittel und Informationen zur Verfügung gestellt.

Dr. Gerald van den Boogaart danke ich für seine Hilfe bei der Programmierung geostatistischer Verfahren sowie bei der Korrektur des Manuskriptes.

Inhaltsverzeichnis

1. EINLEITUNG - PROBLEMSTELLUNG UND ZIELSETZUNG	1
2. OZON – ENTSTEHUNG, RÄUMLICH-ZEITLICHE DIFFERENZIERUNG UND BEWERTUNG	5
2.1 Ozonentstehung	5
2.2 Räumlich-zeitliche Differenzierung	9
2.2.1 Beschreibung des Untersuchungsgebietes und des Messnetzes	11
2.2.2 Ozonverteilung und Ozontrend in Deutschland und in Sachsen	15
2.2.3 Stand der Forschung	18
2.3 Grenz- und Richtwerte zur Bewertung der Ozonkonzentration	23
3. RÄUMLICHE INTERPOLATIONS- UND VORHERSAGEVERFAHREN	27
3.1 Einführung	27
3.2 Geostatistische Verfahren	29
3.2.1 Variographie	32
3.2.1.1 Experimentelle Variogrammwolke und experimentelles Variogramm	33
3.2.1.2 Variogrammmodelle	34
3.2.2 Kriging	37
3.2.2.1 Ordinary Kriging	38
3.2.2.2 Universelles Kriging	39
3.2.2.3 Kriging mit externer Drift	40
3.3 Raumzeitliche Geostatistik	42
4. DATENGRUNDLAGE	47
4.1 Datenstruktur und Datenverwaltung	47
4.2 Messwertproblematik	48
4.3 Beschreibung der verwendeten Software	53
5. STATISTISCHE ANALYSE	55
5.1 Explorative Datenanalyse	55

5.1.1	Mittlere Tagesgänge	59
5.1.2	Korrelationsuntersuchungen	61
5.1.3	Clusteranalyse	66
5.2	Trendmodelle	68
5.2.1	Meanpolishing	68
5.2.2	Filtern des mittleren Tagesganges	71
5.2.3	Ergebnisse der Trendmodelle im Vergleich	71
6.	VARIOGRAMMSCHÄTZUNG	73
6.1	Anisotropieuntersuchung	77
6.2	Nuggetproblem	79
6.3	Bedeutung der Windrichtung	83
7.	RÄUMLICHE VORHERSAGE - KRIGING	85
7.1	Schwierigkeiten der Vorhersage	85
7.2	Driftvariablen für die Vorhersage	87
7.3	Geeignete Krigingverfahren	89
8.	ZEITLICHE VORHERSAGE	93
8.1	Exponentielle Glättung	95
8.1.1	Verfahren	95
8.1.2	Beispiel 16-Uhr-Werte	97
8.2	ARMA-Modelle	98
8.2.1	Verfahren	98
8.2.2	Beispiel 16-Uhr-Werte	102
8.3	Eigenes Modell	104
8.3.1	Saisonbereinigung	105
8.3.2	Vorhersagemodell, Ergebnisse und Validierung	110
9.	ZUSAMMENFASSUNG	119
	LITERATUR	125

Abbildungen

Abb. 2.1: Deutschland: Verhältnis biogener zu anthropogenen VOC-Emissionen 1998 und 10.08.-12.08.1998	9
Abb. 2.2: Lage der Messstellen im Untersuchungsgebiet	12
Abb. 2.3: Topographie des Untersuchungsgebietes	12
Abb. 3.1: Beispiel einer experimentellen (Semi-)Variogrammwolke	33
Abb. 3.2: Skizze eines experimentellen (Semi-)Variogramms	34
Abb. 4.1: Typische Ozonisoplethen bei verschiedenen VOC/NO _x -Verhältnissen	52
Abb. 5.1: Trend der Ozonkonzentration im Untersuchungszeitraum	57
Abb. 5.2: Mittlerer Jahresgang der Ozonkonzentration	58
Abb. 5.3: Mittlere Tagesgänge nach Jahreszeiten	60
Abb. 5.4: Autokorrelationen der 16-Uhr-Werte	63
Abb. 5.5: Autokorrelationen der 6-Uhr-Werte	64
Abb. 5.6: Autokorrelationen im Zeitraum Mai, Juni, Juli	65
Abb. 5.7: SPSS-Dendrogramm nach average linkage mit euklidischer Distanz	67
Abb. 6.1: Variogrammwolken im Sommer 1995 aus trendbereinigten (blau) und unbereinigten Daten (rot)	74
Abb. 6.2: 6-Uhr-Variogrammwolke (Dreiecke) und 16-Uhr-Variogrammwolke (Balken) der Ozonkonzentration im Sommer 1995	75
Abb. 6.3: Anpassung eines exponentiellen Variogrammmodells an die Variogrammwolke bzw. die klassifizierten Werte (rote Punkte)	77
Abb. 6.4: Variogrammkarte aus trendbereinigten Daten	79
Abb. 6.5: Streudiagramm der Residuen der Stationen Leipzig-Mitte und Leipzig-West	82
Abb. 6.6: Experimentelle Variogramme nach Auslassen von Stationen	83
Abb. 7.1: Digitales Geländemodell [m] von Sachsen	90
Abb. 7.2: Karte der Ozonkonzentration [µg/m ³] am 30.05.1995 als Ergebnis eines ED-Krigings mit der Höhe als externer Driftvariablen	92
Abb. 8.1: Ozonkonzentrationen [µg/m ³] an der Station Fichtelberg, Sommer 1995, 16 Uhr	93
Abb. 8.2: Zeitvariogramm der Stationen Fichtelberg (-), Leipzig (■) und Radebeul-Wahnsdorf (●)	94

Abb. 8.3: Exponentielle Glättung der 16-Uhr-Werte im Sommer 1995 an der Station Fichtelberg mit $\alpha = 0,83$	98
Abb. 8.4: Phasen des Box-Jenkins Ansatzes nach Schlittgen u. Streitberg 1991	100
Abb. 8.5: ACF und PACF der Ozondaten der Station Fichtelberg	103
Abb. 8.6: ARMA(0,2)-Modell der 16-Uhr-Werte, Sommer 1995, Fichtelberg	103
Abb. 8.7: ACF der Residuen für Fichtelberg, Sommer 1995, 16 Uhr	103
Abb. 8.8: ACF und PACF der vollständigen Sommerdatensätze, Beispiel Leipzig	104
Abb. 8.9: Saisonfaktoren (additives Modell) der Stationen Leipzig-Mitte, Radebeul-Wahnsdorf und Fichtelberg	107
Abb. 8.10: Autokorrelationen der trendbereinigten Werte der Stationen Leipzig-Mitte, Radebeul-Wahnsdorf und Fichtelberg	108
Abb. 8.11: Anpassung der Exponentialfunktion an die Autokorrelationsfunktion, Beispiel Fichtelberg, $\alpha = 0,0145$	110
Abb. 8.12: Fichtelberg 1995 Sommer, Eintagesvorhersage der 16-Uhr-Ozonkonzentration, Messwerte (-) und Vorhersage (---)	113
Abb. 8.13: Leipzig-Mitte 1995 Sommer, Eintagesvorhersage der 16-Uhr-Ozonkonzentration, Messwerte (-) und Vorhersage (---)	114
Abb. 8.14: Konfidenzintervall für die Eintagesvorhersage der 16-Uhr-Werte, Fichtelberg	115
Abb. 8.15: Verteilung der z-scores der Kreuzvalidierung	117

Tabellen

Tab. 2.1:	Geschätzte Beiträge zur Ozonbelastung in Deutschland, dargestellt am Beispiel einer Station, an der während einer sommerlichen Ozonepisode ein Stundenwert von 120 ppv (240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) erreicht wird	7
Tab. 2.2:	Größenordnungen gemessener Ozonimmissionen in Deutschland	11
Tab. 2.3:	Gauß-Krüger-Koordinaten und Meereshöhe der Messstellen	15
Tab. 2.4:	Ozonsituation in Deutschland (1990-1999), dargestellt am Beispiel verschiedener Kennwerte	17
Tab. 2.5:	Schwellenwerte für Ozon nach 22. BImSchV	23
Tab. 5.1:	Globale Stationsmittelwerte [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] und Standardabweichungen	56
Tab. 5.2:	Statistik der 16-Uhr-Sommer-Werte nach Jahren	58
Tab. 5.3:	Korrelationen zwischen Minimum- und Maximumkonzentrationen	62
Tab. 6.1:	Variogrammparameter 1995 bis 1999	75
Tab. 6.2:	95 %-Konfidenzintervall für die Variogrammschätzung	76
Tab. 6.3:	Charakteristik der Stationen im Nahbereich	80
Tab. 6.4:	Parameter der exponentiellen Variogrammmodelle unter Berücksichtigung des Nuggetproblems	83
Tab. 7.1:	Ozonkonzentrationen am 30.05.1995, 16 Uhr	91
Tab. 8.1:	Parameter der Korrelationsfunktion und Korrelationslängen der Stationen	109

Symbole und Abkürzungen

n	Glattheitsparameter
$G(n)$	Gammafunktion von n
$g(x_1, x_2)$	Semivariogramm
$2g(x_1, x_2)$	Variogramm
$g_{exp}(h)$	Exponentielles Variogrammmodelle
$g_{gauss}(h)$	Gaußsches Variogrammmodell
$g_{sph}(h)$	Sphärisches Variogrammmodell
e_{ij}	Messwertresiduum an Station i zum Zeitpunkt j
r_k	Autokorrelationskoeffizient zum Lag k
q_{kk}	Partieller Autokorrelationskoeffizient zum Lag k
$r_p(k)$	Partieller Autokorrelationskoeffizient zum Lag k
a	range, Reichweite
$C + C_0$	Gesamtsill
C	Schellenwert (sill) abzüglich des Nuggeteffektes
$C(x_1, x_2)$	Kovarianz
C_0	Nuggeteffekt
$E[Z(x)]$	Erwartungswert von $Z(x)$
a	Glättungsparameter
$m(x, t)$	deterministische Komponente einer raumzeitlichen Variablen
r	Radius
r_k	Autokorrelationskoeffizient zum Lag k
$S(x, t)$	stochastische Komponente einer raumzeitlichen Variablen
$x_1, \dots, x_n$	Messstellen x_1 bis x_n
$Z(x)$	räumliches Zufallsfeld
$z(x, t)$	raumzeitliche Variable
$z_1, \dots, z_n$	Messwerte z_1 bis z_n
$[\mu\text{g}/\text{m}^3]$	Mikrogramm pro Kubikmeter
$[\text{hPa}]$	Hekto-Pascal
$[\text{K}]$	absolute Temperatur in Kelvin
$[\text{m ü NN}]$	Meter über Normal Null
$[\text{ppb-h}]$	parts per billion and hour
$[\text{ppm}]$	parts per million
$[\text{ppbv}]$	Volumenkonzentration in ppb
ACF	Autokorrelationsfunktion
AOT	accumulated exposure over a given threshold
ARMA	A utoregressive M oving A verage
BImSchG	Bundesimmissionsschutzgesetz
BImSchV	Bundesimmissionsschutzverordnung
BTX	Benzol, Toluol, Xylol
CH_4	Methan
Cov	Kovarianz
DWD	Deutscher Wetterdienst
ECE	economic council for europe

EU	Europäische Union
KED	Kriging mit Externer Drift
LfUG	Landesamt für Umwelt und Geologie
MAK	Maximale Arbeitsplatzkonzentration
MEZ	mitteleuropäische Zeit
MIK	Maximale Immissionskonzentration
N ₂ O	Lachgas
NM-VOC	non methan volatile organic compounds
NO ₂	Stickstoffdioxid
NO _x	Stickoxide
O ₃	Ozon
OK	Ordinary Kriging
PACF	Partielle Autokorrelationsfunktion
PAN	Peroxiacetylnitrat
SO ₂	Schwefeldioxid
TA-Luft	Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft
UBA	Umweltbundesamt
UK	Universelles Kriging
Var	Varianz
VDI	Verein Deutscher Ingenieure
VOC	volatile organic compounds
WHO	World Health Organization

1. Einleitung - Problemstellung und Zielsetzung

Die Emissionen von Luftverunreinigungen durch den Menschen haben seit Beginn der Industrialisierung stetig zugenommen. Dies hat zum Anstieg der troposphärischen Ozonkonzentrationen beigetragen. Vor allem in den USA und Europa hat die wissenschaftliche und öffentliche Diskussion über die Wirkung von Ozon auf Menschen und Vegetation („neuartige Waldschäden“) zu Minderungsmaßnahmen (Katalysatoren) geführt, die eine Minderung der anthropogenen Ozonvorläufersubstanzen bewirkten. Infolgedessen sind die hohen Ozonkonzentrationen ($> 180 \mu\text{g}/\text{m}^3$) während sogenannter Photo- oder Sommermogepisoden in den letzten Jahren zurückgegangen. Bei den mittleren Ozonkonzentrationen sind Minderungen jedoch bislang nicht zu erkennen. Das Auftreten von Photosmog wird gegenwärtig als eines der wichtigsten Umweltprobleme angesehen (DWD 2000, S. 86). Es bleibt deshalb weiterhin ein wichtiges Ziel der Luftreinhaltepolitik, die Emissionen ozonbildender Vorläufersubstanzen zu senken. Der Kenntnisstand über die die Ozonbildung beeinflussenden Faktoren ist allerdings noch unzureichend. Dabei spielen zwei wesentliche Probleme eine Rolle; die raumzeitlichen Strukturen der Emissionsquellen und die Bedeutung großräumiger atmosphärischer Transporte auf der einen und der Einfluss biogener Emissionen auf der anderen Seite.

Um die Gefahren für Menschen, Tiere, Pflanzen und Sachgüter erkennen zu können, wurden Messnetze eingerichtet, die die Luftschadstoffbelastung überwachen. Nach dem Bundesimmissionsschutzgesetz (*BImSchG*) und den Forderungen der Richtlinien des Rates der Europäischen Union sind die deutschen Bundesländer dazu verpflichtet, die lufthygienische Überwachung zu gewährleisten. Im Freistaat Sachsen ist das Landesamt für Umwelt und Geologie (*LfUG*) die dafür zuständige Behörde. Es betreibt ein Messnetz mit derzeit ca. 30 stationären Messstellen. Ergebnisse der kontinuierlichen Messungen sind Angaben über die Luftbelastung am jeweiligen Messort.

Die Messergebnisse wurden bisher in Karten oft nur als Punktinformationen wiedergegeben. In der vorliegenden Arbeit sollen die Ozonmesswerte in Sachsen für den Zeitraum von 1995 bis 1999 statistisch analysiert werden. Auf der Grundlage der statistischen Analyse sollen Wege in Richtung einer flächendeckenden Darstellung von halbstündlichen Immissionskonzentrationen sowie von Eintagesvorhersagen eröffnet werden. Neben den Messwerten müssen dabei weitere Einflussfaktoren, wie die räumliche und zeitliche Aktivität der Emittenten, die Wetterlage (Strahlungsverhältnisse, Windgeschwindigkeiten) und die Topographie, berücksichtigt werden.

Angesichts der geringen Anzahl an Messstellen und den großen Entfernungen zwischen den Messstellen scheint die Existenz von räumlichen Korrelationen (ausreichende Nachbarschaftsbeeinflussung) nicht offensichtlich. Die vorliegende Dissertation stellt deshalb einen Beitrag zum Einsatz geostatistischer Verfahren zur Modellierung der Ozonverteilung in einem Maßstabsbereich dar, der bislang in der Literatur nicht beschrieben wurde.

Die vorliegenden Daten sind zeitlich betrachtet hochaufgelöst (Prinzip der vollständigen Erfassung), im Raumbereich aber sehr schlecht aufgelöst. Dies stellt einerseits hohe Anforderungen an die Datenverwaltung, andererseits ist es aufgrund der räumlich schlecht aufgelösten Daten fragwürdig, ob räumliche Korrelationen über diese relativ großen Distanzen bzw. in diesem Maßstabsbereich (scale) überhaupt existieren.

Laut Daley (1991) würde eine ideale räumliche Interpolationsmethode das Rauschen in den Beobachtungen filtern. Zum Interpolationseffekt kommt also ein Filtereffekt. Aus den zahllosen Rohdaten soll also eine regelmäßige Raum/Zeit-Repräsentation abgeleitet werden, die das Signal extrahiert und das Rauschen eliminiert (Daley 1991).

Die zeitliche Ozonprognose wird erschwert durch die hohe zeitliche Variabilität von Ozon infolge der Abhängigkeit von zahlreichen zeitlich variablen Einflussfaktoren. In Kapitel 2 werden diese Einflussfaktoren auf die Ozonverteilung und -entstehung, insbesondere für das Untersuchungsgebiet Sachsen, und der Stand in der Ozonforschung beschrieben. Zur Bewertung von Ozonkonzentrationen werden Grenz- und Richtwerte herangezogen. Diese sind mit Messwerten aber auch mit Modellergebnissen zu vergleichen.

Kapitel 3 beschreibt die für den praktischen Teil der Arbeit notwendige Theorie der regionalisierten Variablen. Nach diesen Grundlagenkapiteln folgt der überwiegend praktische Teil der Arbeit. In Kapitel 4 werden die für die Untersuchung zur Verfügung stehenden Primär- und Sekundärdaten, ihre Verwaltung, Verarbeitung und Darstellung beschrieben.

Im fünften Kapitel werden die zur Verfügung stehenden Ozondaten im Rahmen der explorativen Datenanalyse statistisch untersucht, bevor in den Kapiteln 6 bis 8 die räumliche und zeitliche Analyse und Prognose erfolgt.

Das Ziel der Arbeit ist die sinnvolle Übertragung von Einzelmesswerten mittels (geo-)statistischer Algorithmen in die Fläche sowie eine (kurzfristige) zeitliche Prognose der Ozonkonzentration an den Messstellen. Dies ist aufgrund der Besonderheiten der Ozonverteilung und der Besonderheiten des sächsischen Immissionsmessnetzes eine sehr anspruchsvolle Aufgabe. Das sächsische Ozonmessnetz ist sehr heterogen. Dies betrifft zum einen die Verteilung der Stationen (viele entlang des Erzgebirges und in den Städten) und zum anderen die Repräsentativität dieser Stationen (Stadtstationen, Landstationen).

Dort wo die Spitzenkonzentrationen erwartet werden, im Lee der Städte (Leipzig und Dresden), fehlen immer noch Messstationen. Die Ländermessnetze wurden einst geplant, um die Maximalkonzentrationen der Primärschadstoffe (z.B. Stickstoffmonoxid, Schwefeldioxid) sinnvoll abschätzen zu können. In der Zwischenzeit hat sich die Problematik in der Luftreinhaltung jedoch in den Bereich der Sekundärschadstoffe wie Ozon oder PAN (Peroxiacetylnitrat) verlagert. Hinzu kommen außerdem noch die Probleme, die die komplexe Topographie Sachsens mit sich bringt. In der Sprache der Geostatistik ausgedrückt, hat man es im Falle von Ozon mit komplizierten räumlichen und zeitlichen Trends zu tun.

Weitere Schwierigkeiten entstehen durch die schwer abschätzbaren Randbedingungen wie die Emissionsverhältnisse und die Zusammensetzung und Reaktivität der Vorläufersubstanzen, insbesondere die der biogenen Kohlenwasserstoffe. Zahlreiche die Ausbreitung bestimmende Faktoren sowie die komplexen an der Ozonproduktion beteiligten luftchemischen Reaktionen setzen der numerischen Modellierung von Ozon heute noch deutliche Grenzen (Drüeke 1995, Poppe u. Zimmermann 2000). Weitere Unsicherheiten bei der numerischen Ozonmodellierung bestehen durch die Unsicherheiten bei den benötigten Emissionsangaben. Dies betrifft die anthropogenen Emissionen auf der einen Seite, noch größer sind die Unsicherheiten derzeit jedoch bei der Angabe der biogenen Emissionen. Insbesondere unter diesem Gesichtspunkt erscheint der Einsatz geostatistischer Verfahren, die neben deterministischen auch stochastische Komponenten modellieren, im Falle von Ozonimmissionen deshalb als sinnvoll.

2. Ozon – Entstehung, räumlich-zeitliche Differenzierung und Bewertung

In diesem Kapitel soll eine Einführung in den Bereich der Lufthygiene und die für die Ozon-entstehung und die raumzeitliche Ozonverteilung wesentlichen Faktoren gegeben werden. Das Untersuchungsgebiet Sachsen und das Messnetz werden detailliert beschrieben. Es wird der Stand in der Ozonforschung eingegangen und eine Übersicht über bestehende Grenz- und Richtwerte für Ozon gegeben.

2.1 Ozonentstehung

Ozon wurde bis vor wenigen Jahrzehnten noch als etwas Gesundes angesehen (Dierkesmann u. Sandermann 2000). So warben etwa Kurorte mit ihrer ozonreichen Luft. Heutzutage soll es jedoch gesundheitsschädlich sein. In der Stratosphäre schützt es, in der Troposphäre ist es schädlich. Diese auf den ersten Blick widersprüchlichen Aspekte des Ozons führen in der Bevölkerung schnell zu Verunsicherungen und zum Gefühl einer unausweichlichen Bedrohung.

Ozon kommt in der Atmosphäre in zwei Schichten vor; das stratosphärische Ozon (in 10 bis 50 km Höhe) wird auch als die *Ozonschicht* bezeichnet und schützt die Erde vor der schädlichen kurzwelligen UV-Strahlung (230-310 nm), die infolge sinkender Ozonkonzentrationen in der Stratosphäre (*Ozonloch*) zugenommen hat. In den unteren Schichten der Troposphäre ist im Gegensatz zu dieser Ozonloch-Problematik seit Beginn der Industrialisierung nachweislich ein Anstieg der Ozonkonzentrationen eingetreten.

Bodennahes troposphärisches Ozon ist ein wesentlicher Bestandteil des sogenannten *Photo- oder Sommersmogs*, bei dem neben Ozon auch andere Luftschadstoffe, vor allem Stickoxide (NO_x) und flüchtige organische Verbindungen *VOCs* (*volatile organic compounds*), beteiligt sind. Ozon ist also ein *Sekundärschadstoff*, d.h. es wird nicht direkt in die Atmosphäre eingebracht, sondern bildet sich aus anderen Luftschadstoffen unter Einwirkung von Sonnenlicht und wird deshalb auch als *Photooxidantium* bezeichnet. Bei Ozon handelt es sich um ein recht instabiles Molekül, das leicht zerfällt, wenn es mit Oberflächenstrukturen in Berührung kommt. Dies ist auch der Grund dafür, dass es sich in geschlossenen Räumen nicht lange hält und die Ozonkonzentration in Büro- und Wohnräumen üblicherweise nur ca. 20 % der Konzentration in der Außenluft beträgt (Dierkesmann u. Sandermann 2000).

Das troposphärische Ozon hat in größeren Konzentrationen negative Auswirkungen auf den Menschen. Die Empfindlichkeit von Einzelpersonen bezüglich Ozon ist jedoch sehr unterschiedlich ausgeprägt. Negative Auswirkungen treten vor allem dann der Fall, wenn an strahlungsreichen und warmen Sommertagen hohe Ozonkonzentrationen in Verbindung mit Aldehyden, organischen Stickstoffverbindungen oder Peroxiden auftreten und der Mensch durch sein Verhalten (mehrstündige Exposition bei gleichzeitiger körperlicher Belastung) die Wirkung dieses Schadstoffgemisches in einem für ihn negativen Maße beeinflusst (Höppe u. Wagner 2000). Fehlt die körperliche Belastung, so werden selbst Konzentrationen bis zu $1000 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ohne gefährliche Reaktionen vertragen (Dierkesmann u. Sandermann 2000).

Es gibt verschiedene natürliche und anthropogene Quellen der Ozonentstehung (vgl. Tab. 2.1). Unter bestimmten meteorologischen Bedingungen kann Ozon durch Mischungsprozesse aus der Stratosphäre in die Troposphäre gelangen. Das stratosphärische Ozon sowie das aus natürlichen Vorläufern gebildete Ozon liefert einen Beitrag von ca. 15 ± 5 ppb (Beitrag A). Es kann durch ozonreduzierende Maßnahmen nicht beeinflusst werden. Zusammen mit Beitrag A bildet Beitrag B den sogenannten nordhemisphärischen Ozonhintergrund. Der anthropogene Beitrag hierzu (Beitrag B) von 25 ± 10 ppb ist das Ergebnis von Stickoxid- und Kohlenwasserstoffemissionen der Industrieländer Nordamerikas, Asiens und Europas. Die Methan (CH_4)- und Kohlenmonoxid-Emissionen als Vorläufersubstanzen der Ozonbildung sind in Tab. 2.1 nicht berücksichtigt. Bei allen genannten Emissionen ist aufgrund der weiter steigenden Industrialisierung in Schwellen- und Entwicklungsländern (vor allem in Asien) mit einem deutlichen Anstieg zu rechnen. Deshalb werden die Schwellen- und Entwicklungsländer der Tropen und Subtropen künftig in zunehmendem Maße durch Photooxidantien betroffen werden.

Tab. 2.1: Geschätzte Beiträge zur Ozonbelastung in Deutschland, dargestellt am Beispiel einer Station, an der während einer sommerlichen Ozonepisode ein Stundenwert von 120 ppv (240 µg/m³) erreicht wird

A	Natürliches Ozon davon: Stratosphärisches Ozon Photochemisch gebildetes Ozon aus natürlichen Vorläufern	15 ± 5 ppb 10 ± 5 ppb 5 ± 3 ppb
B	Globales Hintergrundozon in 30-60° N durch anthropogene NO _x - und VOC-Emissionen in Europa, Nordamerika und Asien	25 ± 10 ppb
C	Großräumige Ozonanreicherung durch NO _x - und VOC-Emissionen in Europa	40 ± 20 ppb
D	Lokale bis regionale Ozonspitzen durch NO _x - und VOC-Emissionen hauptsächlich innerhalb Deutschlands	40 ± 30 ppb

Quelle: Beilke 2000, S. 74

Die nordhemisphärische bzw. globale Ozonhintergrundkonzentration (Anteile A + B + C) wird sich mit großer Sicherheit erhöhen. Der großräumige Ozonsockel ist das Ergebnis der Ozonanreicherung durch NO_x- und VOC-Emissionen in Europa (Anteil C). Hinzu kommen noch die hauptsächlich innerhalb Deutschlands emittierten NO_x- und VOC-Emissionen (Anteil D).

Auf eine vollständige Darstellung der komplexen photochemischen Reaktionen soll an dieser Stelle verzichtet werden und es wird auf die entsprechende Fachliteratur (z.B. Baumbach 1993, Lahmann 1990, Fabian 1989, Helbig, Kerschgens u. Baumüller 1999) verwiesen. Es sollen jedoch die Zusammenhänge, die für die Regionalisierung und die zeitliche Vorhersage der Daten eine Rolle spielen, erläutert werden.

Voraussetzung für die Ozonbildung ist die NO₂-Photolyse, d.h. das NO₂-Molekül wird durch kurzwellige Strahlung in ein Sauerstoffradikal (O) und ein Stickstoffmonoxidmolekül (NO) aufgespalten. Das entstandene NO bildet sich jedoch schnell zu NO₂ zurück, das erneut zur Ozonbildung zur Verfügung steht. Für die Oxidation sind Peroxiradikale verantwortlich, die sich durch die Reaktion flüchtiger organischer Verbindungen mit OH-Radikalen nach Anlagerung von Sauerstoff bilden. Der Abbau von Ozon erfolgt durch Reaktion mit Stickstoffmonoxid. Es bilden sich normaler Sauerstoff und NO₂. Hin- und Rückreaktion befinden sich in einem photostationären Gleichgewicht, das von der Intensität der Sonnenstrahlung und den produzierenden und abbauenden Substanzen abhängt.

Für das Zustandekommen hoher Ozonkonzentrationen müssen sowohl NO_x als auch VOCs vorhanden sein und intensive Sonnenstrahlung und eine mehrere Tage andauernde Schönwetterperiode gegeben sein. Bis aus den Vorläufersubstanzen Ozon entsteht, vergehen meist mehrere Stunden. Die anthropogen bedingten Vorläufersubstanzen stammen zum großen Teil aus dem Kfz-Verkehr. NM-VOCs (non methan volatile organic compounds) werden zu nahezu 60 % bei der Verwendung von Lösungsmitteln freigesetzt. Nach neueren Erkenntnissen wurde die Rolle, die die biogenen Emissionen von VOCs (aus Laub- und Nadelbäumen sowie aus überdüngten Böden) und NO_x (z.B. durch Blitze) für die sommerliche Ozonbildung spielen, bisher möglicherweise unterschätzt (Alexander 2000). Das Wissen über die raumzeitliche Verteilung biogener Emissionen wird derzeit noch als sehr rudimentär bezeichnet (Meixner, Kesselmeier u. Vogel 2000). Die Untersuchungen über biogene Kohlenwasserstoffe sind immer noch in der Forschungsphase und viele bis jetzt nicht genau identifiziert. Den sauerstoffhaltigen Verbindungen ist dabei besondere Beachtung zu widmen, da sie ein großes Emissions- und Ozonbildungspotential haben (Slanina 1997). Mittlerweile sind einige hundert VOCs bekannt. Die globale Quellstärke der bekanntesten VOCs, Isopren und Monoterpene, wird auf 300 bis 980 Tg (10^{12} g) pro Jahr geschätzt. Im globalen Maßstab handelt es sich bei mehr als zwei Dritteln der VOC-Gesamtemission um biogene VOCs (Meixner, Kesselmeier u. Vogel 2000). Die Hauptquellen biogener VOCs sind die Wälder, vor allem die Laubwälder. Sie emittieren überwiegend Isopren, die Nadelwälder dagegen hauptsächlich Monoterpene (Guenther et al. 1991). Damit sind die Wälder bei der kurzfristigen, d.h. der lokalen und regionalen Ozonbildung, die wichtigste Quellgruppe (Obermeier 1995). Biogene Emissionen spielen aufgrund ihres geschätzten hohen Anteils, ihrer Reaktivität und ihres starken Effektes hinsichtlich der Bildung lokaler und regionaler Ozonspitzenkonzentrationen gerade in walddreichen Gebieten eine wichtige, vielleicht sogar die dominierende Rolle (Alexander 2000).

Die schwach reaktiven, meist anthropogenen Kohlenwasserstoffe, tragen meist stärker zur Erhöhung der großräumigen Ozongrundbelastung bei. Landwirtschaftliche Flächen spielen dagegen nur eine untergeordnete Rolle (Richter et al. 1998). Den biogenen Kohlenwasserstoffen kommt insbesondere während Sommersmogepisoden eine große Bedeutung zu. Deshalb wurden am Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung (IFU) die biogenen Emissionen für das Jahr 1998 und für den Zeitraum von 10. bis 12. August 1998 berechnet. An diesen Tagen wurden in Deutschland sehr hohe Temperaturen (mit nahe 40 °C zum Teil Rekordwerte) und Ozonkonzentrationen gemessen.

So übersteigen die anthropogenen biogenen Emissionen (AVOC) die biogenen (BVOC) im Jahr 1998 um den Faktor 3,5. Für den Zeitraum vom 10. bis zum 12. August wurde jedoch berechnet, dass die biogenen Emissionen die anthropogenen um den Faktor 2 übersteigen (vgl. Abb. 2.1).

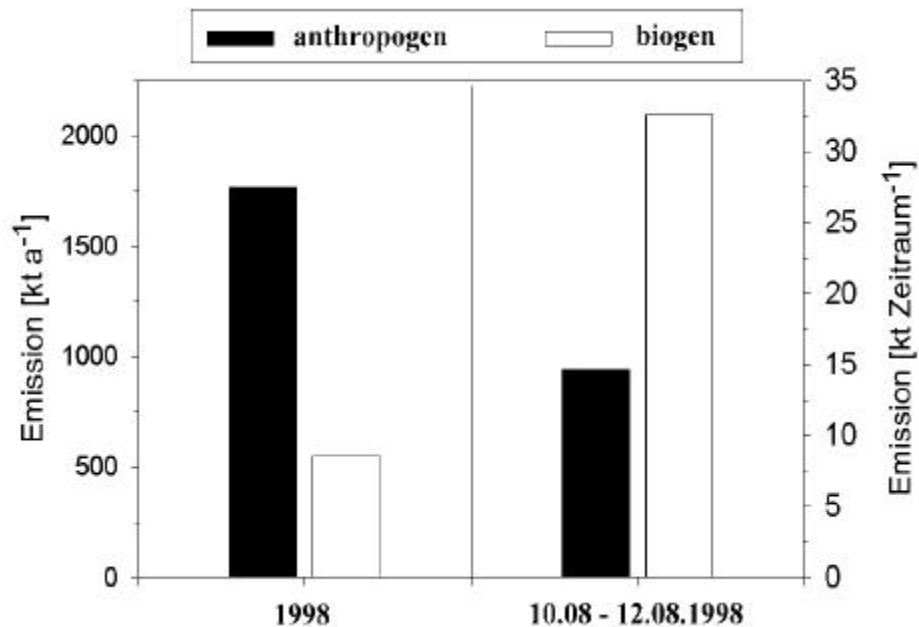


Abb. 2.1: Deutschland: Verhältnis biogener zu anthropogenen VOC-Emissionen 1998 und 10.08.-12.08.1998, aus: Alexander 2000, S.28

2.2 Räumlich-zeitliche Differenzierung

Eine wichtige Grundregel der Chemie besagt, dass die Reaktionsgeschwindigkeit zweier reagierender Substanzen von der Ausgangssubstanz abhängt, an der es im System mangelt. Da es in den Städten tagsüber Stickoxide im Überfluss gibt, mangelt es an VOCs. Im Verhältnis gibt es zu viel Stickoxid, so dass sich die Ozonbildung nicht erhöht und irgendwann der Abbau einsetzt. Dies ist in verkehrsbeeinflussten Gebieten der Fall, in ländlichen Gebieten dagegen mangelt es an Stickoxiden.

Wie Untersuchungen in Deutschland gezeigt haben, ist jedoch selbst in den entferntesten Gebieten bei den dort verfügbaren NO_x-Mengen die Schwelle bei weitem überschritten, unterhalb derer ein Ozonabbau auftritt (Kramp et al. 1995). Die Ozonkonzentrationen bleiben deshalb in ländlichen Gebieten ganzjährig auf hohem Niveau.

Die Ozonmaxima im Tagesverlauf stellen sich zwischen 14 und 16 Uhr (je nach Jahreszeit und Stationstyp) ein. Spitzenkonzentrationen können dabei kurzzeitig vor allem im Lee städtischer Ballungsgebiete auftreten, wenn sich Luftmassen mit Vorläufersubstanzen anreichert und dorthin bewegt haben. Im Umland der Städte liegen die Ozonkonzentrationen niedriger, bleiben jedoch länger auf mittelhohem Niveau.

Zwischen 17 und 18 Uhr (tägliche rush-hour) kommt es zu einem ausgeprägten Stadt-Land-Gefälle. Die erhöhten Stickoxidemissionen und die etwas verminderte Einstrahlung im Stadtgebiet führen zum Überwiegen ozonabbauender Prozesse, während der Ozongehalt auf dem Land wegen fehlender Stickoxide stabil hoch bleibt.

Neben diesem Stadt-Land-Zusammenhang der Ozonkonzentrationen spielt auch die Höhenlage eine wichtige Rolle. Dabei kommt bei Bergstationen (in Sachsen Fichtelberg, Zinnwald, Carlsfeld und Schwanberg) auch die erhöhte Hintergrundkonzentration in der freien Troposphäre zum Tragen. Durch das Ansteigen der Mischungsschicht kann durch den Luftaustausch vermehrt Ozon aus der freien Atmosphäre nach unten eingemischt werden. Die Ozonkonzentration liegt in der freien Troposphäre der Nordhalbkugel bei etwa 80 bis 90 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, so dass die Höhenstationen oft Jahresmittelwerte von über 80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ verzeichnen.

Neben der Höhenlage spielen weitere regionale Besonderheiten eine Rolle. So etwa in Städten, die in eingeschnittenen Tälern liegen (Dresden, Leipzig). Hier wird Ozon unter der nächtlichen Bodeninversion durch primäre Luftverunreinigungen und Deposition fast vollständig abgebaut. Die an das Tal angrenzenden Höhenlagen zeichnen sich auch nachts durch höhere Ozonkonzentrationen aus (Vogel et al. 2000).

Der jahreszeitliche Verlauf der Ozonwerte zeichnet sich durch ein Ansteigen zu Beginn des Frühjahrs mit zunehmender Intensität der Sonneneinstrahlung aus. Spitzenkonzentrationen werden während sogenannter Schönwetterlagen (intensive Sonneneinstrahlung, hohe Lufttemperaturen, geringe Windgeschwindigkeit, niedrige Luftfeuchtigkeit) gemessen.

Im Tagesverlauf treten die höchsten Konzentrationen aufgrund des Tagesganges der meteorologischen Bedingungen in den Nachmittagsstunden auf. In der Nähe verkehrsreicher Strassen, wo ständig NO produziert wird, wird nur relativ wenig Ozon gemessen (Vogel et al. 2000). An Mittelgebirgsstationen sind die Tagesgänge aufgrund des geringeren Verschmutzungsgrades der Luft (kaum Ozonabbau) weniger ausgeprägt und das Maximum tritt deutlich später im Tagesverlauf auf (vgl. Kapitel 5.1.1 und Abb. 5.3).

2.2.1 Beschreibung des Untersuchungsgebietes und des Messnetzes

Um seiner Verpflichtung im Rahmen des BImSchG nachzukommen, betreibt das Sächsische Landesamt für Umwelt und Geologie ein Immissionsmessnetz zur Überwachung der Luftbelastung. Es umfasst ca. 30 stationäre Messstellen, die sich hauptsächlich in städtischen Siedlungsgebieten – also in Gebieten mit hohen Primärschadstoffbelastungen – befinden (vgl. Abb. 2.2, Abb. 2.3 und Tab. 2.2). So liegen 15 Messstellen in den ausgewiesenen 11 Smoggebieten (Klingenthal, Elstertal, Elsterberg, Göltzschtal, Zwickau/Hohenstein-Ernstthal, Westerzgebirge, Annaberg, Chemnitz, Leipzig, Borna, Delitzsch) des Landes. Entlang des Erzgebirges und des Vogtlandes ist eine Verdichtung der Messstationen charakteristisch. In den Großstädten Leipzig, Dresden und Chemnitz messen mehrere Stationen.

Tab. 2.2: Gauß-Krüger-Koordinaten und Meereshöhe Messstellen

	Messstelle	Rechtswert	Hochwert	Höhe ü. NN
1	Annaberg-Buchholz	457076	560436	545
2	Aue	454984	560602	348
3	Auerbach	452836	559721	459
4	Bautzen	467097	567402	203
5	Böhlen	452700	567400	130
6	Borna	453470	566573	145
7	Carlsfeld	454352	558862	896
8	Chemnitz-Mitte	456472	563343	300
9	Chemnitz-Nord	456565	563497	296
10	Collmberg	457051	568590	313
11	Delitzsch	452300	571000	100
12	Dresden-Nord	462217	566032	112
13	Dresden-Post	462140	565877	112
14	Fichtelberg	456785	558849	1214
15	Freiberg	459481	564319	393
16	Glauchau	453831	563242	233
17	Görlitz	470812	567322	210
18	Hoyerswerda	465690	570262	117
19	Klingenthal	453345	558002	540
20	Leipzig-Mitte	452655	568998	110
21	Leipzig-Süd	452643	568717	120
22	Leipzig-West	452300	568800	115
23	Mittelndorf	465545	564713	323
24	Olbernhau	459466	561485	448
25	Pirna	463610	564887	118
26	Plauen	451021	559515	335
27	Plauen-Süd	450992	559448	343
28	Radebeul-Wahnsdorf	461735	566631	246
29	Schwartenberg	460368	561471	787
30	Zinnwald	462374	562332	877
31	Zittau-Ost	469870	564345	230
32	Zwickau	453493	562059	265

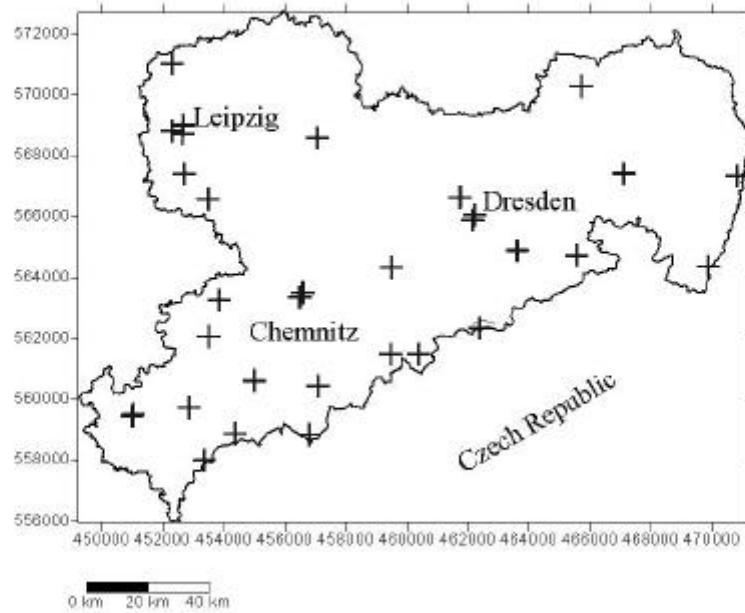


Abb. 2.2: Lage der Messstellen im Untersuchungsgebiet

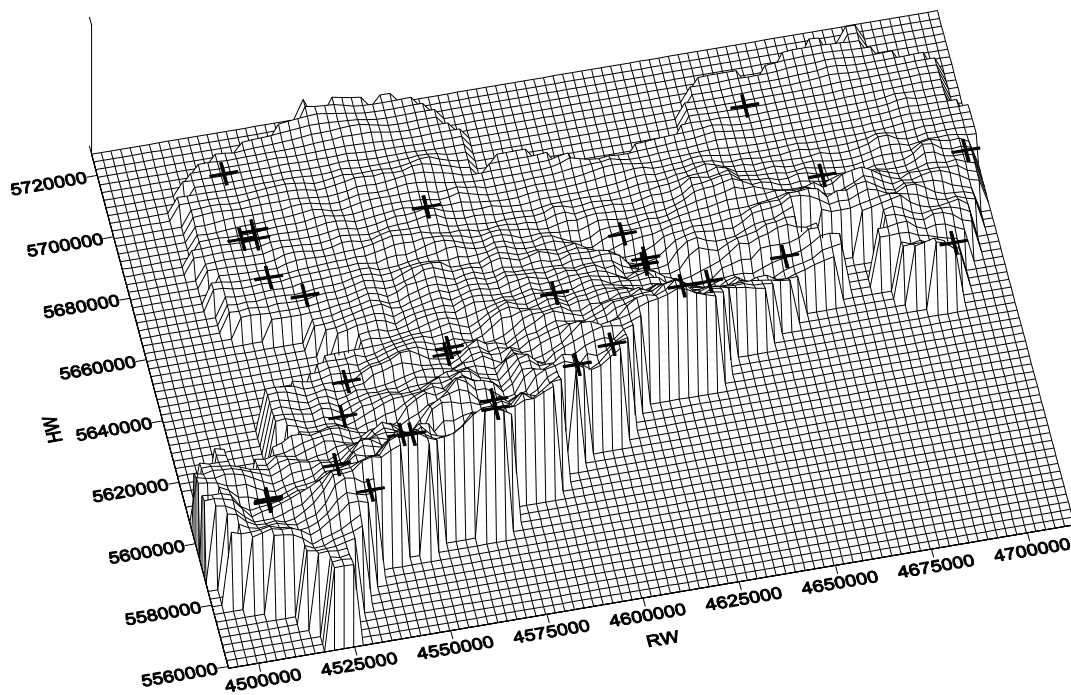


Abb. 2.3: Topographie des Untersuchungsgebietes

Die Gauß-Krüger-Koordinaten der Messstellen wurden vom Landesamt für Umwelt und Geologie mit einer Genauigkeit von sechs Stellen, d.h. auf 10 m genau angegeben. Das Untersuchungsgebiet ist ca. 18000 km² groß, hat eine West-Ost-Erstreckung von 220, eine Nord-Süd-Erstreckung von 170 km und ca. 4,4 Millionen Einwohner (das entspricht einer Bevölkerungsdichte von 241 E/km²). Die durchschnittliche Entfernung der Messstellen beträgt 86 km. Die Meereshöhen bewegen sich zwischen 100 und 1200 m ü NN. Im Norden des Landes gibt es deutlich weniger Messstellen als im Süden. Zwischen den Messstationen Delitzsch, Leipzig, Chemnitz, Radebeul und Melpitz befindet sich auf einer Fläche von ca. 5000 km² überhaupt keine Messstation. Dies gilt auch für die Dreiecke Hoyerswerda-Görlitz-Forst und Hoyerswerda-Melpitz-Radebeul. Auch in einigen Kleinstädten (z.B. Meißen, Döbeln, Riesa, Torgau, Kamenz) werden keine Immissionsmessungen durchgeführt. Probleme für die späteren Untersuchungen ergeben sich daraus, dass dort, wo die höchsten Ozonkonzentrationen erwartet werden (im Lee der großen Städte Leipzig, Chemnitz und Dresden), keine Messstationen vorhanden sind. Seit Oktober 1998 hat man vor allem aus diesem Gesichtspunkt die Station Collmburg (im Lee von Leipzig) ins Messnetz aufgenommen. Die Messdaten werden in der Servicezentrale der Umweltbetriebsgesellschaft (UBG), dem Betreiber des Messnetzes, erhoben und per Standleitung dem LfUG übertragen. Gemessen werden die Schadstoffkomponenten SO₂, NO_x, CO, Ozon, BTX (organische Kohlenwasserstoffe: Benzol, Toluol, Xylol) und Schwebstaub sowie die meteorologischen Parameter Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Lufttemperatur, Luftfeuchte, Luftdruck und Sonnenstrahlung.

Zur Überwachung des SO₂-Ferntransportes aus Nordböhmen werden die Sondermessstelle Bärenstein und zur Unterstützung der Smogüberwachung im Smoggebiet Zwickau/Hohenstein-Ernstthal die Sondermessstelle Meerane betrieben, an denen nur SO₂ gemessen wird. Einige der sächsischen Messstationen (14) sind in das gemeinsame Luftüberwachungsprogramm (JAMS) der Tschechoslowakei (Nordböhmen), Polens (Niederschlesiens) und Deutschlands im Bereich des sogenannten Schwarzen Dreiecks integriert. Das Schwarze Dreieck galt Anfang der neunziger Jahre als die am stärksten verschmutzte Region Europas. Das größte Problem der Region war die Luftverschmutzung durch SO₂ infolge der fehlenden Rauchgasentschwefelung in Kraft- und Heizwerken. In den letzten Jahren wurden große Summen für die Sanierung, Modernisierung und Stilllegung von Braunkohlekraftwerken eingesetzt, so dass es insbesondere bei Staub und SO₂ zu erheblichen Emissionsminderungen kam.

In der ländlichen Region des grenznahen Erzgebirges können dennoch während der Winterhalbjahre, im Zusammenhang mit klimatisch ungünstigen meteorologischen Bedingungen, hohe SO₂-Belastungen auftreten. Die SO₂-Belastung rückte im Rahmen des Projektes jedoch zunehmend in den Hintergrund, während die Bedeutung der Belastung durch photochemische Prozesse, insbesondere des Ozons, zunahm.

Derzeit überwachen in Sachsen 28 Messstationen die Luftverschmutzung durch Ozon. Die Stationen Leipzig-Süd, Olbernhau und Auerbach wurden aus dem Messprogramm herausgenommen. Die Messstelle Plauen wurde durch die Messstelle Plauen-Süd ersetzt. Laut LfUG (Berger 2000) ist damit die absolute Obergrenze an Stationen erreicht. In den nächsten fünf bis zehn Jahren ist mit einer Abnahme der Stationen auf 20 bis 25 Stationen zu rechnen. Kriterien für die Einstellung bzw. die Errichtung neuer Stationen sind zum Teil gesetzgeberischer Natur und zum Teil verwaltungstechnischer Natur (Probleme mit lokalen Behörden). Durch neue EU-Richtlinien können sich die Grenzwerte erniedrigen und damit neue Messstationen notwendig werden. Außerdem wird bei Entscheidungen über Stationseinstellungen bzw. Stationserrichtung versucht, die räumliche bzw. zeitliche Repräsentativität der betreffenden Messstellen zu berücksichtigen. So wurde z.B. im Jahr 2000 die Station Leipzig-Süd eingestellt. In Leipzig messen bereits zwei andere Stationen, wie in den anderen Großstädten (Chemnitz und Dresden) auch. Die Station Collnberg misst seit Oktober 98, v.a. aufgrund der Ozonproblematik im Lee von Leipzig und der großen Lücke im Messnetz in diesem Gebiet.

Das Klima des Untersuchungsgebietes ist ein gemäßigtes Klima, das stark durch die Morphologie des Gebietes geprägt wird. Das Erzgebirge fällt von Südwesten (1000 bis 1200 m ü. NN in der Gegend Klinovec/Fichtelberg/Auersberg) nach Nordosten (600 bis 800 m ü. NN bei Decin) ab. Auf der tschechischen Seite ragt das Erzgebirge steil aus dem Becken von Sokolov und Most heraus, auf der deutschen Seite dacht es sich sanft ab. Die komplexe Orographie wird außerdem durch das Obere Elbtal mit Meereshöhen von 100 bis 300 m geprägt. Das Jahresmittel der Temperatur liegt bei 8° C und überschreitet die 10°-Marke nicht. Im Gebirge beträgt die typische Jahresmitteltemperatur 3° C. Die jährliche Sonnenscheindauer liegt in den Bergen bei etwa 1600 Stunden, in den tieferen Lagen bei 1800 Stunden. Die Jahresniederschläge sind wegen des Reliefs ungleichmäßig mit starken Gradienten verteilt. Vorherrschende Windrichtungen sind Nordwest, West und Südwest. Während Hochdruckwetterlagen herrschen östliche und südöstliche Windrichtungen vor. Im Tschechischen Becken treten dann oft Temperaturinversionen auf, die lufthygienisch ungünstige Austauschbedingungen verursachen.

2.2.2 Ozonverteilung und Ozontrend in Deutschland und in Sachsen

In Deutschland messen derzeit ca. 340 Bodenstationen der Ländermessnetze die Ozonkonzentration. Hinzu kommen die überwiegend in ländlicher Umgebung gelegenen 23 Stationen des Umweltbundesamtes, die im wesentlichen der Überwachung der Hintergrundkonzentrationen dienen. Unter den Stationen des Umweltbundesamtes befinden sich auch drei sächsische Stationen (Melpitz, Lehmühle und Lückendorf). Die Größenordnungen der in Deutschland gemessenen Ozonkonzentrationen können Tabelle 2.3 entnommen werden. Ganz allgemein lässt sich die Immissionssituation für Ozon in Deutschland nach Lahmann 1997 folgendermaßen charakterisieren:

- Die mittleren Ozonimmissionen nehmen von Norden nach Süden sowie mit der Höhe zu. Sie sind in der Regel in Städten deutlich niedriger als in Land- und Waldgebieten.
- Die Immissionsmaxima liegen im Tagesverlauf am frühen Nachmittag und im Jahresverlauf im Sommer, also jeweils zu Zeiten mit höherer Lufttemperatur.
- Die maximalen Ozonimmissionen treten bevorzugt in Randgebieten von Ballungsräumen und mit einer zunehmenden Tendenz von Nordosten nach Südwesten auf.
- Als Trend von Ozonkonzentrationen in Deutschland lässt sich bislang eine mäßige Zunahme der Mittelwerte in ländlichen Gebieten und ein Rückgang der Spitzenwerte erkennen.

Tab. 2.3: Größenordnungen gemessener Ozonimmissionen in Deutschland

Ozon in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Jahresmittelwerte	98-Perzentile	Spitzenwerte
Stadtgebiete	10 – 55	85 – 170	350 – 550
Land- und Waldgebiete	50 – 100	150 – 200	-

Quelle: Lahmann 1997

Die räumliche Verteilung von Ozon ist abhängig vom Vorhandensein der Vorläufersubstanzen und damit im wesentlichen von anthropogen aber auch biogen bedingten Emissionen. Die Kernbereiche größerer Städte sind aufgrund des Abbaus durch andere Stoffe (v.a. NO in der Nähe verkehrsreicher Strassen) am geringsten belastet. Größer ist die Belastung der Stadtrandlagen, insbesondere im Lee, wo die höchsten Spitzenwerte erreicht werden.

Was die chronischen Belastungen betrifft, sind die Reinluftgebiete (Messstationen: Fichtelberg, Carlsfeld, Collmberg, Schwanberg, Zinnwald), aufgrund des geringen Abbaus und ihrer Höhenlage am stärksten belastet. An verkehrsbeeinflussten Messstationen ist die Ozonbelastung ca. 10 % bis 20 % niedriger als an nicht durch starken Verkehr im Nahbereich beeinflussten Stadtstationen. In den Städten sind die Ozonbelastungen im Mittel wiederum geringer als im Freiland. Die Mittelwertunterschiede sind hierbei stärker ausgeprägt als die Unterschiede bei den 98-Perzentilen. Ursache dafür ist das im Freiland fehlende NO zum Abbau des Ozons. Verkehrsnahe Messstationen sind deshalb nur für einen sehr kleinen Umkreis (einige Meter) repräsentativ, Stadtstationen, die nicht unmittelbar verkehrsbeeinflusst sind, können bis zu einigen Kilometern repräsentativ sein und Freilandstationen weisen die größte Repräsentativität auf (Lohmeyer 1999).

Ein Indikator für die Stärke der Verkehrsbelastung ist das Verhältnis von NO zu NO₂. Je höher dieses Verhältnis ist, desto stärker ist der Verkehrseinfluss. An weniger stark verkehrsbeeinflussten Stationen wird der Primärschadstoff NO schnell zu NO₂ aufoxidiert. Die Schadstoffbelastungen sind nicht nur von der Emittentennähe, sondern auch von der Höhenlage der Station und damit von den meteorologischen Bedingungen abhängig. In großen Höhen herrschen in der Regel höhere Windgeschwindigkeiten vor. Bei SO₂, Schwebstaub und NO₂ führt dies zu einer Konzentrationsverringering, bei Ozon jedoch zu einer -erhöhung. Da die Windbedingungen an den Messstationen häufig durch lokale Gegebenheiten (z.B. Einschnitte) geprägt sind, lassen sich diese Effekte in den Messdaten jedoch häufig nicht eindeutig nachweisen. Beim Ozon steigt das Jahresmittel um ca. 3 µg/100 m, das 98-Perzentil um ca. 2 µg/100 m (Lohmeyer 1999).

Seit 1970 nimmt die Ozonkonzentration in der Troposphäre um ca. 1 % jährlich zu. Seit Beginn der 90er Jahre kann die weitere Entwicklung der Ozonkonzentrationen als „widersprüchlich“ angesehen werden. Obwohl die Emissionen von Stickoxiden und Kohlenwasserstoffen in Deutschland zurückgegangen sind, wurden Ozonkonzentrationen zwischen 60 und 120 µg/m³ häufiger und gleichzeitig Konzentration < 60 und > 120 µg/m³ seltener (Winkler u. Enke 2000). Während die hohen Konzentrationen (> 180 µg/m³) zurückgegangen sind, stagniert der Jahresmittelwert (vgl. Tab. 2.4). Die Zunahme der mittleren Konzentrationsbereiche ist bei Bergstationen am stärksten, bei verkehrsnahen Standorten am schwächsten ausgeprägt. Die Zunahme der mittleren Konzentrationen bewirkt eine leichte Zunahme der mittleren Ozonkonzentrationen, z.B. bei den Jahresmittelwerten. Die Ozonspitzenwerte (akute Gesundheitsbelastungen) nehmen also ab, während die mittlere (chronische) Belastung weiter zunimmt (Jacobsen 2000).

Tab. 2.4: Ozonsituation in Deutschland (1990-1999), dargestellt am Beispiel verschiedener Kennwerte

	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999
Anzahl der Tage mit Überschreitungen von 180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	64	62	82	54	46	53	37	52	32	25
Anzahl der Tage mit Überschreitungen von 240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	24	20	20	10	17	17	4	7	7	0
Max. 1h-Wert [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	323	305	320	300	293	293	271	253	287	219
Jahresmittelwert [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	41	41	43	41	45	44	43	44	45	48

Quelle: UBA 1999; UBA 2000

Die sommerliche Ozonbelastung in Sachsen unterliegt einem Aufwärtstrend. Während die Akutbelastungen zurückgehen, nehmen die chronischen Belastungen zu. So wurde 1999 an bis zu 47 % der Tage des Sommerhalbjahres der Schwellenwert zum Schutz der menschlichen Gesundheit überschritten. Noch größer sind die Belastungen hinsichtlich der Vegetation. Der Schwellenwert wurde an allen Stationen überschritten, besonders häufig im Erzgebirgsraum; auf dem Fichtelberg an 97 % der Tage. So sind die Mittelwerte der 70er Jahre von ca. 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Zwischenzeit statistisch signifikant auf ca. 70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ gestiegen. Dies entspricht einer jährlichen Zunahme der Jahresmittelkonzentration um ca. 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Langzeitmessstation Radebeul-Wahnsdorf registrierte 1999 mit 71 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ den zweithöchsten Sommerhalbjahresmittelwert seit Beginn der Messungen in den 50er Jahren. Im Sommerhalbjahr 1998 gab es in Sachsen drei Episodentage (11., 12. und 18. August). Im Sommerhalbjahr 1999 traten keine Episodentage auf. Die Ozonbelastung in Sachsen lässt sich durch eine geringe Akutbelastung (wenige Stunden über 200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) und eine den ganzen Sommer andauernde, aus pflanzenphysiologischer Sicht zu hohen, chronischen Belastung (> 65 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) charakterisieren. Insbesondere in ländlichen Gebieten kommt es häufig zu Überschreitungen der Schwellenwerte für den Schutz der Gesundheit und der Vegetation. Von der Wirtschaftskommission der Vereinten Nationen für Europa (ECE) wurden 1996 AOT-40-Werte (accumulated exposure over a threshold of 40-ppb-h) festgelegt. Der Wert für Ozon liegt bezogen auf Waldökosysteme bei 10000-ppb-h (innerhalb des Sommerhalbjahres von 6 bis 20 Uhr MEZ). Vergleicht man diesen Critical Level mit den AOT-40-Werten sächsischer Messstellen, so ergeben sich zum Teil erhebliche Überschreitungen, v.a. für die Stationen Zinnwald, Mittelndorf, Fichtelberg, Carlsfeld und Radebeul-Wahnsdorf.

In Bezug auf die Primärschadstoffe (insbesondere SO₂) hat sich die Luftqualität in Sachsen deutlich verbessert. So konnte die sächsische Smogverordnung im Jahr 1999 aufgehoben werden. Aus dem Jahr 1998 stammt der *Luftreinhalteplan Erzgebirge*, der in Zukunft fortgeschrieben werden soll. Die Arbeitsgruppe bestehend aus Vertretern der Länder Bayern, Nordböhmen und Sachsen „Grenzüberschreitende Luftreinhaltung“ hat ein „Aktionsprogramm Erzgebirge/Fichtelberg“ herausgegeben. In diesem Bericht werden die aktuelle Emissions- und Immissionssituation sowie deren Bewertung dargestellt. Erstmals werden auch die Immissionswirkungen auf Ökosysteme unter Beachtung des Critical Load-Ansatzes untersucht. Es wird betont, dass in Zukunft Ozon, Feinstaub und die Belastung der Ökosysteme (Critical Loads) zusätzliche Schwerpunkte der gemeinsamen Anstrengungen darstellen werden.

2.2.3 Stand der Forschung

Die Darstellung der raumzeitlichen Verteilung von Ozon ist derzeit Gegenstand intensivster Forschung. Dabei kommen verschiedenste Methoden zum Einsatz. Die radikalste Lösung stellt nach Jacobsen 2001 der Einsatz statistischer Modelle dar, die neben den gemessenen Ozonkonzentrationen nur eine Vorhersage der Maximaltemperatur berücksichtigen. Statische Modelle sind weit verbreitet. Sie zeichnen sich durch einen minimalen Dateninput und eine ähnliche Vorhersagegenauigkeit wie bei deterministischen Modellen aus. Jacobsen stellt fest, dass die räumliche Korrelationslänge an ländlichen Stationen zur Zeit des Ozonmaximums am besten ist (vgl. Kapitel 6). Nachts und an verkehrsnahen Standorten treten deutlich kleinere Korrelationslängen auf und es ist eine hohe Abhängigkeit von den örtlichen Gegebenheiten festzustellen. Statistische Modelle werden deshalb nur für die Vorhersage des täglichen Ozonmaximums eingesetzt (Jacobsen 2001).

Die Modellierung von Luftschadstoffverteilungen aus Messwerten ist laut Tilmes 1999 aus verschiedenen Gründen problematisch. Zum einen ist die Datenlage bei der Modellierung von Schadstoffimmissionen im Vergleich zur numerischen Wettervorhersage (NWV) wesentlich schlechter. Dies bezieht sich sowohl auf die Verfügbarkeit der Messdaten als auch auf deren Qualität, zum anderen hängt die Vergleichbarkeit von Daten atmosphärischer Spurengase auch bei räumlicher Nähe der Messorte und ähnlichen meteorologischen Bedingungen stark vom chemischen Regime der Luftmassen ab (Tilmes 1999). Die Werte können über große Distanzen repräsentativ sein, wenn sich das Regime der Luftmassen (etwa ein ländlich geprägter Charakter) nicht ändert.

Die Zeitreihen der Ozonkonzentrationen von Stationen in Ballungsräumen und Stationen auf dem Land unterscheiden sich deshalb grundsätzlich. Messungen beziehen sich in der Regel auf einen Messpunkt. Jede Messung besitzt eine räumliche Repräsentanz, die von den Einflüssen in der Umgebung des Messfühlers abhängt. Beim Vergleich von Modell und Messung muss außer der jeweiligen räumlichen Repräsentanz auch die zeitliche Unschärfe berücksichtigt werden (Tilmes 1999).

Geostatistische Verfahren werden heute in den Umweltwissenschaften sehr vielfältig eingesetzt, um aus Punktmessungen von Merkmalen flächendeckende Karten herzustellen (z.B. in der Bodenkunde: Verteilung von Schwermetallen im Boden, Erstellung von Bodenartenkarten, in der Botanik und Forstwirtschaft: Erstellung von Arealkarten von Pflanzenpopulationen). Insbesondere in der Luftreinhaltung finden sie jedoch noch kaum ihren Einsatz, was vermutlich auf die großmaschigen Messnetze und die komplizierten die Ozonkonzentration beeinflussenden Driftvariablen zurückzuführen ist. In der vorliegenden Arbeit wird untersucht, inwieweit geostatistische Verfahren einen Beitrag zur Modellierung der Ozonverteilung in Sachsen leisten können. Geostatistische Verfahren zeichnen sich gegenüber numerischen Modellen dadurch aus, dass sie mit wesentlich weniger Eingangsdaten (die zum Teil sehr schwer zugänglich sind und/oder mit großen Unsicherheiten behaftet sind) und geringeren Rechenzeiten brauchbare Ergebnisse liefern. Statistische Vorhersageverfahren in der Luftreinhaltung stehen in Konkurrenz zu anderen Verfahren. Hier ist das Verfahren nach TA-Luft (1986) sowie die Korrelation von Trajektorien und Schadstoffmessungen zu nennen. Die größte Konkurrenz sind aber numerische Modelle der Ausbreitungsrechnung.

Die *TA-Luft* verpflichtet die zuständigen regionalen Behörden, für ihr Zuständigkeitsgebiet ein Immissionskataster zu erstellen. Das Verfahren dient der Erstellung eines Immissionskatasters für den Jahresmittelwert und das 98-Perzentil. Die Beurteilungsflächen sind im Gauß-Krüger-Koordinatensystem 1 km², bei geringerer Emissionsquellendichte auch größer. Die Eckpunkte der Beurteilungsflächen stellen die Messpunkte dar. An jedem Messpunkt wird in jedem der dreizehn Monate des Messzeitraumes genau eine Messung über einen Tag (8 bis 16 Uhr an Werktagen) durchgeführt. Für jede der Beurteilungsflächen wird der Mittelwert der an ihren Eckpunkten gemessenen Konzentrationen als mittlere Immissionsbelastung angenommen. Dieser Jahresmittelwert für eine Rasterzelle ergibt sich also aus $4 \times 13 = 52$ Einzelmesswerten, also aus wenigen Stichprobenmesswerten, so dass keine Aussagen über tageszeitliche oder wöchentliche Schwankungen getroffen werden können. Die geringe zeitliche Auflösung der Messungen (ein Messtag pro Monat) kann zu großen Fehlern führen.

Ein weiterer Nachteil ist der hohe personelle und messtechnische Aufwand des mit mobilen Messstationen arbeitenden Verfahrens. Dies ist auch ein Grund dafür, warum solche Kataster nur im Abstand von mehreren Jahren erstellt werden. Die Methode kann trotz ihrer Mängel dazu dienen, Immissionstendenzen festzustellen.

Beim *Trajektorienverfahren* handelt es sich um ein Verfahren, das zwar erfolgreich angewandt wird, aber auch große Einschränkungen hat. Um Aufschluss über die Herkunft der Konzentrationen zu erhalten, werden Luftmassentrajektorien überlagert, bei deren Ankunft am Messort hohe Konzentrationen gemessen wurden. Untersuchungen im mitteleuropäischen Bereich zeigten, dass die Krümmung der Trajektorien hier zu gering ist, um durch Überlagerung die Berechnung eines Immissionskatasters zu erlauben. Der rechentechnische Aufwand des Verfahrens ist relativ groß, weil zu jeder einzelnen Messung eine Trajektorie zu berechnen ist.

Numerische Ausbreitungsmodelle, sogenannte *Chemietransportmodelle (CTM)*, bieten die Möglichkeit, zukünftige Zustände (z.B. Nutzungsänderungen, Emissionsminderungen) zu simulieren. Modelle liefern im Gegensatz zu Messungen nicht nur Immissionswerte, sondern sie ermöglichen durch Zugrundelegung entsprechender Emissionskataster auch Verursacheranalysen. Es können einzelne Analysen (z.B. Smogepisoden) sowie mittlere Verhältnisse abgeschätzt werden. In der Meteorologie versteht man unter einem numerischen Modell eine Abstraktion der realen Atmosphäre, bestehend aus einer Modellkonzeption, einem physikalischen Gleichungssystem und einem numerischen Lösungsverfahren. Prognostische numerische Modelle untersuchen eine definierte meteorologische Zeit- und Raumskala. Bei mesoskaligen Modellen beträgt die laterale Erstreckung in der Regel zwischen 2 und 200 km, die vertikale zwischen 1 und 5 km. Dabei wird der betrachtete Modellausschnitt vertikal in Schichten oder Flächen und horizontal in Maschen aufgeteilt. Zur Berechnung der Ausbreitung von Luftbeimengungen muss eine Bilanzgleichung für Emission, Transport durch Advektion, Diffusion und Sedimentation und Senken wie Deposition (wash out, rain out) und gegebenenfalls auch chemische Reaktionsgleichungen gelöst werden, was den Berechnungsaufwand enorm steigert. Da es sich bei den meteorologischen Grundgleichungen um zeitabhängige, nicht-lineare, partielle Differentialgleichungen handelt, müssen sie unter Verwendung numerischer Verfahren gelöst werden. Die Genauigkeit einer Modellsimulation hängt von der Qualität des Modells (Approximationsgrad, Numerik) sowie ganz entscheidend von der Qualität der Modelleingabeparameter (insbesondere der Emissionen der Vorläufer) ab.

Ein entscheidender Nachteil besteht in der Notwendigkeit, als Eingabedaten ein Emissionskataster des Untersuchungsgebietes zur Verfügung stellen zu müssen. Solche Kataster werden durch Abschätzungen des Verbrauchs fossiler Energieträger und Angaben der Betreiber von Industrieanlagen und Verkehrszählungen ermittelt, so dass die Eingabedaten in der Regel mit starken Unsicherheiten belastet sind. Außerdem kann die Initialisierung die Ergebnisse einer Simulation beeinflussen. Noch größer sind die Unsicherheiten derzeit bei der Abschätzung der biogenen Emissionen von Ozonvorläufersubstanzen. Für CTMs werden Daten der Vorläufer mit hoher räumlicher ($1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$) und zeitlicher Auflösung (1 h) benötigt (Wickert, Obermeier u. Friedrich 2000). Laut Fiedler und Friedrich 2001 scheitert der Einsatz von numerischen Modellen oft, weil die benötigten Daten nicht zur Verfügung stehen. Der numerischen Modellierung der Ozonbildung sind derzeit noch Grenzen gesetzt. Die bekannten an der Ozonbildung beteiligten chemischen Reaktionen werden in CTMs verwendet. Im Labor haben diese Reaktionen bestimmte Reaktionskonstanten, die experimentelle Unsicherheiten aufweisen. Nach Poppe u. Zimmermann haben diese Unsicherheiten einen Einfluss von bis zu 40 % auf die Vorhersagefehler.

Die Regionalisierung von Immissionen kann wie für beliebige andere Merkmale auch mittels einfacher Interpolationsverfahren erfolgen. Diese sind jedoch, wie bisherige Untersuchungen gezeigt haben (Drüeke 1995), nicht in der Lage, die räumlich differenzierten Strukturen von Immissionen wiederzugeben. Unter *informationsgestützten* Verfahren versteht man Verfahren, die zusätzliche flächenhaft vorliegende Informationen, wie z.B. die Höhenlage, in das Interpolationsverfahren einbeziehen.

Von der Hessischen Landesanstalt für Umwelt (HLfU) wurde hierzu ein Verfahren entwickelt, das durch eine Kombination eines linearen Modells mit der Interpolationslösung gekennzeichnet ist. Zu diesem Zweck wurde ein Programmsystem namens FLADIS (**F**lächenhafte **D**arstellung der **I**mmisionssituation) erstellt. Der lineare Modellansatz für Ozon leitet sich aus der Beziehung zwischen Ozonkonzentration und der Höhenlage der Messstation ab. Die Halbstundenmittelwerte von Ozon der einzelnen Tage werden gegen die Höhenlage aufgetragen. Die Schätzwerte werden durch einen Gewichtungsfaktor (Bestimmtheitsmaß der Regression) mit der Interpolationslösung verrechnet. Bei diesem Verfahren ist die Erwartungstreue nicht gewährleistet. Der Vergleich der Modell/Interpolationswerte mit den Messwerten hat aber sehr gute Ergebnisse geliefert.

Im Auftrag des österreichischen Umweltbundesamtes wurde am Forschungszentrum Seibersdorf ein Verfahren entwickelt, das mit Hilfe von abgeleiteten Höhenabhängigkeitsfunktionen die tageszeitliche Entwicklung der Ozonimmission in Österreich darstellt. Zunächst wurden neun Tage aus drei Ozonepisoden des Jahres 1992 ausgewertet. Für jede Halbstunde wurde dann die Abhängigkeitsfunktion zwischen der Ozonimmission und der relativen Höhenlage ermittelt. Im Gegensatz zum hessischen Ansatz geht man von logarithmischen Abhängigkeitsfunktionen aus. Die Differenzen zwischen berechneten und gemessenen Werten werden mittels Kriging interpoliert; dann werden die höhennormierten Ozonkonzentrationen und die interpolierten Residuen addiert und in Form von Karten dargestellt. Später wurden Änderungen vorgenommen; die Höhenabhängigkeitsfunktionen wurden verändert und die höhen-spezifische Streuung der Residuen mit Hilfe einer Dämpfungsfunktion verringert.

Das Ingenieurbüro Lohmeyer hat im Auftrag des Sächsischen Landesamtes für Umwelt und Geologie für die Schadstoffe Schwefeldioxid, Ozon, Schwebstaub, Stickstoffdioxid und Staub ein Programmsystem (*IMMIKART*) zur Übertragung von Jahresmittelwerten und 98-Perzentilen auf die Fläche erstellt. Dabei handelt es sich um ein Verfahren, das auf der Radialinterpolation, d.h. der Festlegung von Radien für jeden Messpunkt (Einteilung in 7 Messpunktkategorien anhand des NO/NO₂-Verhältnisses), beruht. Auf der Grundlage dieser Radien werden die Zwischenwerte entfernungsgewichtet und/oder über eine Abklingfunktion interpoliert. Vor dieser Interpolation wird eine Datenvorauswertung vorgenommen, bei der es je nach Lage der Station zu Zu- oder Abschlägen kommt. Dem Ansatz liegen eine Reihe empirisch pauschaler Annahmen zugrunde. Eine Berücksichtigung der meteorologischen Bedingungen (Windgeschwindigkeit, Ausbreitungsklassen) erfolgt sehr pauschal über die Höhenkorrektur, so dass sich Lee- und Luvwerte an starken Quellen (z.B. Städte) nicht unterscheiden, was nicht der Erwartung entspricht.

Wie bereits erwähnt werden geostatistische Verfahren in der Luftreinhaltung in Deutschland bislang kaum eingesetzt. Von Drüeke 1995 wurde Kriging mit der Höhe als externer Driftvariable für das Passivsammlersystem Ozon-SAM (20 Stationen) für den Bereich der Trierer Talweite eingesetzt. Er erzielt durch Kriging mit externer Drift für die Tagesmittelwerte von Ozon bessere Ergebnisse als durch einfache Interpolationsverfahren und Ordinary Kriging. Im Fall des Ordinary Kriging empfiehlt er, die Variogrammodellierung auf der Basis mehrerer Tage (klimatologisches Variogramm) durchzuführen. Zu beachten ist das eingeschränkte Untersuchungsgebiet (260 km²) und der angestrebte Darstellungsmaßstab (1:100000).

2.3 Grenz- und Richtwerte zur Bewertung der Ozonkonzentration

Zur Bewertung der Luftbelastung durch Ozon gibt es bestimmte Kenn-, Richt- und Grenzwerte. Dabei ist zwischen rechtsverbindlichen Grenzwerten und Werten, die lediglich Orientierungs-, Ziel- oder Leitwertcharakter haben zu unterscheiden. Die rechtliche Grundlage bilden die im Zuge des Bundesimmissionsschutzgesetzes (BImSchG) erlassenen Verwaltungsvorschriften (BImSchV). Wichtige Verwaltungsvorschriften sind die Erste allgemeine Verwaltungsvorschrift zum BImSchG (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft, TA-Luft 1986) und die zweiundzwanzigste Verordnung zur Durchführung des BImSchG (22. BImSchV). In der TA-Luft werden Immissionswerte für genehmigungsbedürftige Anlagen festgelegt. Auf Beurteilungsflächen von einem Quadratkilometer im Einwirkungsbereich von Anlagen werden die Immissionen über ein Jahr stichprobenartig gemessen. Die wichtigsten Kennwerte sind der Jahresmittelwert (IW1, Immissionswert 1) und das 98-Perzentil (IW2, Immissionswert 2). Der IW1 ist ein Maß für die durchschnittliche chronische Belastung, während das 98-Perzentil ein Indikator für die akute Belastung ist. Die festgelegten IW1- und IW2-Werte gelten streng genommen nur für die dort festgelegten Verfahren zur Immissionsermittlung. Bei ihrer Festlegung ist ein Unsicherheitsbereich berücksichtigt, der die Unsicherheiten bei der Ermittlung der Kenngrößen beinhaltet. Dieser Unsicherheitsbereich wird für das 98-Perzentil mit +/- 25 % angegeben. An jedem Eckpunkt der Gitterzelle werden pro Jahr 26 Halbstundenmessungen durchgeführt und daraus der I1 und der I2 gebildet und mit den Kennwerten IW1 und IW2 verglichen. Die Größe des I2 ist laut Baumbach 1993 nicht nur unsicher, sondern ganz dem Zufall überlassen. Für den Schadstoff Ozon werden in der TA-Luft keine Immissionswerte angegeben.

Durch die 22. BImSchV werden einige Richtlinien des Rates der Europäischen Union in innerstaatliches Recht umgesetzt. Sie setzt die punktbezogene und z.T. kontinuierliche Messung der Luftschadstoffkonzentrationen voraus. Für Ozon werden in der 22. BImSchV, wie in Tab. 2.5 dargestellt, vor allem die Maximalkonzentrationen überprüft.

Tab. 2.5: Schwellenwerte für Ozon nach 22. BImSchV

	Schwellenwerte	Zeitbasis
Gesundheitsschutz	110 µg/m ³	8 Stunden
Schutz der Vegetation	200 µg/m ³	1 Stunde
	65 µg/m ³	24 Stunden
Unterrichtung der Bevölkerung	180 µg/m ³	1 Stunde
Auslösung des Warnsystems	360 µg/m ³	1 Stunde

Die 23. BImSchV legt Prüfwerte fest, bei deren Überschreitung die zuständigen Behörden verkehrsbeschränkende Maßnahmen zu prüfen haben. Mit Stickstoffdioxid, Benzol und Ruß betrifft diese Verwaltungsvorschrift vor allem Kraftfahrzeugemissionen. Es wird damit eine längerfristige Reduzierung der verkehrsbedingten Belastung durch krebserzeugende Schadstoffe in bestimmten, räumlich eng begrenzten, Gebieten angestrebt.

Vom Verein Deutscher Ingenieure wurde eine Richtlinie (VDI-Richtlinie 2310) über die maximale Immissionskonzentration (MIK-Wert) herausgegeben. Der maximale Immissionswert für Ozon beträgt $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bezogen auf 30 Minuten.

In Zukunft wird das Messen und die Bewertung der Luftqualität durch die EU-Rahmenrichtlinie 96/62/EG (vom 27.09.1996) und die zugehörigen Tochterrichtlinien geregelt werden. Nach dieser Richtlinie darf der Konzentrationswert von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (8-Stundenmittelwert) an 25 Tagen überschritten werden. Inzwischen existiert die Richtlinie vom 12. Februar 2002 (veröffentlicht im Amtsblatt L 67/14 der Europäischen Gemeinschaften vom 9.3.2002), die auf der Richtlinie 96/62/EG beruht. Für die vorliegende Arbeit sind die einheitlichen Kriterien zur Beurteilung der Luftqualität von besonderer Bedeutung. Die Beurteilung der Luftqualität gründet sich demnach nicht mehr nur auf Messungen, sondern betrachtet Modellrechnungen, orientierende Messungen, Emissionskataster und objektive Schätzungen als Teil eines Gesamtsystems, was im Vergleich zur bisherigen deutschen Messpraxis einen völlig neuen Ansatz darstellt.

Für Ozon existieren, da es nicht direkt emittiert wird, keine Emissionsgrenzwerte. Die Emission der Vorläufersubstanzen NO_x und NM-VOC wird jedoch durch eine Vielzahl von Grenzwerten geregelt. Dabei handelt es sich z.B. um die TA-Luft, europäische Grenzwerte für die Zulassung von Pkw und Lkw sowie Verordnungen über Verdunstungsverluste beim Umfüllen, Lagern oder Betanken von Kraftstoffen.

Eine rechtsverbindliche Ozonkonzentration gab es bereits im Rahmen des Gesetzes zur Änderung des BImSchG („Ozongesetz“) im Jahr 1995. Der Wert lag bei $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Ein-Stunden-Mittelwert). Dieser Wert wurde von Fachleuten als viel zu hoch eingestuft. Das Gesetz sah im Falle der Überschreitung dieses Grenzwertes großräumige Fahrverbote für Fahrzeuge mit hohem Schadstoffausstoß vor, um kurzfristig auftretende Ozonspitzen zu bekämpfen. Allerdings gab es zahlreiche Ausnahmegenehmigungen. Dieses Gesetz ist zum 31. Dezember 1999 ausgelaufen.

Von der Senatskommission der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) werden die „Maximalen Arbeitsplatz-Konzentrationen“ (MAK) jährlich neu herausgegeben.

Sie geben die höchstzulässige Konzentration eines Arbeitsstoffes als Gas, Dampf oder Schwebstoff in der Luft am Arbeitsplatz an. Die MAK-Werte sind allerdings nicht geeignet, mögliche Gesundheitsgefährdungen durch langdauernde Einwirkung von Verunreinigungen der freien Atmosphäre abzuleiten und gelten insbesondere nicht für besonders empfindliche Personen wie Kleinkinder und Kranke.

Epidemiologische und toxikologische Studien haben gezeigt, dass die Belastung durch erhöhte Ozonkonzentrationen zu gravierenden akuten und chronischen gesundheitlichen Schädigungen der Atemwege führen kann. Auch sind die Wirkungen auf die menschliche Gesundheit, die durch das Zusammenwirken verschiedener Luftschadstoffe (Synergismen) zurückzuführen sind, bisher nur unzureichend erforscht (Dierkesmann u. Sandermann 2000). Die qualifizierte Beurteilung der gesundheitlichen Auswirkungen von Ozon erfordert die Erfassung von Immissionsstrukturen in differenzierter räumlicher Auflösung. In der vorliegenden Arbeit wird für das Bundesland Sachsen versucht, anhand der Messwerte des vom Sächsischen Landesamt für Umwelt und Geologie betriebenen Landesüberwachungsmessnetzes, hierzu einen Beitrag zu leisten.

3. Räumliche Interpolations- und Vorhersageverfahren

In diesem Kapitel werden die wesentlichen Methoden der Regionalisierung geographischer Variablen beschrieben, die im praktischen Teil der Arbeit zur Anwendung kommen. Die Methoden der Zeitreihenanalyse werden im Zusammenhang mit der Darstellung der Ergebnisse in Kapitel 8 beschrieben.

3.1 Einführung

Die räumliche und zeitliche Veränderlichkeit der Ozonkonzentration kann aus ökonomischen Gründen nur an einer begrenzten Anzahl von Messstellen beobachtet werden (in Sachsen ca. 30 Stationen). Um die Ozonkonzentrationen an unbeobachteten Orten vorherzusagen, stehen räumlich und zeitlich verteilte punktuelle Ozonmesswerte zur Verfügung. Die Verwendbarkeit dieser Informationen für die Vorhersage ist abhängig von der Anzahl der Daten, ihrer räumlichen und zeitlichen Verteilung und Korrelationen (Nachbarschaftsbeeinflussung), zusätzlichen Informationen (z.B. Trends in den Daten) und den Zusammenhängen zwischen den Daten (Fachwissen).

Zur Angabe des Merkmalsverhaltens zwischen den Stationen und Beobachtungszeitpunkten gibt es in der Mathematik *Interpolations-, Ausgleichs- und Vorhersageverfahren*. Aufgrund unseres beschränkten Wissens über die an der Ozonproduktion beteiligten Prozesse (vgl. Kapitel 2.1) ist eine rein deterministische Modellierung der Ozonverteilung in Raum und Zeit nicht möglich. Dort wo ausreichende Kenntnisse für ein deterministisches Modell noch fehlen, führt man gern stochastische Modellkomponenten ein.

Deshalb werden in der vorliegenden Arbeit geostatistische Methoden zur Vorhersage der Ozonkonzentration eingesetzt und fachwissenschaftlich begründet deterministische Ansätze ins Spiel gebracht.

Das Ziel *räumlicher Interpolationsverfahren* ist die Vorhersage von Messwerten an Zwischenstellen und die Darstellung der räumlichen Verteilung des Merkmals durch Karten mit Isolinien, Grauwerten und Farben (Stoyan et al. 1997). Bei der Interpolation werden die Messwerte eingehalten (*Messpunkttreue*). Für die Darstellung des Merkmalsverlaufes zwischen den Messpunkten benutzt man einfache Funktionen, wie z.B. Polynome niedriger Ordnung. Interpolationsverfahren führen in der Regel zu einer Reduzierung der Streuung des betreffenden Merkmals (vgl. Cressie 1993).

Die bekanntesten Methoden zur Lösung des Interpolationsproblems sind *die Thiessen-Polygon-Methode*, die *Triangulation*, *radiale Basisfunktionsmethoden*, *Inverse Distanzverfahren* (*Shepard-Methode*) und *Krigingverfahren*.

Die *Approximations-* bzw. *Ausgleichungsverfahren* werden für trendangehende Vorhersagen eingesetzt, bei denen die Streuung noch kleiner ist. Auf die Einhaltung der Messpunkttreue wird dabei verzichtet. Detailtreue Vorhersagen, die sich mit einem minimalen Fehler in den störgrößenfreien Verlauf der zu untersuchenden Realisierung einpassen, werden durch Punktkriging erreicht. Dieses Verfahren wird auch für die weitere Arbeit benutzt. Bei detailtreuen Krigingvorhersagen werden Glättungseffekte, die zu einer Streuungsreduktion führen, jedoch oft als Nachteil empfunden. Deshalb gibt es Verfahren zur Glättungskompensation, z.B. das Constrained Kriging nach Cressie. Die Streuungsreduzierung kann auch mit einer *bedingten Simulation* umgangen werden, die auf der Basis der aus den Messwerten geschätzten geostatistischen Modellparameter durchgeführt wird. Auch beim Punktkriging gibt es noch Glättungseffekte, die sich durch die bedingte Simulation sehr gut veranschaulichen lassen. Bei der bedingten Simulation werden die mit Messfehlern behafteten Beobachtungen beibehalten. Zwischen den Beobachtungen sollen die Merkmalsausbildungen so wie die Realisierungen des angenommenen geostatistischen Modells variieren. Bereits die Simulation von 100 Realisierungen liefert ein anschauliches Bild über die noch vorhandene Unsicherheit. Im Mittel über alle Vorhersagen liegt die Krigingvorhersage und aus den Abweichungen vom Mittel kann die Krigingvarianz ermittelt werden. Die Wahrscheinlichkeit von Schwellwertüberschreitungsängen kann durch Abzählen ermittelt werden (Menz, Vorlesung Geomodellierung).

Bei der Ausgleichung wählt man geeignete Funktionen aus, die an die Messwerte unter Aufgabe der Messpunkttreue angepasst werden.

Bei der Anpassung nach der Methode der kleinsten Quadrate werden die Funktionswerte an den Messstellen so bestimmt, dass die Quadratsumme der Differenzen zwischen den Mess- und Funktionswerten minimal wird. Unter dieser Optimierungsbedingung ist die Trendfunktion zu schätzen. Als Beispiel für ein Ausgleichungsverfahren kann z.B. die Trendflächenanalyse genannt werden.

Man spricht von *Vorhersage*, wenn auf der Basis von Beobachtungen der Verlauf der Realisierung zwischen den Messstellen geschätzt werden soll. Dabei wird die Messpunkttreue nicht gefordert. Zu den bekanntesten Vorhersageverfahren gehören die *Prädiktion*, die *Kollokation* und das *Kriging*. Krigingverfahren wurden zunächst als Interpolationsverfahren entwickelt. Ihre Weiterentwicklung führte jedoch zu Methoden, die die Messpunkttreue nicht erfordern, deshalb ist es mathematisch korrekt, die Krigingverfahren als Vorhersageverfahren zu bezeichnen. In der Literatur ist aufgrund der Geschichte der Geostatistik dennoch häufig von Interpolationsverfahren die Rede.

3.2 Geostatistische Verfahren

Georges Matheron war der erste, der den Begriff *Geostatistik* verwendete und definierte als „die Anwendung der Theorie der Zufallsfunktionen zur Aufklärung und Schätzung von Naturphänomenen“ (Matheron 1962 zitiert in Journel und Huijbregts 1978). So führte er auch den Begriff der *regionalisierten Variablen* ein. Klassische Anwendung dieser Theorie war zu jener Zeit z.B. die Schätzung des Erzgehaltes eines Gesteins im dreidimensionalen Raum.

Geostatistik ist derjenige Zweig der angewandten Statistik, der auf dem Konzept der regionalisierten Variablen beruht. Eine regionalisierte Variable $z(x,t)$ verändert sich in Raum und Zeit. In der Theorie der Geostatistik ist die regionalisierte Variable $z(x,t)$ die Realisierung einer schwach oder auch intrinsisch stationären Zufallsfunktion, also einer zufälligen (stochastischen) Komponente ($S(x,t)$) der Trends, also eine deterministische Komponente ($m(x,t)$), überlagert sein können:

$$z(x,t) = m(x,t) + S(x,t) \quad (3.1)$$

Vor der Durchführung geostatistischer Vorhersagen müssen die Modellparameter geschätzt werden. Dazu müssen die Messwerte von eventuell vorhandenen Trends befreit werden.

Das Grundmodell (3.1) muss darüber hinaus auch noch durch die Zufallsgrößen R erweitert werden, in denen die Messfehler sowie Infravariabilitäten ihre Berücksichtigung finden.

Regionalisierte Variablen weisen meist eine Erhaltensneigung in Raum und Zeit auf, d.h., die Variablenwerte von benachbarten Messorten/Messzeitpunkten sind in der Regel ähnlicher als an weiter voneinander entfernten – entsprechend dem ersten Gesetz der Geographie „die Natur macht keine Sprünge“ (Haggett 1975). In der Geographie ist die rein deterministische Beschreibung eines Prozesses in der Regel nicht möglich. Zur Beschreibung solcher komplexer Prozesse können stochastische Prozesse herangezogen werden. Existiert an einem Punkt ein Wert und sind die umliegenden Punkte bekannt, hängen diese mit dem Punkt über die Kovarianz bzw. das Variogramm zusammen. Es ist eine räumliche (zeitliche) Strukturfunktion, die den Übergang von typisch hoher Kovarianz eng benachbarter Werte zu niedrigerer Kovarianz von weiter voneinander entfernten Werten beschreibt. Es quantifiziert also die räumliche bzw. zeitliche Erhaltensneigung und ist ein (inverses) Maß für die räumliche (zeitliche) Autokorrelation der Werte.

Vor der Ausführung geostatistischer Vorhersagen müssen die Variogrammmodellparameter geschätzt werden. Dies erfolgt im Rahmen der Variogramm- oder Strukturanalyse (vgl. Kapitel 3.2.1).

Um einfache geostatistische Verfahren, wie z.B. Ordinary Kriging, anwenden zu können, muss der Prozess bestimmte Stationaritätsbedingungen erfüllen, d.h. es soll kein Trend vorliegen. Deshalb ist vor der Anwendung dieser geostatistischer Vorhersageverfahren eine Trendbereinigung der Messwerte erforderlich (siehe dazu Kapitel 5.2), um die in der Literatur geforderte Stationarität des Merkmals $Z(x)$ zu gewährleisten. Im Falle von Ozonimmissionen hat man es jedoch mit einem Merkmal zu tun, dessen stochastische Komponente von externen Drifts überlagert wird, wie z.B. die Höhenlage, der Grad der Verkehrsbeeinflussung und die aktuelle Wetterlage. Deshalb wird nicht die Stationarität des Merkmals selbst, sondern die Stationarität der stochastischen Komponente $S(x)$ nach dem Abziehen der Drift bzw. des Trends gefordert.

Momente und Stationarität

Erwartungswert (Moment 1. Ordnung)

Sei $Z(x)$ ein Zufallsfeld. Der Erwartungswert von $Z(x)$ ist gegeben durch: $E [Z(x)] = m(x)$

In der Geostatistik werden drei Momente 2. Ordnung unterschieden:

- i) Die Varianz von $Z(x)$. Sie ist wie der Erwartungswert eine Funktion von x und definiert als das zentrale Moment 2. Ordnung der Zufallsvariablen $Z(x)$, d.h.

$$\text{Var}[Z(x)] = E[(Z(x) - m(x))^2].$$
 - ii) Die Kovarianz. Die Kovarianz existiert, wenn die Varianzen zweier Zufallsvariablen $Z(x_1)$ und $Z(x_2)$ an den Punkten x_1 und x_2 existieren, und ist wie folgt definiert

$$C(x_1, x_2) = E[(Z(x_1) - m(x_1))(Z(x_2) - m(x_2))].$$
 - iii) Das Variogramm. Es ist definiert als die Varianz des Inkrements $[Z(x_1) - Z(x_2)]$

$$2g(x_1, x_2) = E[(Z(x_1) - Z(x_2))^2] = \text{Var}[Z(x_1) - Z(x_2)].$$
- Die Funktion $g(x_1, x_2)$ wird als Semivariogramm bezeichnet. (3.2)

Von einer Zufallsfunktion bzw. einem Zufallsfeld $Z(x)$ wird gesprochen, wenn allen Punkten x eines Raumbereiches Zufallsgrößen Z zugeordnet sind. Dabei wird gefordert, dass der Raumbereich kontinuierlich durch Punkte gefüllt ist. Die Realisierung eines Zufallsfeldes $z(x)$ heißt in der Geostatistik regionalisierte Variable. Von dieser Realisierung werden an den Beobachtungsstellen $x_1, \dots, x_n$ die Messwerte $z_1, \dots, z_n$ entnommen. Aufgabe der Geostatistik ist es, auf der Basis dieser Messwerte den Verlauf der Realisierung zwischen und außerhalb der Messstellen vorherzusagen. Die Lösung dieser Aufgabe ist möglich, wenn in den Modellannahmen stationäre Zufallsfunktionen vorausgesetzt werden.

In der Geostatistik werden die zu untersuchenden Merkmale $Z(x)$ als *schwach stationäre* Zufallsfunktionen (second order covariance stationarity) angesehen, wenn eine translationsinvariante Kovarianzfunktion existiert und der Erwartungswert und die Varianz konstant, also unabhängig von Ort und Zeit, sind. Noch allgemeiner ist die Beschränkung auf schwach stationäre Merkmalsdifferenzen ($Z(x) - Z(x-h)$), auf *intrinsische Stationarität* (second order variogram stationarity).

Um statistisch gesicherte Aussagen treffen zu können, wird eine große Anzahl von Realisierungspaaren $[z(x_i), z(x_k)]$ gebraucht. Eine Zufallsfunktion ist im engeren Sinne stationär bzw. streng stationär, wenn ihre ein- und mehrdimensionalen Verteilungsfunktionen translationsinvariant sind. Eine Zufallsfunktion ist stationär 2. Ordnung (schwach stationär), wenn die Translationsinvarianz nur von den ersten beiden Momenten gefordert wird:

- i) der Erwartungswert $E[Z(x)]$ existiert und nicht von x abhängig ist, d.h.

$$E[Z(x)] = m,$$
- ii) für jedes Paar von Zufallsvariablen $[Z(x), Z(x+h)]$ die Kovarianz existiert und nur von der Distanz h zwischen den Stützpunkten abhängt:

$$C(h) = E[Z(x+h) Z(x)] - m^2 \quad (3.3)$$

Die Stationarität der Kovarianz impliziert die Stationarität der Varianz und des Semivariogramms

$$\begin{aligned} \text{Var}[Z(x)] &= E[(Z(x)-m)^2] = C(0), & \text{und} \\ g(h) &= \frac{1}{2} E[(Z(x+h) - Z(x))^2] = C(0) - C(h). \end{aligned} \quad (3.4)$$

Im stationären Fall sind Kovarianz und Variogramm also alternative Maße zur Beschreibung des räumlichen Zusammenhangs.

Für beste lineare und erwartungstreue Vorhersagen ist von Matheron die Bezeichnung Kriging (Krigage) zu Ehren des südafrikanischen Bergbauingenieurs D.G. Krige eingeführt worden. Mit unterschiedlichen Attributen versehen ist Kriging als Sammelbegriff zur Bezeichnung geostatistischer Vorhersagen auch später beibehalten worden. Und zwar auch dann, wenn die ursprünglichen Eigenschaften der Vorhersage fallengelassen wurden (z.B. Bayessches Kriging (nicht erwartungstreu) oder Disjunktes Kriging (nicht linear)).

Ein Vorteil der geostatistischen Verfahren im Vergleich zu klassischen räumlichen Vorhersageverfahren (Inverse Distanzen, Triangulation usw.) ist, dass zu jeder Vorhersage an einem Gitterpunkt auch der zugehörige Vorhersagefehler, die sogenannte Krigevarianz, angegeben wird und damit Aussagen über die Zuverlässigkeit der Vorhersage gemacht werden können (Stoyan et al. 1997). Im Unterschied zur klassischen Statistik müssen Beobachtungen in der räumlichen Statistik nicht mehr unabhängig voneinander sein.

Geostatistische Verfahren verlangen gegenüber einfachen Verfahren wie Thiessen-Polygone, Triangulation oder Inversen-Distanz-Verfahren einen höheren Aufwand bei der Datenanalyse und Modellierung sowie höhere Rechenzeiten, die in der Regel jedoch durch die präziseren Ergebnisse gerechtfertigt werden.

Das geostatistische Konzept wird ausführlich dargestellt in den Werken von Matheron 1971, Journel und Huijbregts 1978, Cressie 1993, Chilès und Delfiner 1999, Akin und Siemes 1988, Isaaks und Srivastava 1989, Wackernagel 1995 und Armstrong 1998.

3.2.1 Variographie

Unter der Voraussetzung von intrinsischer Stationarität können aus den Beobachtungen Variogramme berechnet werden. Das Variogramm charakterisiert das Verhalten einer Variablen im Raum.

Es beschreibt die Reichweite des räumlichen Zusammenhangs und das Maß der Nachbarschaftsbeeinflussung. Insbesondere beschreibt das Verhalten des Variogramms in Ursprungsnähe (Differenzierbarkeit) die „Glattheit“ der Variablen im Raum.

3.2.1.1 Experimentelle Variogrammwolke und experimentelles Variogramm

Für jede Punktkombination erhält man nach Formel (3.2) einen (Semi-)Variogrammwert:

$$g(x_1, x_2) = \frac{1}{2}(Z(x_1) - Z(x_2))^2 \quad (3.5)$$

Zeichnet man jeden einzelnen nichtklassifizierten Variogrammwert gegen die Entfernungen h der Messpunkte auf, so erhält man die sogenannte Variogrammwolke (vgl. Abb. 3.1). Die Variogrammwolke kann zur Identifizierung von Ausreißern sehr nützlich sein.

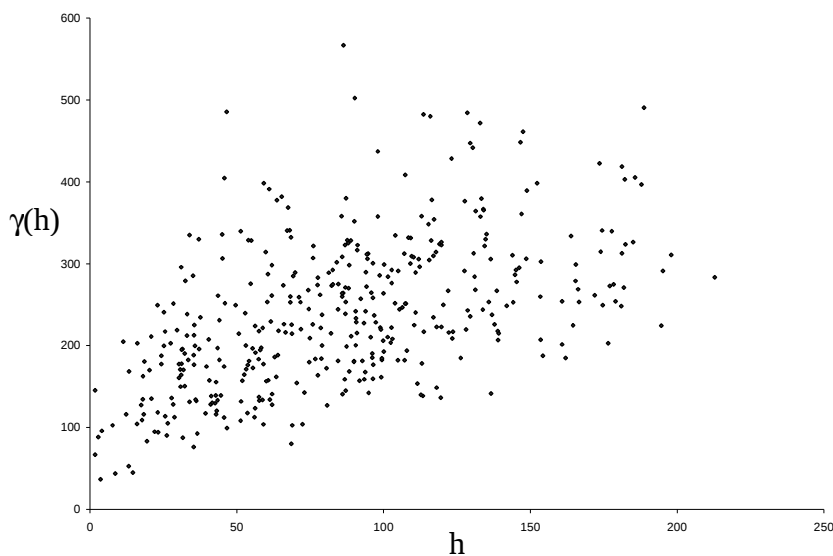


Abb. 3.1: Beispiel einer experimentellen (Semi-)Variogrammwolke

In der Regel werden jedoch die Variogrammwerte einer bestimmten Distanzklasse gemittelt und der entsprechende Variogrammwert der Distanzklasse über dem Mittelpunkt oder besser dem Schwerpunkt der betreffenden Distanzklasse dargestellt. Für jedes Lag h (in gleicher Richtung) werden die Differenzen zwischen benachbarten Punkten über die gesamte Datenmatrix quadriert und aufsummiert und schließlich durch die Anzahl der in die Berechnung eingegangenen Punktepaare dividiert. Das experimentelle (Semi-)variogramm ist eine diskrete Funktion.

Normalerweise steigt das Variogramm mit zunehmendem Abstand h an und erreicht ab einer bestimmten Distanz (Reichweite, a) einen Grenzwert (Schwellenwert, C), um den es dann nur noch variiert oder ohne obere Beschränkung ansteigt (vgl. Abb. 3.2). Für stationäre Variablen entspricht der Schwellenwert der Varianz der Ausgangsdaten, d.h., für $h \geq a$ gilt:

$$\begin{aligned} g(h) &= \frac{1}{2} \text{Var}[Z(x+h)-Z(x)] = \frac{1}{2} \{ \text{Var}[Z(x+h)] + \text{Var}[Z(x)] - 2 \text{Cov}(Z(x+h), Z(x)) \} \\ &= \frac{1}{2} \{ \text{Var}[Z(x+h)] + \text{Var}[Z(x)] \} = s^2 \end{aligned} \quad (3.6)$$

Das Variogramm ($2g(h)$) kann also interpretiert werden als die Streuung des Vorhersagefehlers, der gemacht wird, wenn $Z(x)$ als Vorhersage an der Stelle der im Abstand h gewählten Vorhersagestelle $x+h$ benutzt wird (Menz 1994).

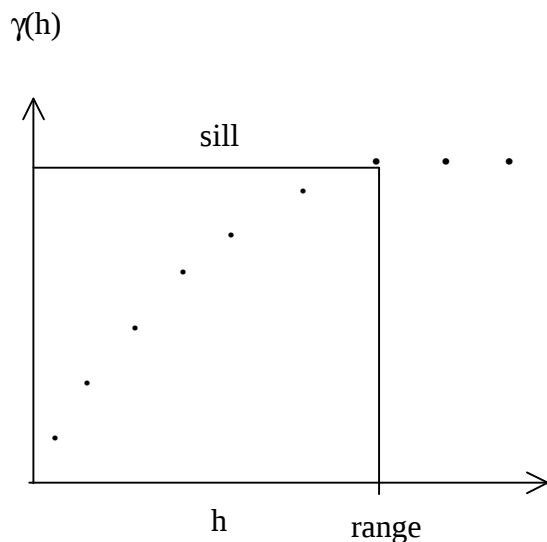


Abb. 3.2: Skizze eines experimentellen (Semi-)Variogramms

3.2.1.2 Variogrammmodelle

An das experimentelle Variogramm kann eine Funktion angepasst werden, die einige Bedingungen erfüllen muss (bedingt negativ semidefinit). Sie beginnt im Ursprung des Koordinatensystems (kann bei Vorliegen eines *Nuggeteffektes* hier aber auch diskontinuierlich sein), steigt mit zunehmender Distanz h an und erreicht bei einer bestimmten Distanz (*range*) einen gewissen Betrag (*sill*). Variogrammmodelle werden meist durch ihren *Variogrammtyp* und die Parameter *sill*, *range* und *Nuggeteffekt* charakterisiert. Bei der *Maternschen Variogrammklasse* sind weitere Parameter zur Modellspezifizierung notwendig.

Es bestehen Zusammenhänge zwischen der Form des Variogramms und dem räumlichen Verhalten der regionalisierten Variablen. So bedeutet eine parabolische Form im Ursprung Differenzierbarkeit der Variablen, eine lineare Form entspricht einer nicht differenzierbaren Variablen. Ein konstantes Variogramm signalisiert einen reinen Zufallsprozess (*weißes Rauschen*). In der Literatur wird das Gaußsche Variogrammmodell jedoch stark kritisiert, weil es zu sehr optimistischen Vorhersagefehlern führt (Stein 1999).

Viele Begriffe der Geostatistik stammen aus dem Goldbergbau, für den sie ursprünglich entwickelt wurde. Als Nuggeteffekt bezeichnet man in Anspielung auf einen Goldnugget die Restvarianz im Ursprung. Das Variogramm beginnt mit $g(0) = 0$. Für $g(0+e)$ liegt jedoch oft ein Wert größer Null vor, der auf Messfehler sowie Infravariabilitäten (Variabilitäten über kleinere Abstände als das Messintervall) zurückzuführen ist. Liegt ein Nuggeteffekt vor, so sollte er inhaltlich diskutiert werden.

Der Grenzwert oder Schwellenwert (sill) des Variogramms bezeichnet den Variogrammwert für h gegen unendlich. Als Schwellenwert wird oft die Varianz der Stichprobe herangezogen. Man unterscheidet zwischen Variogrammmodellen, die ihren sill erreichen (transitive Modelle, z.B. Sphärisches Variogrammmodell) und solchen, die ihren sill nur asymptotisch erreichen (intransitive Modelle, z.B. Gaußsches und Exponentielles Variogrammmodell). Die Reichweite (range) beschreibt die Distanz, bis zu der eine Abhängigkeit zwischen den Messwerten besteht. Bei intransitiven Modellen wird im allgemeinen für 95 % des sills der range definiert (Akin u. Siemes 1988).

Im folgenden werden die Formel für die Berechnung der wichtigsten Variogrammmodelle angegeben, dabei bezeichnet C_0 den Nuggeteffekt, C den Schwellenwert abzüglich des Nuggeteffektes, C_0+C entsprechend den Gesamtsill, h die Distanz und a die Reichweite. Der Wert von $g(0)$ ist definitionsgemäß gleich Null.

Sphärisches Variogrammmodell:

$$g_{sph}(h) = \begin{cases} C_0 + C \left(\frac{3}{2} \frac{|h|}{a} - \frac{1}{2} \left(\frac{|h|^3}{a^3} \right) \right) & 0 < |h| < a \\ C_0 + C & |h| \geq a \end{cases} \quad (3.7)$$

Das Sphärische Modell wird in der Praxis am häufigsten verwendet. Ihm liegt ein relativ einfacher polynomialer Ausdruck zu Grunde.

Seine Form beschreibt eine häufig in experimentellen Variogrammen auftretende Form recht gut: ein etwa linearer Anstieg bis zu einer gewissen Distanz mit anschließender Stabilisierung.

Exponentielles Variogrammodell:

$$g_{\text{exp}}(h) = C_0 + C \left(1 - \exp \left(-\frac{|h|}{a} \right) \right) \quad , \quad h > 0 \quad (3.8)$$

Das Exponentielle Modell erreicht seinen Schwellenwert nur asymptotisch.

Gaußsches Variogrammodell:

$$g_{\text{gauss}}(h) = C_0 + C \left(1 - \exp \left(-\frac{|h|^2}{a^2} \right) \right) \quad , \quad h > 0 \quad (3.9)$$

Maternsche Variogrammklasse:

$$g_h(r) = C \left(1 - \left(\frac{1}{2^{n-1} \Gamma(n)} \left(\frac{2n^{1/2} r}{a} \right)^n K_n \left(\frac{2n^{1/2} r}{a} \right) \right) \right) \quad r \triangleq |h| \quad (3.10)$$

Dabei ist n der Glattheitsparameter, r der Radius, $\Gamma(n)$ die Gammafunktion von n und K_n eine modifizierte Besselfunktion von n . h steht für die Abhängigkeit Maternscher Variogramme vom sill C , vom Glättungsparameter n und dem range a .

Das Gauß-Modell findet Verwendung bei extrem kontinuierlichen Prozessen, z.B. bei der Modellierung glazialer Oberflächen im antarktischen Bereich oder der submarinen Morphologie (vgl. z.B. Herzfeld 1989). Es sollte aus numerischen Gründen mit einem Nugget-Modell kombiniert werden (Armstrong 1998). Das Maternsche Modell wird von Stein 1999 beschrieben und als vorteilhaft insbesondere im Vergleich zum Gaußschen Variogrammodell bezeichnet. Über die Variogrammanpassung konstatiert Davis (1986) „It is to a certain extent an art, requiring experience, patience and sometimes luck.“. Die Variogrammanpassung ist ein Verfahren, bei dem ein gutes Verständnis des zugrundeliegenden geographischen Problems notwendig ist.

Dies stellt auch Christakos 2000 fest und wird in dieser Studie (vgl. Kapitel 6.2 Nuggetproblem) noch deutlich werden. Viele Autoren (z.B. Armstrong, Isaaks und Srivastava, Chilès und Delfiner) betonen, dass die Anpassung eines Variogrammodells deshalb nicht rein analytisch im Sinne der Minimierung der Fehlerquadratsumme zu erfolgen habe.

3.2.2 Kriging

Beste lineare erwartungstreue Vorhersagen werden in der Geostatistik als Kriging bezeichnet, benannt nach dem südafrikanischen Bergbauingenieur D.G. Krige. Kriging gestattet die Vorhersage der Merkmalswerte an Punkten (*Punktkriging*) und der Merkmalswertdurchschnitte in Blöcken (*Blockkriging*).

Von Messnetzen mit unregelmäßig verteilten Punkten wird häufig zu Rastern mit gleichmäßig verteilten Punkten übergegangen. An den Rasterpunkten werden über Punktkriging Schätzwerte berechnet. Dabei werden die Gewichte w_α so optimiert, dass die Vorhersagevarianz (Varianz des Vorhersagefehlers) minimiert wird, und zwar unter der Nebenbedingung, dass die Vorhersage erwartungstreu ist. Der Krigingschätzer wird deshalb auch als sogenannter *BLUP* (best linear unbiased predictor) bezeichnet. Von einem *BLUE* (best linear unbiased estimator) spricht man dagegen bei Schätzproblemen, wenn es darum geht, unbekannte aber feste Parameter zu schätzen. In der Literatur werden die Begriffe Schätzung und Vorhersage jedoch oft synonym verwandt und statt von einem Prädiktor von einem Schätzer gesprochen. Krigingverfahren minimieren also den Schätzfehler (best) und liefern unter allen linearen (linear) eine erwartungstreue (unbiased) Vorhersage (predictor). Ein besonderer Vorzug von Krigingverfahren ist, dass eine explizite Angabe der Vorhersagefehler möglich ist. Mit dem Oberbegriff Kriging wird eine Vielzahl von Schätzverfahren bezeichnet, die man entsprechend ihrer Voraussetzungen und Arbeitsweisen als stationär oder nichtstationär, linear oder nichtlinear, uni- oder multivariat charakterisieren kann. Bei der räumlichen Vorhersage von Merkmalen müssen oft Driftvariablen berücksichtigt werden. Im Falle von Ozon kommen als Driftvariablen z.B. die Meereshöhe, der Grad der Verkehrsbeeinflussung sowie die Wetterlage in Betracht. Es gibt verschiedene, in der Literatur beschriebene Möglichkeiten zur Integration dieser Driftvariablen in die Vorhersage. Goovaerts 1999 beschreibt für die Vorhersage von Regendaten in Portugal verschiedene Ansätze zur Integration der Höheninformation; Simple Kriging mit variierenden lokalen Mittelwerten, Kriging mit externer Drift und Kokriging.

Außerdem werden einfache Verfahren wie die Thiessen-Polygonmethode und Inverse-Distanz-Verfahren mit Ordinary Kriging-Ergebnissen verglichen. Die größten Vorhersagefehler entstehen dabei bei den einfachen Verfahren. Beim Kriging ist der Vorhersagefehler am geringsten. Im folgenden werden das *Ordinary Kriging* (OK), *Universelles Kriging* (UK) sowie das *Kriging mit externer Drift* (KED) beschrieben.

3.2.2.1 Ordinary Kriging

Gegeben sei ein Zufallsfeld. Gesucht ist nun der Wert Z am Ort x_0 . Zur Vorhersage werden n in der Umgebung von x_0 liegende Punkte x_a herangezogen, wobei jedem dieser Stützpunkte ein Gewicht w_a zugeordnet wird. Der Prädiktor $Z^*(x_0)$ lautet dann:

$$Z_{OK}^*(x_0) = \sum_{a=1}^n w_a Z(x_a) \quad (3.11)$$

Die Daten werden als Realisierungen eines intrinsisch-stationären Zufallsfeldes $Z(x)$ mit dem Variogramm $g(h)$ modelliert. Die Erwartungstreue wird durch die Bedingung

$$1 - \sum_{a=1}^n w_a = 0 \quad (3.12)$$

garantiert (vgl. auch (3.14)).

Die Vorhersagevarianz $s_P^2 = \text{Var}(Z^*(x_0) - Z(x_0))$ lautet dann:

$$\begin{aligned} s_P^2 &= E[(Z^*(x_0) - Z(x_0))^2] \\ &= -g(x_0 - x_0) - \sum_{a=1}^n \sum_{b=1}^n w_a w_b g(x_a - x_b) + 2 \sum_{a=1}^n w_a g(x_a - x_0) \end{aligned} \quad (3.13)$$

Die w_a erhält man durch die Minimierung dieser Schätzvarianz unter Einhaltung von (3.12), der Bedingung der Erwartungstreue. Dazu benutzt man die Lagrangesche Funktion F :

$$\Phi = s_P^2 + 2m_{OK}(1 - \sum_{a=1}^n w_a) \quad (3.14)$$

Die Minimierung von (3.14) führt zu folgendem linearem Gleichungssystem, das zu lösen ist:

$$\begin{pmatrix} g(x_1 - x_1) & \cdots & g(x_1 - x_n) & 1 \\ \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ g(x_n - x_1) & \cdots & g(x_n - x_n) & 1 \\ 1 & \ddots & 1 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} w_1^{OK} \\ \vdots \\ w_n^{OK} \\ m_{OK} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} g(x_1 - x_0) \\ \vdots \\ g(x_n - x_0) \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

Im Lösungsvektor stehen die optimalen Gewichte w_a und der Lagrange-Faktor μ_{OK} . Kriging kann als ein echtes Interpolationsverfahren angesehen werden, wenn der Schätzwert gleich dem Stützwert ist, d.h. $Z^*(x_0) = Z(x_a)$, bei $x_0 = x_a$.

Das ist der Fall, wenn keine Störgrößen vorhanden sind. Beim Auftreten von Störgrößen darf die Messwerttreue jedoch nicht gefordert werden.

3.2.2.2 Universelles Kriging

Ein Krigingverfahren für den nichtstationären Fall stellt das sogenannte Universelle Kriging (Universal Kriging) dar. Liegt eine richtungsgebundene Zu- oder Abnahme der Probenwerte (*Drift* bzw. *Trend*) vor, muss auf weiterentwickelte Krigingverfahren zurückgegriffen werden. In der Geostatistik wird der Ausdruck Drift bevorzugt verwendet (Akin u. Siemes 1988). Universelles Kriging ist ein geeignetes Verfahren zur Berücksichtigung von Driftfunktionen, die der stationären Zufallsfunktion $m(x)$ nach (3.1) überlagert sein können:

$$\begin{aligned} m(x) &= a_0 + a_1x + a_2x^2 \quad \text{bzw.} \\ m(x,y) &= a_0 + a_1x + a_2y + a_3xy + a_4x^2 + a_5y^2 \end{aligned} \quad (3.16)$$

Die Methode geht auf Matheron zurück. Die Voraussetzung der Stationarität wird fallengelassen und durch generellere Hypothesen ersetzt. Die Funktion $m(x)$ wird als deterministisch angesehen. Die stochastische Komponente ist eine Zufallsfunktion, die das Verhalten der Residuen beschreibt und wird als intrinsisch stationär angenommen. Die Driftfunktion $m(x)$ kann laut Matheron 1971 durch eine in den unbekannten Parametern a_i lineare Funktion folgender Form approximiert werden:

$$m(x) \equiv f(x) = \sum_{l=0}^k a_l f^l(x) = a_l f^l(x) \quad (3.17)$$

Dabei sind die $f^l(x)$ bekannte festgelegte Funktionen und die a_l unbekannte Koeffizienten. Im einfachsten Fall werden die Driftfunktionen als niedriggradige Polynome verstanden und als zusätzliche Nebenbedingungen mit ins Kriginggleichungssystem aufgenommen. Besitzt das Driftpolynom l unbekannte Parameter a_l , so ergeben sich l Bedingungen zur Einhaltung der Erwartungstreue. In der Geostatistik spricht man von der sogenannten Universalitätsbedingung, weil sie die Erwartungstreue für alle beliebig wählbaren a_l garantiert.

Die Lösung des Minimierungsproblems erfolgt analog zum Ordinary Kriging mit der Methode von Lagrange (vgl. Kapitel 3.2.2.1). Die Herleitung ist in Menz u. Pilz 1994 oder Cressie 1993 zu finden. Zur Schätzung des Variogramms müsste zunächst die Drift eliminiert werden. Dies ist jedoch nicht so leicht durchführbar, weil die Drift unbekannt ist.

Es ist grundsätzlich nicht möglich, das zugrundeliegende Variogramm (weder mittels der Probenwerte noch der Residuen) direkt in unverzerrter Form (erwartungstreu) zu schätzen (Akin u. Siemes 1988). In der Praxis behilft man sich, indem man anhand einfacher Trendpolynome die Residuen ermittelt und daraus das Variogramm der Residuen berechnet. Dieses Variogramm ist allerdings verzerrt. Die entscheidende Schwäche des Universellen Krigings liegt also in der Schwierigkeit, das zugrundeliegende Variogramm zu schätzen. In Anbetracht dieser Schwäche ist von Matheron und Delfiner die Methode der intrinsischen Zufallsfunktionen der Ordnung k (IRF- k) entwickelt worden (Chilès u. Delfiner 1999). Für eine erwartungstreue Schätzung des Variogramms im Falle von Universellem Kriging kann auch auf Boogaart u. Brenning 2001 verwiesen werden. Für polynomiale Trends empfiehlt sich die Verwendung von intrinsischen Zufallsfunktionen k -ter Ordnung (IRF- k) (Chilès u. Delfiner 1999). Universelles Kriging mit polynomialer Drift scheint aufgrund der Komplexität der Drift im Falle von Ozon jedoch kein adäquates Verfahren, weil die Drift nicht allein räumlich erklärt werden kann, sondern von zusätzlichen externen Variablen abhängig ist. Trendelimination über Gleitmittelglättung und Ordinary Kriging mit einem zweckmäßig gewählten Einwirkungsbereich sind praktisch geeignete Vorgehensweisen.

3.2.2.3 Kriging mit externer Drift

Kriging mit externer Drift ist ein geostatistisches Vorhersageverfahren, das zusätzliche Informationen aus anderen (externen) Variablen in den Vorhersageprozess integriert.

Beim Kriging mit externer Drift (KED) handelt es sich um eine spezielle Formulierung des Universellen Krigings. Dabei werden Funktionen $f^l(x)$ berücksichtigt, die die mittlere Form des Zufallsfeldes $Z(x)$ beschreiben. Für die Anwendung dieser Methode ist folgendes zu berücksichtigen:

- i) die Werte der externen Driftvariablen sollten an allen Mess- und Vorhersagepunkten bekannt sein,
- ii) es muss ein ausgeprägter Zusammenhang zwischen der vorherzusagenden und den externen Driftvariablen bestehen.

Formal lässt sich Kriging mit externer Drift in Anlehnung an Wackernagel (1995) wie folgt darstellen:

$$\begin{aligned}
 E[Z^*(x_0)] &= \sum_{a=1}^n w_a E[Z(x)] = \sum_{a=1}^n w_a \sum_{l=0}^k a_l f^l(x_a) \\
 &= \sum_{l=0}^k a_l \sum_{a=1}^n w_a f^l(x_a) = \sum_{l=0}^k a_l f^l(x_0) = E[Z(x_0)]
 \end{aligned} \tag{3.18}$$

Die Erwartungstreue ist also garantiert. Der ortsabhängige Erwartungswert der betrachteten Variablen Z am Punkt x wird als lineare Funktion der raumvarianten externen Driftvariablen $f^l(x)$ ($l=1,...,k$) angesehen, d.h., die mittlere räumliche Struktur der regionalisierten Variablen kann durch eine oder mehrere Driftvariablen erklärt werden. Aus (3.16) folgen die $k+1$ Bedingungsgleichungen:

$$\sum_{a=1}^n w_a f^l(x_a) - f^l(x_0) = 0 \quad \text{mit } l = 0, ..., k \tag{3.19}$$

Sie erfüllen die Erwartungstreue für alle beliebig wählbaren Parameter a_l der Driftfunktion (Universalitätsbedingung). Der Prädiktor des Externen-Drift-Verfahrens unterscheidet sich in seiner Form als Linearkombination verfügbarer Messwerte prinzipiell nicht vom OK-Prädiktor:

$$Z_{KED}^*(x_0) = \sum_{a=1}^n w_a Z(x_a) \tag{3.20}$$

Die Vorhersagevarianz soll hier minimiert werden unter der zusätzlichen Nebenbedingung, dass:

$$\sum_{a=1}^n w_a f^l(x_a) = f^l(x_0) \quad (3.21)$$

Außerdem seien die externen Driftfunktion $s_i(x_a)$, $s_i(x_0)$ mit $i = 1, \dots, N$ bekannt und in die Vorhersage einzubeziehen. Zur Gewährleistung der Erwartungstreue müssen auch für diese Driftfunktionen die folgenden N Bedingungen berücksichtigt werden:

$$\sum_{a=1}^n w_a s_i(x_a) - s_i(x_0) = 0 \quad \text{mit } i = 1, \dots, N \quad (3.22)$$

Mit den Lagrangeschen Multiplikatoren $2\mu_l$ und $2\mu_i$ werden sie zur Schätzvarianz addiert, bevor die Minimierung erfolgt. Die Minimierung führt zu folgendem Kriging-Gleichungssystem:

$$\begin{aligned} \sum_{b=1}^n w_b g(x_a - x_b) - \sum_{l=0}^k m_l f^l(x_a) - \sum_{i=1}^N m_i s_i(x_a) &= g(x_0 - x_a) \quad a = 1, \dots, n \\ \sum_{b=1}^n w_b f_l(x_b) &= f_l(x_0) \quad l = 0, \dots, k \\ \sum_{b=1}^n w_b s_i(x_b) &= s_i(x_0) \quad i = 1, \dots, N \end{aligned} \quad (3.23)$$

Im Vergleich zum Ordinary Kriging sind in (3.23) über die Universalitätsbedingungen, die die Driftvariablen einbeziehen, weitere Bedingungen hinzugekommen. Im einfachsten Fall sind die Driftfunktionen niedriggradige Polynome, die als zusätzliche Nebenbedingungen mit ins Kriginggleichungssystem aufgenommen werden. Besitzt das Driftpolynom l unbekannte Parameter a_l , so ergeben sich 1 Bedingungen zur Einhaltung der Erwartungstreue.

3.3 Raumzeitliche Geostatistik

Raumzeitliche Modelle in der Geostatistik werden derzeit stark diskutiert und sind Gegenstand intensiver Forschung.

Die Gründe dafür liegen in der Vielzahl von Anwendungen, die in den Umwelt- und Gesundheitswissenschaften aufgetreten sind, sowie in den gestiegenen Computerleistungen. Raumzeitliche Datensätze sind in der Regel sehr groß und erfordern selbst für einfache Modelle große Rechnerkapazitäten. Es scheint jedoch nur wenige Methoden zu geben, die rechentechnisch effizient und ausreichend generell für den Routinegebrauch sind.

Modelle für raumzeitliche Daten werden oft durch die Kombination von Zeitreihenmodellen und variogrammbasierten Modellen der räumlichen Statistik konstruiert. Im Rahmen der Zeitreihen sind ARMA-Modelle (vgl. Kapitel 8.2) für stationäre Daten verbreitet. Für die räumliche Vorhersage werden meist isotrope Modelle verwendet. Ein Beispiel für die Verwendung instationärer und nicht-isotroper Daten liefern Sampson und Guttorp 1992 und Guttorp et al. 1994. Ihr Ansatz beruht auf einer Transformation des Koordinatensystems.

Stroud et al. 2001 beschreiben einen Ansatz, mit dem raumzeitliche Karten erzeugt werden, die keine strengen Annahmen wie Stationarität, Isotropie oder eine separable raumzeitliche Kovarianzfunktion voraussetzt. Sie modellieren die Mittelwertsfunktion als lokal gewichtete Mischung linearer Regressionen. Das Modell erlaubt es, zeitliche Komponenten wie Trends und Saisoneffekte zu berücksichtigen.

Laut Gneiting u. Schlather 2001 gibt es zwei allgemeine Zugänge, den geostatistischen Zugang und den modellbasierten Zugang zur Untersuchung der raumzeitlichen Variabilität von Umweltphänomenen. Der geostatistische Zugang basiert in der Regel auf einer Gaußschen Zufallsfunktion $Z(s;t)$, die an allen raumzeitlichen Koordinaten $(s;t)$ definiert ist. Das Modell der Zufallsfunktion wird durch die Kovarianzfunktion charakterisiert. Die Vorhersage ist für jeden Raum- und Zeitschritt erlaubt. Modellbasierte Zugänge beruhen auf der Anpassung von stochastischen Modellen an das vorliegende Problem. Die zugehörige raumzeitliche Kovarianzstruktur ist nicht stationär und zerfällt in eine Summe separater Funktionen und eine nicht-separable Serie von Matrizenprodukten. Die Autoren betonen, dass zeitstationäre Modelle für Studien im Umweltbereich mit täglicher Variabilität nicht angemessen sind, jedoch für bestimmte zeitliche Aggregationsstufen, z.B. tägliche, angebracht sein können. Wie viele andere Autoren auch, betonen sie den Mangel an angemessenen und flexiblen raumzeitlichen Kovarianzmodellen. So stellt auch Haas 1995 fest, dass die raumzeitlichen geostatistischen Methoden wesentlich weniger weit entwickelt sind als die rein räumlichen oder rein zeitlichen Methoden. Er gibt zu bedenken, dass in Cressie 1993 nur drei Seiten der Vorhersage raumzeitlicher Prozesse gewidmet sind.

Die raumzeitliche Modellierung wird vom Autor aber als eine der Hauptaufgaben der Forschung in der räumlichen Statistik angesehen (Cressie 1993, S. xvii).

Ein großes Problem für den Anwender besteht darin, dass die geostatistische Standardsoftware bislang lediglich für die räumliche Dimension (in der Regel zweidimensional) ausgelegt ist. Die Ozonkonzentration ist jedoch von drei Raumkoordinaten und der Zeit abhängig. Auch in der Fachliteratur werden nur selten mehrdimensionale Anwendungsfälle beschrieben.

Die Methoden der klassischen Geostatistik stoßen laut Christakos 2000 heute an ihre Grenzen. Sie wurden mit Erfolg vor allem zur räumlichen Interpolationen von Erz- bzw. Schadstoffgehalten in Gesteinen bzw. Böden eingesetzt. Oft hat man es in der Geostatistik aber mit raumzeitlichen Prozessen, also mit Prozessen die neben einer räumlichen Dynamik auch einer zeitlichen Dynamik unterliegen, zu tun.

Das Buch von Christakos 2000 (*Modern Spatiotemporal Geostatistics*) gibt eine Einführung in die Methoden der *Bayesian Maximum Entropy (BME)*, die verschiedene raumzeitliche Konzepte und Methoden umfasst. Als Grundvoraussetzung für die Entwicklung verbesserter mathematischer Modelle zur wissenschaftlichen Darstellung fordert Christakos das tiefere Verständnis des theoretischen Wissens. Der Schwerpunkt des Buches liegt auf der Beschreibung der Bayesian Maximum Entropy-Methode zur Untersuchung raumzeitlicher Verteilungen von geographischen Variablen. Die Ansätze zur Lösung von Umweltfragestellungen kommen im allgemeinen aus den Naturwissenschaften. Sie umfassen stochastische Analysen, die sowohl das ontologische Niveau (Erstellung von Modellen für physikalische Systeme) als auch das erkenntnistheoretische Niveau (Nutzen der Information über die physikalischen Systeme bei gleichzeitiger Integration von Vorstellungen aus verschiedenen anderen wissenschaftlichen Disziplinen) berücksichtigen. Dies sieht Christakos als Vorteil gegenüber der rein induktiven wissenschaftlichen Vorgehensweise, die lediglich auf linearen Relationen zwischen den Daten, Hypothesen und theoriefreien Methoden beruht (Christakos 2000). Die BME-Idee in der Geostatistik scheint zwar einsichtig, allerdings wird die Praxis erst zeigen müssen, inwiefern sich diese BME-Methode durchsetzen wird. Ein großes Problem für den Anwender besteht jedoch darin, dass BME-Methoden in der Geostatistik bislang noch nicht programmtechnisch realisiert sind.

In der vorliegenden Arbeit wird die raumzeitliche Ozonverteilung im dem Sinne vorhergesagt, dass räumliche Vorhersagen für verschiedene Zeitpunkte durchgeführt werden. Die zeitliche Vorhersage der Ozonkonzentration an den Stationen wird mit Verfahren der Zeitreihenanalyse durchgeführt.

Bei der geostatistischen Vorhersage der Ozonkonzentration wird die Abhängigkeit von der Höhenlage als externe Drift berücksichtigt. Auf eine simultane raumzeitliche Schätzung ist in dieser Arbeit noch nicht orientiert worden, weil es bisher noch zu wenig Erfahrungen bei der Variogrammodellierung raumzeitlicher Prozesse gibt. Außerdem sind die dabei zu lösenden Gleichungssysteme wesentlich größer, so dass mit numerischen Problemen bei der Lösung zu rechnen ist. Die in der Arbeit durchgeführten Untersuchungen können jedoch als vorbereitende Schritte für die simultane Ozonvorhersage in Raum und Zeit gewertet werden, die Gegenstand weiterführender Forschungen sein muss.

4. Datengrundlage

Im folgenden werden die für die Untersuchung zur Verfügung stehenden Primär- und Sekundärdaten sowie die Software (kommerzielle und selbst programmierte) für Ihre Verwaltung, Verarbeitung und Darstellung beschrieben. Es wird auf die Messwertproblematik im Sinne von fehlenden Messwerten und Fehlerquellen bei Messungen eingegangen.

4.1 Datenstruktur und Datenverwaltung

Die Messdaten wurden vom Sächsischen Landesamt für Umwelt und Geologie (LfUG) dankenswerterweise zur Verfügung gestellt. Bei den gelieferten Rohdatendateien handelt es sich um ASCII-files, die jeweils die Halbstundenmittelwerte einer Komponente (NO, NO₂, SO₂, O₃, Staub, Temperatur, Windrichtung, Windgeschwindigkeit) eines Jahres und einer Station enthalten. Dabei sind die Tage in Zeilen und die Halbstunden in Spalten angeordnet, so dass eine 365×48 -Matrix entsteht. Die Messwerte umfassen den Zeitraum 1/95 bis 12/99 (ca. 1200 Dateien, 120 MB). Die Information, um welche Station und welches Jahr es sich handelt, ist im Dateinamen enthalten; die Schadstoffkennung steht in der Datei selbst. Die Daten sind also zeitlich gesehen hochaufgelöst (pro Komponente ca. 2,6 Mio. Beobachtungen), räumlich gesehen liegen jedoch nur wenige Messwerte vor (zeitgleich 30 auf einer Fläche von 18000 km²). Die Ozonkonzentrationen des sächsischen Messnetzes sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ angegeben. Abweichend von dieser Einheit werden Ozonkonzentrationen auch als Volumenkonzentration in *ppbv* angegeben. Ein *ppbv* entspricht in der Regel etwa 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Der genaue Umrechnungsfaktor ist von der Bezugstemperatur (0° C, 20° C, 25° C) abhängig.

Bei der Einheitenumrechnung können also Unsicherheiten auftreten, v.a., wenn die den Messungen zugrundeliegende Bezugstemperatur nicht eindeutig ist.

Die Hauptaufgabe bestand zunächst darin, die in sehr umfangreichem Maße vorliegenden Daten in eine übersichtliche und vor allem weiterverarbeitbare Form zu bringen. Mit Hilfe eines C-Programmes, das die in den Dateinamen enthaltenen Informationen ließt, wurden die Daten in der gewünschten Form in eine Textdatei geschrieben. Diese Textdatei wurde anschließend in eine Datenbank importiert, so dass ein effektiver Zugriff der Programme möglich wird. Die Datenbank enthält pro Komponente fast 3 Millionen Beobachtungen. Es wurden Abfragen bestimmter Komponenten, Stationen und/oder Zeiträume durchgeführt, deren Ergebnisse in Textdateien exportiert, die mit entsprechenden C- und C++-Programmen weiterverarbeitet werden konnten.

Die Koordinaten der Messstationen sind als Gauß-Krüger-Koordinaten (Rechtswert, Hochwert) auf 10er Meter genau (sechsstellige Gauß-Krüger-Koordinaten) gegeben. Um eine Verzerrung bei der Darstellung in der Kartenebene zu vermeiden, sind die Koordinaten aller Stationen auf den vierten Meridianstreifen umgerechnet. Als weitere Informationsquelle steht das Digitale Höhenmodell (DHM) des Landes Sachsens in einer Auflösung von 2500 m $\times$ 2500 m zur Verfügung. Das Höhenmodell ist eine wichtige Sekundärinformationen bezüglich der Luftschadstoffbelastung.

Da die geostatistische Standardsoftware (*Variowin*, *GeoEAS*, *GSLIB*, *ISATIS*, *SURFER*) nur mit einer Realisierung an einer Messstelle arbeitet, war für die vorliegende Untersuchung die Programmierung geostatistischer Verfahren (Variographie und Kriging) notwendig, um die Zeitreiheneigenschaften (viele Realisationen an derselben Stelle) in den Daten ausnutzen zu können. Soweit wie möglich wurde jedoch auf Standardsoftware (*MATLAB*, *SURFER*, *ISATIS*), insbesondere für die Visualisierung der Ergebnisse sowie die Validierung der geschriebenen Programme, zurückgegriffen.

4.2 Messwertproblematik

Wenn man Messdaten verwendet, muss man sich bewusst sein, dass man sich mit folgenden Fehlerquellen auseinandersetzen muss:

- Bearbeitungsfehler beim Nutzer,
- Instrumentenfehler,

- systematische Ungenauigkeiten einzelner Messverfahren,
- Übertragungsfehler auf dem Weg zum Nutzer,
- Umrechnung von Einheiten,
- Positionsangaben der Messstationen,
- Zeitangaben der Messungen,
- Höhenabhängigkeit der Konzentration bei „Bodenmessungen“,
- Rauschen in den Daten,
- Repräsentativität der Messungen.

Durch Automatisierung und Standardisierung der Messungen können Bearbeitungsfehler weitgehend minimiert werden. Ansonsten muss mit dem Auftreten gravierender zufälliger Fehler, die sich durch Konsistenzprüfungen jedoch beseitigen lassen, gerechnet werden. Bei den Instrumentenfehlern muss man differenzieren zwischen üblichen (stochastischen) Messunsicherheiten und systematischen Fehlern, z.B. durch defekte Geräte, Funktionsstörungen oder zu seltene Kalibrierung der Geräte.

Bei der Angabe der Ozonkonzentration werden verschiedene Maßeinheiten verwendet. Dazu zählen der Ozonpartialdruck p_3 in nbar (ozone partial pressure), die Ozonpartialdichte p_3 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (ozone density), das Volumenmischungsverhältnis X_3 in ppb(v) (volume mixing ratio), das Massenmischungsverhältnis m_3 in $\mu\text{g}/\text{g}$ (mass mixing ratio) und die Dobson-Einheit DU (Dobson unit). Bei der Dobson-Einheit handelt es sich um den integrierten Gesamt-ozongehalt der Atmosphäre, dargestellt in einer Ozonsäule reduziert auf Normalbedingungen ($T = 273 \text{ K}$, $p = 1013 \text{ hPa}$) (DWD 2000, S. 87).

Mit den Daten mitgeliefert werden sollte deshalb stets die Bezugstemperatur für die Einheitenumrechnung sowie die Nachweisgrenze. Die Nachweisgrenze der vom LfUG angewandten Messmethode für Ozon liegt bei $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Berger 2000). Es werden jedoch auch kleinere Werte angegeben. Diese sind jedoch unsicherer. Die Messgenauigkeit wird vom LfUG mit $\pm 10 \%$ angegeben. Die Datenverfügbarkeit kann mit mehr als 95 % als sehr gut eingestuft werden. Neben dem Messwert mit seinen Unsicherheiten ist die genaue Kenntnis der räumlichen und zeitlichen Lage des Messpunktes erforderlich. Die Angaben der Messnetzbetreiber hinsichtlich der Lage sind teilweise recht grob. Für Sachsen waren die Gauß-Krüger-Koordinaten der Messstationen sechsstellig, d.h. auf 10 m genau, erhältlich. Bedeutend sind auch die Unsicherheiten in der Bestimmung des Zeitpunktes der Messung. Die Geräte messen kontinuierlich und liefern die Messwerte in halbstündlicher oder stündlicher Auflösung. Es gibt jedoch keine einheitliche Regelung, wie das Zeitfenster, in dem die Mittelung erfolgt, über dem durch den Messwert angegebenen Zeitpunkt liegt.

So sind Fehler in der Zeitangabe von bis zu einer Stunde denkbar. In Sachsen bezieht sich der erste Wert eines Tages auf die Halbstunde von 0.00 bis 0.30 Uhr.

Die Validierung der Messwerte erfolgt seitens des LfUG durch Plausibilitätsuntersuchungen. Extreme Ausreißer werden automatisch herausgenommen. Eine weitere manuelle Kontrolle erfolgt durch speziell geschultes Personal. Die Kalibrierung der Messgeräte mit einem Prüfgas erfolgt täglich, was zum Ausfall von einem Halbstundenwert jeweils um eine Halbstunde versetzt führt, was in den Rohdatendateien zu einem charakteristischen Muster führt. Eine weitere statistische Vorbehandlung der Daten (z.B. im Sinne eines 3sigma-Bereiches), um Ausreißer zu eliminieren, erfolgt nicht (Berger 2000).

Im Zusammenhang mit Messunsicherheiten muss auch das zeitliche und räumliche Rauschen der Daten diskutiert werden, das auf lokal begrenzte Besonderheiten, z.B. die Nähe zu Emissionsquellen, die Landnutzung oder spezielle meteorologische Bedingungen zurückzuführen ist. Das Problem des räumlichen Rauschens ist auf die unterschiedliche Repräsentativität der Messstationen (stark städtisch bis ländlich) zurückzuführen (Tilmes 1999).

Es gibt große Lücken, was die Beurteilung der Qualität von Messungen atmosphärischer Spurenstoffe betrifft. Da es zu wenig Messstellen gibt, sind Messnetze zur Validierung von Modellen nicht geeignet. Viele Stoffe sind so kurzlebig (atmosphärische Verweildauer) oder so stark durch lokale Gegebenheiten geprägt, dass sie nur qualitative Informationen über den Grad der Luftverschmutzung geben können. So stellt Tilmes 1999 fest: „Einzig Ozon als relativ leicht zu messender sekundärer Schadstoff scheint derzeit eine mögliche Größe für die Datenassimilation zu sein.“. Die mittlere Verweildauer von Ozon in der Atmosphäre beträgt im Sommer zwischen drei und acht Tagen und im Winter einige 10 Tage (Fiedler 2000). Ozon wird an fast allen Stationen regelmäßig gemessen und seine Lebensdauer ist gerade lang genug, um nicht ausschließlich durch lokale Gegebenheiten beeinflusst zu sein. Unsicherheiten bestehen bezüglich der Ozonkonzentration an einer Messstelle bezüglich folgender Punkte:

- Starker Einfluss der Hintergrundkonzentrationen durch weiträumige Transporte der Vorläufersubstanzen und des Ozons selbst,
- Probleme bei der Abschätzung der Quellstärken und der Zusammensetzung der Vorläufersubstanzen und der resultierenden photochemischen Prozesse,
- Einschätzung der Rolle der biogenen Emissionen und mangelnde Kenntnis der Bildungs- und Abbauprozesse.

Ein Zusammenhang zwischen Ozonkonzentrationen und meteorologischen Verhältnissen ist, obwohl viel diskutiert und scheinbar offensichtlich, statistisch nur schwer herzustellen.

So bezweifeln Mayer und Schmidt (1998) gar die Existenz von „Ozonwetterlagen“. Die Ozonimmissionen ergeben sich infolge komplexer, teilweise noch nicht verstandener luft-chemischer Prozesse, regional unterschiedlicher Quellstärken und den Zusammensetzungen der Vorläufersubstanzen sowie den vom Regionalklima beeinflussten horizontalen und vertikalen Transporten in der unteren Troposphäre. Laut Umweltbundesamt (1999) wird etwa die Hälfte der Ozonbelastung in Deutschland importiert. Die Hintergrundkonzentration setzt sich im wesentlichen aus zwei Anteilen zusammen; einem natürlichen aus der Stratosphäre und einem photochemischen aus den Vorläufersubstanzen. Hinsichtlich der Modellierung der Bodenkonzentrationen von Ozon bestehen also mehr oder weniger große Unsicherheiten. Insbesondere die Rolle der biogenen flüchtigen organischen Kohlenwasserstoffe (VOCs) kann in numerischen Modellen nicht berücksichtigt werden. Bei der Emissionserhebung bzw. -berechnung der Kohlenwasserstoffe treten Probleme auf, die zu großen Unsicherheiten führen. Die Zusammenhänge zwischen den Vorläufersubstanzen und der Ozonproduktion sind außerdem hochgradig nichtlinear (vgl. Abbildung 4.1). Die in der Abbildung dargestellten Konzentrationen sind so hoch, dass sie heutzutage in der Realität kaum noch auftreten. Es handelt sich also sozusagen um Smogkammerexperimente. Sie zeigt jedoch, und das ist der eigentliche Zweck der Abbildung, die hochgradig nichtlinearen Zusammenhänge zwischen der Ozonkonzentration und den Vorläufersubstanzen. Wie Abbildung 4.1 weiter zeigt, führt eine Reduktion der Vorläufersubstanzen NO_x bzw. VOC nicht zwangsläufig zu einer Reduktion der Ozonkonzentration. Wichtig ist das Verhältnis von NO_x und VOCs. Befindet man sich an einem Punkt mit hohen NO_x und niedrigen VOC-Konzentrationen, so führt die Reduktion der Stickoxide kaum zu einer Änderung der Ozonkonzentration, während eine Reduktion der VOCs zu einer starken Ozonminderung führt. Umgekehrt führt bei hohen VOC-Konzentrationen die Reduktion der Stickoxide zu Minderungen der Ozonkonzentration.

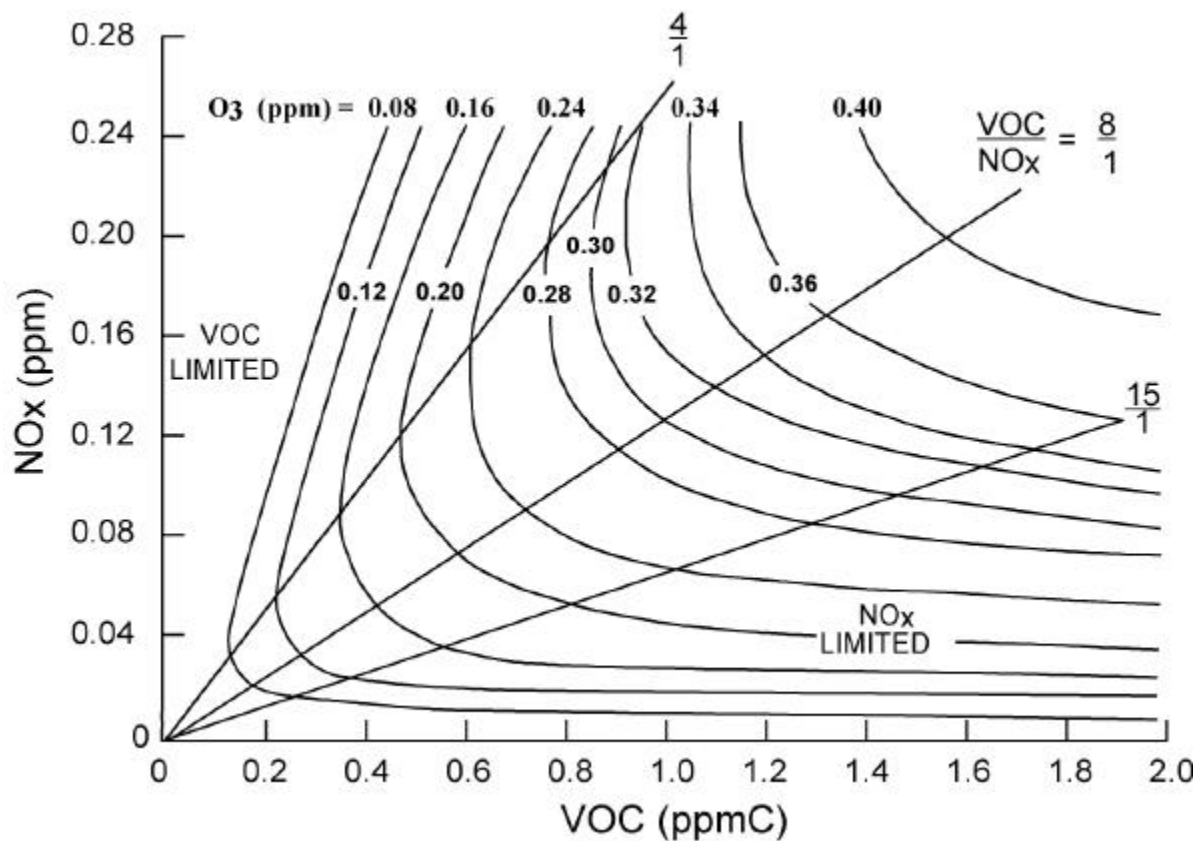


Abb. 4.1: Typische Ozonisoplethen bei verschiedenen VOC/NO_x-Verhältnissen, Quelle: Künzle u. Neu 1994

Ein großes Problem stellen aus statistischer Sicht oft fehlende Messwerte dar. Sie führen bei vielen statistischen Analyseverfahren zu Problemen. Oft müssen fehlenden Werte zuvor ersetzt werden (z.B. in SPSS für die Exponentielle Glättung). Außerdem werden fehlende Werte in unterschiedlichen Programmen (z.B. bei der Berechnung der Autokorrelation in SPSS bzw. STATGRAPHICS) unterschiedlich gehandhabt. Deshalb ist der Anwender oft erstaunt, wenn bei gleichem Analyseverfahren und Ausgangsdaten aber verschiedener Software unterschiedliche Ergebnisse auftreten. In SPSS werden fehlende Wertepaare aus der Analyse ausgeschlossen, während in STATGRAPHICS programmintern eine Ersetzung der fehlenden Werte vorgenommen wird, auf die der Anwender keinen Einfluss hat. Einzelne fehlende Werte beeinflussen in der Regel das Analyseergebnis kaum, während lange Zeiträume mit fehlenden Werten unter Umständen zu völlig falschen Schlussfolgerungen führen können (etwa ein viel zu hoher Glättungsparameter für die Exponentielle Glättung, vgl. Kapitel 8.1).

4.3 Beschreibung der verwendeten Software

Für die Untersuchungen wurden eigene Programme sowie kommerzielle Softwaresysteme eingesetzt. Immer wieder stellte sich heraus, dass die kommerzielle Software der gegebenen Datenstruktur bzw. der Aufgabenstellung nicht gerecht wird. Deshalb wurden mit Microsoft Visual C++ verschiedene Programme geschrieben. Im folgenden werden die wesentlichen dieser Programme in der logischen Chronologie des Ablaufs der Studie kurz beschrieben.

Das C-Programm *SachsenDaten* kettet die Dateien mit den Rohdaten (vgl. Kapitel 4.2) in eine großen Textdatei. Dazu öffnet es die Ausgangsdateien sukzessive und schreibt sie in der gewünschten Reihenfolge in die Ausgabedatei. Bei fehlenden Dateien wird in eine Fehlerdatei geschrieben und der entsprechende Datenblock der Datenmatrix mit der Ausfallkennung –999 gefüllt.

Mit dem Datenbankprogramm *ACCESS* kann die erzeugte Textdatei eingelesen werden und die Daten verwaltet werden. Bei der Erzeugung der Textdatei waren deshalb bereits Überlegungen anzustellen, wie die Daten für die spätere Datenbanknutzung sinnvoll zu strukturieren sind. Neben der Datentabelle wird eine Tabelle mit den Stationen, ihren Koordinaten und Meereshöhen angelegt und mit der Datentabelle verknüpft. Mit der Datenbank sind Abfragen bestimmter Zeiträume, Stationen und Schadstoffe möglich. Die Abfrageergebnisse können in Textdateien exportiert und mit geeigneten C- und C++-Programmen weiterverarbeitet werden.

Zur explorativen Datenanalyse (statistische Kenngrößen, Korrelationsuntersuchungen, mittlere Tagesgänge, Clusteranalyse, vgl. Kapitel 5) wurde die Statistiksoftware *SPSS* eingesetzt. Zur Trendbereinigung (vgl. Kapitel 5.2) wurden die C++-Programme *Trendbereinigung* (für das Abziehen der Stationsmittelwerte) und *Meanpolishing* (für die Mittelwertsbereinigung) geschrieben. Ein weiteres C++-Programm wurde zur Berechnung experimenteller Variogramme (vgl. Kapitel 3.1.2) aus den trendbereinigten Daten (Residuen) geschrieben. Mit *MATLAB* werden in Wissenschaft und Wirtschaft numerische Berechnungen aller Art durchgeführt. Neben dem Basisprogramm existiert eine Reihe von Toolboxes zur Lösung spezieller Aufgaben. Für die vorliegende Arbeit wurde *MATLAB* zur Anpassung von Variogrammodellen (Sphärisch, Gaußsches oder Exponentielles) an die berechneten experimentellen Variogramme sowie die Berechnung einer mittleren Fehlerquadratsumme zur Auswahl eines geeigneten Variogrammodells eingesetzt.

Dabei wurden die Variogrammodelle in einer Funktion in der C-ähnlichen *MATLAB*-internen Programmiersprache programmiert. Es wurden nur die in der Praxis verbreiteten Variogrammodelle (Exponentiell, Sphärisch, Gaußsch) implementiert. Das eigentliche Kriging bzw. die räumliche Interpolation (vgl. Kapitel 3.2.2 und Kapitel 7) kann mit *ISATIS* (Geovariances, France) oder *SURFER* (GoldenSoftware) oder auf der Grundlage eines selbstgeschriebenen C++-Programmes mit dem angepassten Variogrammodell erfolgen. Für das Ordinary Kriging wurde ein C++-Programm geschrieben, um die Ergebnisse mit den Ergebnissen der kommerziellen Software vergleichen zu können. Für die Bedienung des Programms muss das Vorhersageraster (Maschen in x-Richtung, Maschen in y-Richtung, minimaler/maximaler Rechtswert, minimaler/maximaler Hochwert) definiert werden, eine Eingangsdatei mit den Koordinaten der Messstellen und den zugehörigen Messwerten eingelesen werden sowie die Parameter des Variogrammodells spezifiziert werden. Die Ausgabe der Interpolationsergebnisse erfolgt im *SURFER*-grid Format (.grd), das von *SURFER* direkt als Isolinenbild dargestellt werden kann. Dabei muss beachtet werden, dass verschiedene Software die Werte den Rasterzellen (linke obere Ecke, Zentrum usw.) unterschiedlich zuordnet, so dass beim Vergleich der Vorhersageergebnisse verschiedener Programme Unterschiede auftreten können.

Die Grenzen des Untersuchungsgebietes werden, wie später in Kapitel 7.1 noch ausführlicher dargestellt wird, aus dem rechteckigen Interpolationsergebnis ausgeschnitten. Eine einheitliche Visualisierung ist für die Bewertung bzw. den Vergleich dringend notwendig.

Für die zeitliche Prognose wurde neben *SPSS* auch *STATGRAPHICS* benutzt, weil dieses Programm die Möglichkeit der Saisonbereinigung bietet und die Methoden der Zeitreihenanalyse insgesamt anschaulicher implementiert. Außerdem wurde ein eigenes zeitliches Vorhersagemodell (vgl. Kapitel 8) programmtechnisch realisiert.

Durch die Programmierung eigener Programme wurde eine weitgehende Unabhängigkeit und größere Flexibilität in Bezug auf die Standardsoftware erreicht. Die Programme sind auf die vorgegebene Datenstruktur zugeschnitten, so dass ein langwieriges Einlesen in die Standardsoftware (Ersetzen von fehlenden Werten, Ersetzen von Dezimaltrennzeichen und ähnliches) verzichtet werden kann. Die Ausgaben der Programme können sofort in der gewünschten Form erfolgen. Bis zur „fertigen“ Karte sind jedoch eine Vielzahl von Einzelschritten und eine Vielzahl von Programmen notwendig. Im Praxisteil der Arbeit können deshalb nur exemplarisch einige Kartenbeispiele gezeigt werden. Der Schwerpunkt soll auf der möglichst genauen Datenanalyse und Variographie liegen.

5. Statistische Analyse

Um ein Gefühl für die räumliche und zeitliche Variabilität der Ozonkonzentrationen zu bekommen, werden die sächsischen Ozonwerte zunächst diversen statistischen Analysen unterzogen. Es werden die wesentlichen Schritte beschrieben, die vor der im eigentlichen Sinne geostatistischen Analyse (Variographie und Kriging) erfolgen sollen. Zunächst werden deskriptive Statistiken wie Mittelwerte, Korrelationen und zeitliche Trends untersucht. Zur explorativen Datenanalyse gehört auch die Trennung der stochastischen und deterministischen Anteile der Variablen. Ein Unterkapitel beschäftigt sich deshalb mit der Entwicklung von Trendmodellen. Im Rahmen einer Anisotropieuntersuchung wird weiter untersucht, ob die Residuen isotrop sind. Die in diesem Kapitel gewonnen Erkenntnisse sind für die sich anschließende geostatistische Analyse von großer Bedeutung.

5.1 Explorative Datenanalyse

Zuerst wurden die globalen Stationsmittelwerte und deren Standardabweichungen über fünf Jahre (vgl. Tab. 5.1) ausgerechnet. Bereits hier werden Unterschiede zwischen den Stationen deutlich. Es gibt eine kleine Gruppe mit Stationen mit sehr hohen Mittelwerten (Carlsfeld, Collmburg, Fichtelberg, Schwartenberg und Zinnwald). Die niedrigsten Konzentrationen treten über den gesamten Untersuchungszeitraum an den stark verkehrsbeeinflussten Stationen Leipzig-Mitte, Borna, Dresden-Nord und Plauen-Süd auf. In diese Berechnungen fließen maximal 87600 ($= 5 \text{ Jahre} \times 365 \text{ Tage} \times 48 \text{ Halbstunden}$) ein.

Tab. 5.1: Globale Stationsmittelwerte [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] und Standardabweichungen

Station	Anzahl	Mittelwert	Standardabweichung
Annaberg-Buchholz	81948	42,54	28,24
Aue	80771	37,66	28,64
Auerbach	79749	43,69	29,77
Bautzen	82654	46,31	29,27
Böhlen	82399	45,38	30,75
Borna	75388	34,9	26,21
Carlsfeld	77353	69,06	28,44
Chemnitz-Mitte	81376	42,04	31,31
Chemnitz-Nord	77246	35,47	27,21
Collmberg	16860	63,94	29,2
Delitzsch	80598	44,02	31,34
Dresden-Nord	79142	28,64	26,33
Dresden-Post	80046	41,18	30,64
Fichtelberg	78997	79,12	28,67
Freiberg	78848	45	27,33
Glauchau	77167	40,24	31,68
Görlitz	79099	39,41	28,39
Hoyerswerda	83133	49,21	30,69
Klingenthal	83379	43,84	32,35
Leipzig-Mitte	81075	28,89	24
Leipzig-Süd	80060	40,78	30,75
Leipzig-West	81647	44,61	31,14
Mittelndorf	81353	56,31	30,1
Olbernhau	78145	42,22	28,59
Pirna	82890	39,81	30,83
Plauen	55516	37,83	30,7
Plauen-Süd	16400	32,92	26,49
Radebeul-Wahnsdorf	82463	52,59	31,3
Schwartenberg	30977	70,67	27,72
Zinnwald	81302	66,41	30,31
Zittau-Ost	80529	50,58	30,41
Zwickau	67651	32,05	27,21

Die Jahresmittelwerte der einzelnen Stationen werden betrachtet, um nachvollziehen zu können, ob ein Ansteigen der Ozonkonzentrationen auch bei diesem fünfjährigen Datensatz beobachtet werden kann. Dabei zeigt sich ein zunehmender Trend der Ozonkonzentrationen im Untersuchungszeitraum an nahezu allen Stationen. Der Trend ist um so ausgeprägter je höher die Station liegt, das heißt an den Reinluftstationen. Für die Untersuchungen wurde sich auf die Monate Mai, Juni und Juli beschränkt, weil dann die höchsten Ozonkonzentrationen gemessen wurden. Diese Monate dienen auch als Grundlage für die Festlegung der AOT-40-Werte. Für die Mittelwerte dieser Monate ist eine zunehmende Tendenz feststellbar. Sie ist jedoch weniger stark ausgeprägt als für das Gesamtjahr. Die 96er Werte sind an fast allen Stationen niedriger als die 95er Werte. Das ist oft auch 1999 im Vergleich zu 1998 der Fall.

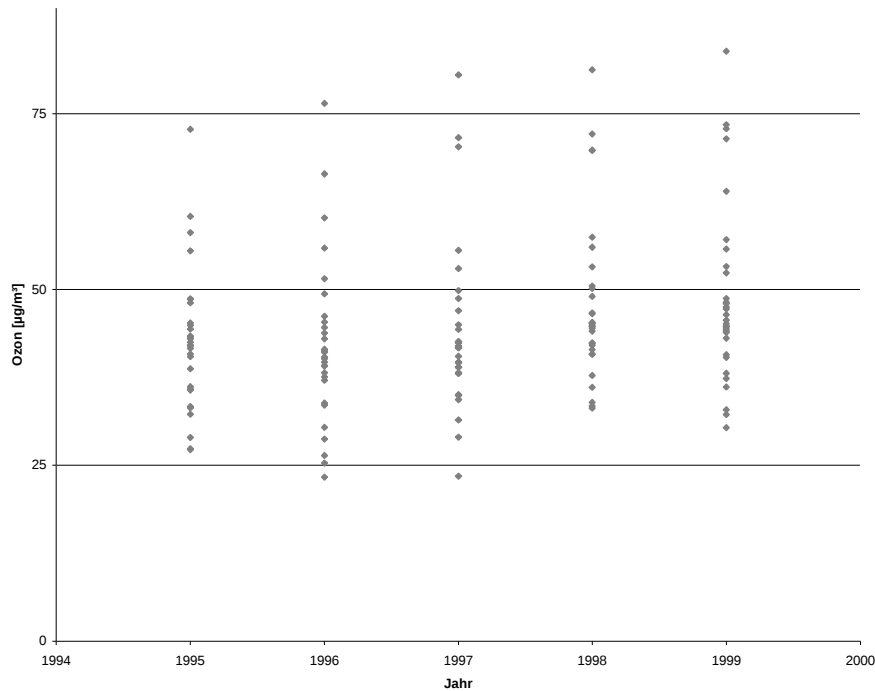


Abb. 5.1: Trend der Ozonkonzentration im Untersuchungszeitraum

Das wesentliche Kennzeichen von Stationen bezüglich des Ozons ist ihr mittlerer Tagesgang der Ozonkonzentration. Der Wochengang des Ozons ist im Gegensatz zu den Primärschadstoffen nicht deutlich ausgeprägt und wird in den zukünftigen Betrachtungen vernachlässigt. Auch Guttorp et al. (1994) sehen keine Anzeichen für einen Wochengang.

Der Jahresgang (vgl. Abb. 5.2) zeigt die höchsten Werte während der Monate Mai, Juni und Juli und die niedrigsten während der Monate November, Dezember und Januar. In der Darstellung sind keine Streubalken um die Monatsmittelwerte angegeben, da diese aufgrund der zeitlichen Korrelation der Daten falsch gewesen wären.

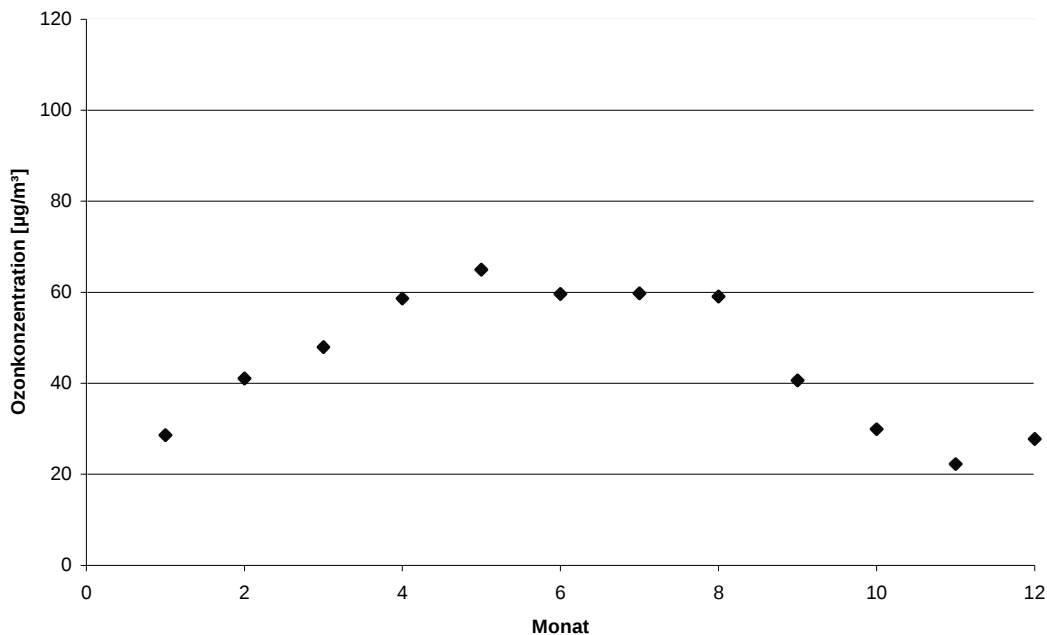


Abb. 5.2: Mittlerer Jahresgang der Ozonkonzentration

Insbesondere die entsprechenden Sommermonate werden im folgenden untersucht. Da in der Regel nur die Maximalkonzentrationen von Ozon immissionsschutzrechtlich relevant sind, wurden für die meisten Untersuchungen die 16-Uhr-Werte (in der Regel Zeitpunkt des Tagesmaximums) ausgewählt. Die Variabilität der Werte schwankt von Jahr zu Jahr teilweise sehr stark wie Tabelle 5.2 zeigt.

Tab. 5.2: Statistik der 16-Uhr-Sommer-Werte nach Jahren

Jahr	Mittelwert	Standardabweichung
1995	67,3-106,4	29,3-40,0
1996	51,8-90,2	23,5-31,1
1997	68,2-101,7	20,3-29,83
1998	65,4-105,6	24,35-30,4
1999	81,1-107,7	18,4-27,8

Die Einzeljahre des Untersuchungszeitraumes unterscheiden sich stark in ihren Mittelwerten und Standardabweichungen. So war 1995 ein Jahr mit hohen Mittelwerten und sehr hohen Standardabweichungen. Im Jahr 1996 waren die Mittelwerte sehr niedrig, die Standardabweichungen jedoch hoch, 1997 waren die Standardabweichungen bei mittleren Mittelwerten eher gering. Ein bezüglich beider Kenngrößen mittleres Jahr stellt das Jahr 1998 dar.

Im Jahr 1999 tritt mit sehr hohen Mittelwerten und geringen Standardabweichungen wieder eine neue Kombination auf. Die einzelnen Jahre sind also nur sehr schwer miteinander zu vergleichen, was vermutlich auf die unterschiedlichen Witterungsperioden während der einzelnen Jahre zurückzuführen ist. Dies hat auch Konsequenzen auf die Vorhersagbarkeit (sowohl zeitlich als auch räumlich) der entsprechenden Jahre, wie wir in den Kapiteln über die räumliche Analyse und die zeitliche Vorhersage noch sehen werden. Je höher die Variabilität des Datensatzes, desto schlechter waren die Ergebnisse der Vorhersage. Dies äußert sich in hohen Variogrammwerten im Jahr 1995.

5.1.1 Mittlere Tagesgänge

Zur Untersuchung der zeitlichen Variabilität wurden zunächst die mittleren Tagesgänge (der Tagesgang ist eine charakteristische Größe für die Ozonbelastung einer Station) aller Stationen über den gesamten Untersuchungszeitraum berechnet (vgl. Abbildung 5.3). Hierbei zeigen sich deutliche Unterschiede zwischen Stadtstationen (z.B. Leipzig-Mitte) mit stark ausgeprägten Tagesgängen (große Varianz) und niedrigen Mittelwerten und Landstationen (z.B. Fichtelberg) mit wenig ausgeprägten Tagesgängen (geringe Varianz) und hohen Mittelwerten. Es muss jedoch erwähnt werden, dass der mittlere Tagesgang einen stark idealisierten Verlauf darstellt. Einzelne Tagesgänge können beträchtlich vom mittleren Tagesgang abweichen, insbesondere wenn es an dem betreffenden Tag regnet. Die mittleren Tagesgänge verkehrsbeeinflusster Stationen ähneln sich sehr stark. Nach einem Minimum in den Morgenstunden (ca. 6 Uhr) steigen die Konzentrationen bis zu einem Maximum (ca. 15 bis 16 Uhr) am Nachmittag an und fallen dann wieder ab. Auch die Tagesgänge an ländlichen Stationen sind ähnlich; die Minima und Maxima treten hier jedoch etwas später auf als an den verkehrsbeeinflussten Stationen.

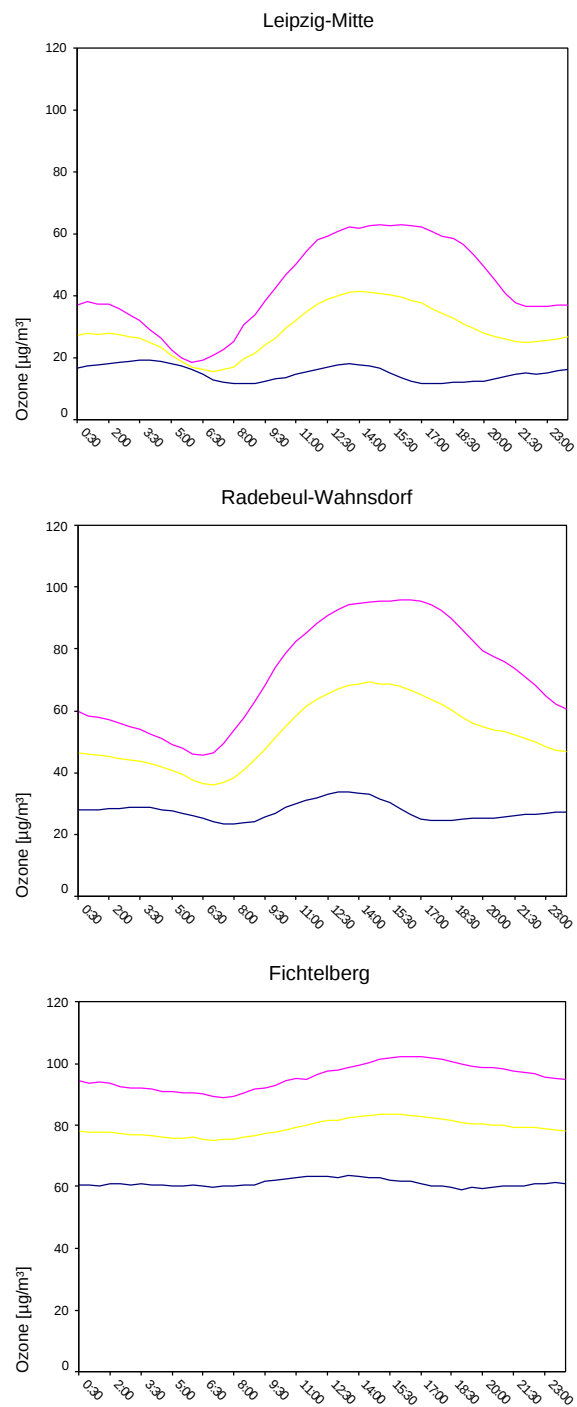


Abb. 5.3: Mittlere Tagesgänge nach Jahreszeiten (Leipzig-Mitte, Radebeul-Wahnsdorf, Fichtelberg)

Es wurde untersucht, ob sich die mittleren Tagesgänge an den Stationen nach Jahreszeiten unterscheiden. Dazu wurden die Sommermonate Mai, Juni, Juli sowie die Wintermonate November, Dezember und Januar betrachtet. Die Tagesgänge unterscheiden sich deutlich, für „Reinluftstationen“ im wesentlichen nur im Niveau, für verkehrsbelastete Stationen im Niveau und in der Form des Tagesganges. Die Sommerkonzentrationen sind höher und die Amplitude ausgeprägter als bei den Winterkonzentrationen. In urbanisierten Gebieten wird Ozon durch Primärschadstoffe (Stickoxide) wieder abgebaut. Das importierte Ozon oder die nächtlichen Konzentrationen werden durch die morgendlichen und abendlichen Verkehrsspitzen bedingten Immissionen reduziert. Das kann man der Sommergrafik entnehmen; am Morgen (ca. 6 Uhr), bevor die Einstrahlung die entsprechende Stärke erreicht, hat die Ozonkonzentration ihr Minimum. An einem Sommernachmittag überwiegt die solare Produktion von Ozon den Abbau durch Stickoxide bei weitem. Also ist die Verkehrsspitze am Nachmittag in der Sommergrafik nicht so sichtbar wie in der Wintergrafik. An kaum verkehrsbeeinflussten Stationen treten die Minima und Maxima der Ozonkonzentration später auf und sind nicht so ausgeprägt wie an städtischen Stationen. Der Tagesgang der Ozonkonzentration ist also abhängig vom täglichen Verkehrsaufkommen sowie vom Tagesgang der Einstrahlung (daher die Unterschiede zwischen den Jahreszeiten). Im folgenden werden nur noch die mittleren Sommertagesgänge betrachtet, weil die Konzentrationen in den Wintermonaten nicht kritisch sind.

Um geostatistische Verfahren anwenden zu können, muss der Tagesgang herausgefiltert werden, d.h. für jede Halbstunde ein anderer Wert abgezogen werden (vgl. Kapitel 3.2 und Kapitel 5.2.2).

5.1.2 Korrelationsuntersuchungen

Die in diesem Kapitel beschriebenen Korrelationsuntersuchungen dienen zunächst dazu, zu prüfen, ob bestimmte Hypothesen (z.B. „die Höhenlage spielt eine Rolle für die Ozonkonzentration“) sinnvoll sind bzw. ob diese Hypothesen durch den vorliegenden Datensatz gestützt werden können. Um die Zusammenhänge zwischen den Stationen zu beschreiben, wurden die Korrelationen zwischen den mittleren Tagesgängen an den Stationen getrennt nach Jahreszeiten berechnet. Im Sommer sind die Korrelationen meist höher als für den Gesamtdatensatz. Die niedrigsten Korrelationen treten beim Vergleich von verkehrsbelasteten mit ländlichen Bergstationen auf.

Im Winter sind die Korrelationen sehr viel geringer und die Unterschiede zwischen Stadt- und Reinluftstationen sind noch ausgeprägter. Außerdem wurden die Korrelationen der Tagesmittelwerte berechnet. Hier sind die Korrelationen zwischen den Stationen insgesamt niedriger als für die mittleren Tagesgänge, ansonsten sind die Ergebnisse jedoch ähnlich. Beim Winterdatensatz sind die Korrelationen höher als für die mittleren Tagesgänge (Ähnlichkeiten bzw. Unähnlichkeiten aufgrund der Form des Tagesganges verschwinden durch die zeitliche Mittelung). Die Korrelationen zwischen den 6-Uhr-Werten und den 16-Uhr-Werten der einzelnen Stationen wurden untersucht, um herauszufinden, ob die morgendlichen Werte für die Vorhersage der Spitzenkonzentration am Nachmittag eine Rolle spielen. Nur für die Landstationen ergaben sich hier signifikant hohe Korrelationen aufgrund der geringen Standardabweichungen des Tagesganges an diesen Stationen. In Tabelle 5.3 sind exemplarisch die Ergebnisse für die Stationen Fichtelberg, Leipzig-Mitte und Radebeul-Wahnsdorf angegeben.

Tab. 5.3: Korrelationen zwischen Minimum- und Maximumkonzentrationen

Station	Jahr	Korrelation 6 Uhr/16 Uhr
Fichtelberg	1995	0,758
Fichtelberg	1996	0,696
Fichtelberg	1997	0,603
Fichtelberg	1998	0,497
Fichtelberg	1999	0,527
Leipzig-Mitte	1995	0,149
Leipzig-Mitte	1996	0,223
Leipzig-Mitte	1997	0,384
Leipzig-Mitte	1998	-0,172
Leipzig-Mitte	1999	0,256
Radebeul-Wahnsdorf	1995	0,228
Radebeul-Wahnsdorf	1996	0,02
Radebeul-Wahnsdorf	1997	0,185
Radebeul-Wahnsdorf	1998	0,17
Radebeul-Wahnsdorf	1999	0,205

Zeitliche Autokorrelationsanalyse

Die Autokorrelationsanalyse der 16-Uhr-Werte und der 6-Uhr-Werte an aufeinander folgenden Tagen brachte das Ergebnis, dass die Werte der Autokorrelation bei einem Zeitlag von einem Tag wesentlich geringer sind als bei der Betrachtung der gesamten Datensätze und für den Lag 1 höchstens 0,6 betragen. Auch hier gibt es signifikante Unterschiede zwischen den Autokorrelationen der 6-Uhr-Werte und der 16-Uhr-Werte.

Die 6-Uhr-Werte (vgl. Abb. 5.5) zeigen nur an den nicht verkehrsbeeinflussten Stationen eine zeitliche Autokorrelation der 6-Uhr-Werte. An den städtischen Stationen gibt es keine erkennbare Autokorrelation. Anders verhält es sich mit den 16-Uhr-Werte (vgl. Abb. 4.4). Hier treten in der Regel zwei bis fünf signifikante Autokorrelationskoeffizienten auf. Dabei sind die Autokorrelationen an den ländlichen Stationen etwas höher als an den städtischen.

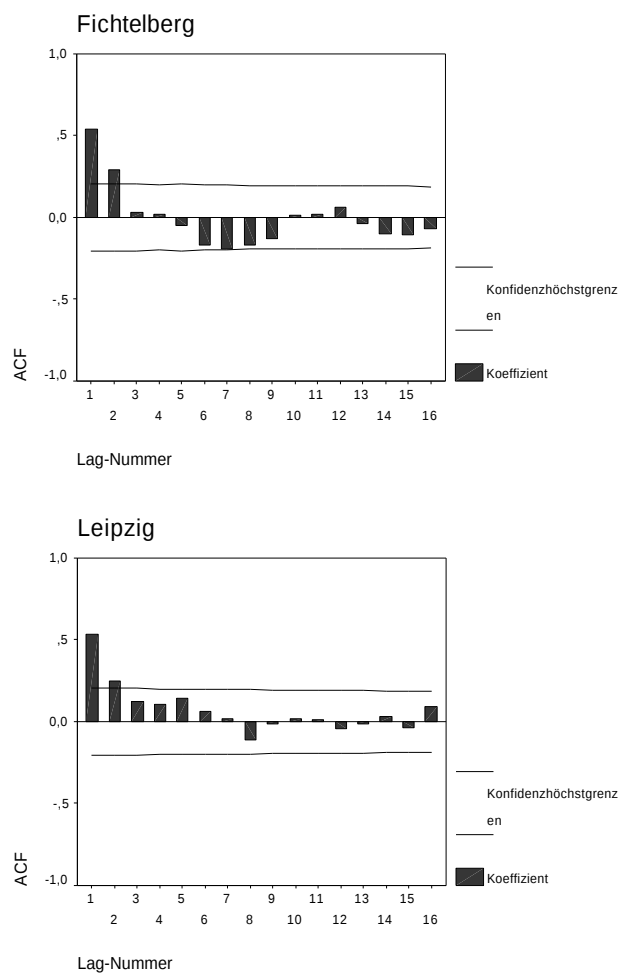


Abb. 5.4: Autokorrelationen der 16-Uhr-Werte

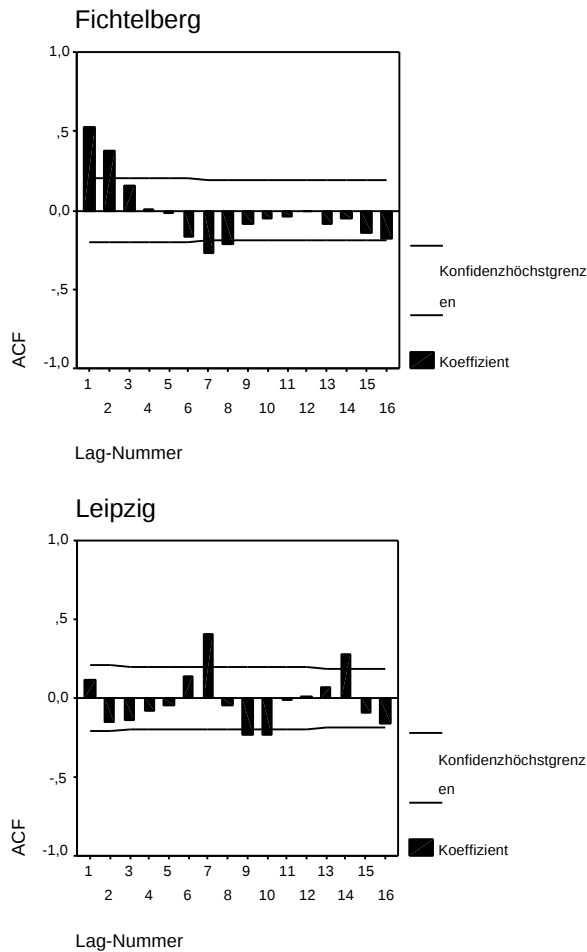


Abb. 5.5: Autokorrelationen der 6-Uhr-Werte

Es wurde ein Datensatz erzeugt aus den 6-Uhr- und den 16-Uhr-Werten der jeweiligen Stationen und daraus die zeitlichen Autokorrelationen berechnet. Hier sind die Autokorrelationen in der Regel alternierend, d.h. positive und negative Autokorrelationen wechseln sich ab. Bei einem geraden Zeitlag werden die 6-Uhr- mit den 6-Uhr-Werten bzw. die 16-Uhr- mit den 16-Uhr-Werten verglichen, bei ungeraden die 6-Uhr- mit den 16-Uhr-Werten. Das beschriebene Alternieren wird an den ländlichen Stationen nicht beobachtet.

Auch mit den gesamten saisonbereinigten Sommerdatensätzen wurden Autokorrelationsuntersuchungen durchgeführt (vgl. Abb. 5.6). Die Autokorrelation der Werte an der Station Fichtelberg ist zunächst hoch und nimmt dann exponentiell ab. Die Reichweite der Autokorrelation liegt zwischen wenigen Stunden an städtischen Stationen und über 2 Tagen an ländlichen Stationen. Insbesondere an städtischen Stationen wird trotz der Saisonbereinigung der Tagesgang der Ozonkonzentration deutlich, was sich in zyklischen Schwankungen der Autokorrelation äußert (vgl. Abb. 5.6 Autokorrelation Leipzig).

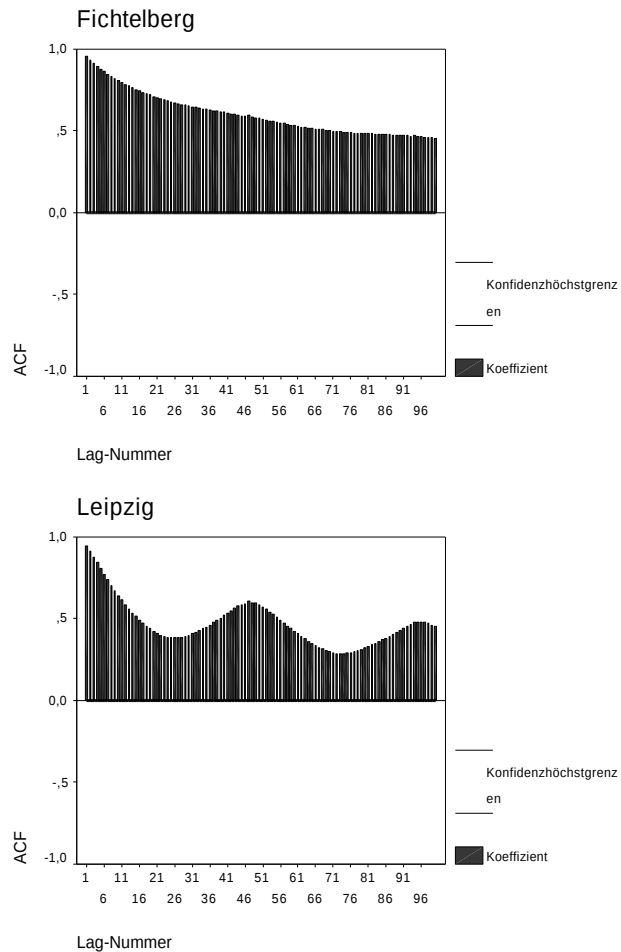


Abb. 5.6: Autokorrelationen im Zeitraum Mai, Juni, Juli (Fichtelberg, Leipzig)

Weiter wurde die Korrelation der Ozonkonzentration mit der Höhe untersucht. Betrachtet man die 16-Uhr-Werte aller Stationen in den Monaten April bis Juni im Jahr 1995 und berechnet man die Korrelation zwischen der Höhenlage der Stationen und den gemessenen Ozonkonzentrationen, so ergibt sich ein sehr niedriger Korrelationskoeffizient von 0,081. Betrachtet man nun die Korrelationen für die einzelnen Tage im Untersuchungszeitraum, so findet man immerhin 18 Tage (ca. 20 % der Zeit), an denen die Korrelationen größer als 0,4 sind. Es treten jedoch auch Tage auf, an denen die Korrelationen sogar negativ sind. Diese negativen Korrelationskoeffizienten sind jedoch nicht signifikant, während die hohen Korrelationskoeffizienten hochsignifikant (<0.1) sind.

Variogramme

Guttorp et al. 1994 kommen in ihrer Arbeit zu dem Ergebnis, dass sich die Variogramme unterschiedlicher Tageszeiten deutlich unterscheiden.

Um zu überprüfen, ob dies auch bei den Ozonmesswerten in Sachsen der Fall ist, wurden räumliche Variogramme für unterschiedliche Tageszeiten (6 Uhr = Zeit des Tagesminimums, 16 Uhr = Zeit des Tagesmaximums, 20 Uhr) berechnet und die Ergebnisse verglichen. Die Variogramme wurden nicht aus den Rohdaten berechnet, sondern zuvor wurde der entsprechende Mittelwert für die entsprechende Halbstunde abgezogen und das Variogramm aus den Residuen berechnet. Die Untersuchungen wurden auf die Sommermonate (Mai, Juni, Juli) beschränkt. In der Tat unterscheiden sich die Variogrammwolken für unterschiedliche Zeitpunkte (vgl. Abb. 6.2). Die Variogrammwolke um 6 Uhr morgens zeigt wenig Struktur und geringe Korrelationen. Auffällig ist, dass die Heterogenität der Stationen (Stadt/Landstationen) hier noch stark zum Ausdruck kommt (viele Ausreißer in der Wolke). Die Variogrammwolke um 16 Uhr sieht demgegenüber wesentlich strukturierter aus. Extreme Ausreißer gibt es keine. Insbesondere konnte der Nuggeteffekt vermindert werden. Ein Modell hätte die Parameter range 100 km, sill 380 und Nuggeteffekt 80. Der Nuggeteffekt macht also ca. 20 % des Gesamtsills aus. Als Variogrammtyp erscheint hier wieder ein Exponentielles Variogrammmodell.

Die Autokorrelationsuntersuchungen zu diesen Tageszeiten ergeben, dass die Korrelationen, insbesondere bei den Minimumwerten um 6 Uhr, kaum über einen Tag hinausreichen. Weiterreichende Korrelationen ergeben sich lediglich für die wenig verkehrsbeeinflussten Bergstationen, an denen der Tagesgang so gering ist, dass auch Korrelationen über größere Zeitlags bestehen. Um 16 Uhr sind die zeitlichen Korrelationen stärker ausgeprägt. Sowohl die zeitliche als auch die räumliche Korrelation der Daten ist um 16 Uhr (Zeit des Ozonmaximums) größer als in den Nacht- bzw. Morgenstunden.

5.1.3 Clusteranalyse

Auf der Basis der beschriebenen mittleren Tagesgänge wurden die Stationen mittels einer Clusteranalyse mit SPSS (euklidische Distanz, average linkage) klassifiziert. Das Dendrogramm (vgl. Abb. 5.7) lässt zwei Cluster erkennen; ein sehr großes mit 27 Stationen und ein kleines mit fünf Stationen. Bei den Stationen im kleinen Cluster handelt es sich um die „Reinluftstationen“ Fichtelberg, Carlsfeld, Collmberg, Schwartenberg und Zinnwald. Das große Cluster enthält alle mehr oder weniger stark verkehrsbeeinflussten Stationen. Dieselbe Klasseneinteilung ergibt sich im übrigen auch, wenn man zur Klassenbildung nur den globalen Stationsmittelwert oder andere Verfahren der Clusterung heranzieht.

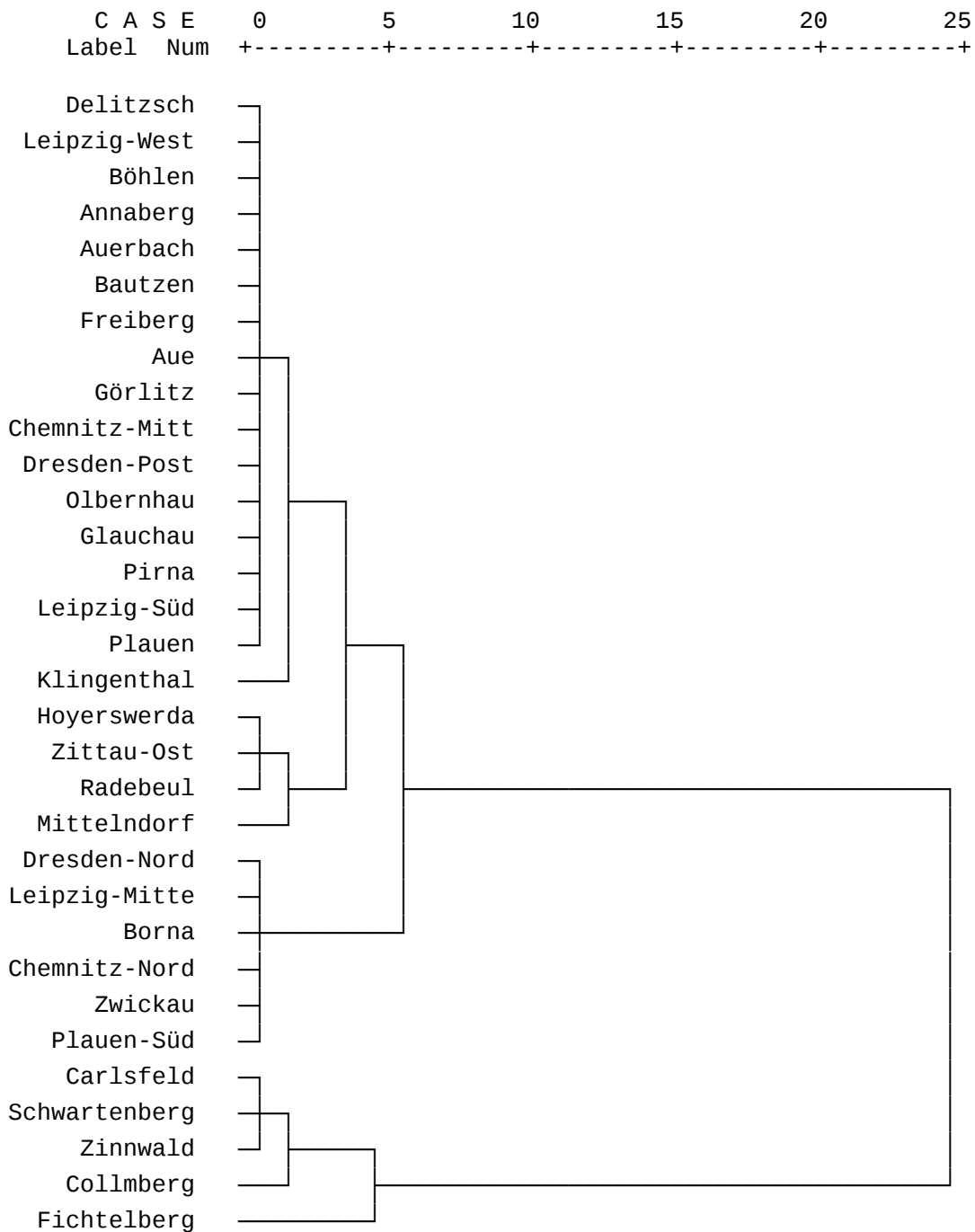


Abb. 5.7: SPSS-Dendrogramm nach average linkage mit euklidischer Distanz

Abbildung 5.7 zeigt das Dendrogramm, das die stufenweise Zusammenfassung der Stationen zu Clustern grafisch veranschaulicht. Im ersten Schritt werden z.B. die Stationen Dresden-Nord, Leipzig-Mitte, Borna, Chemnitz-Nord, Zwickau und Plauen-Süd zusammengefasst. Dabei handelt es sich um die stark verkehrsbeeinflussten Stationen. Erst im vierten Schritt werden diese Stationen mit den weniger stark verkehrsbeeinflussten Stationen zu einem Cluster zusammengefasst, so dass es nun nur noch zwei Cluster gibt.

5.2 Trendmodelle

Eine zentrale Aufgabe besteht darin, die dem lufthygienischen Prozess zugrundeliegenden stochastischen und deterministischen Komponenten zu trennen. So ist laut Niu 1996 die Trennung der Trends, die durch die Vorläufersubstanzen verursacht werden, und der Trends durch die meteorologische Variabilität die Hauptschwierigkeit bei der Analyse troposphärischer Ozondaten. Laut Stoyan et al. 1997 gehört es zu den wesentlichen Aufgaben räumlich statistischer Verfahren, Trends in der Verteilung der Daten festzustellen.

Wie bereits mehrfach erwähnt wurde, ist die Voraussetzung für die Anwendung geostatistischer Verfahren die intrinsische Stationarität des Prozesses. Die Ozonkonzentration $z(x,t)$ an einer Station x zum Zeitpunkt t setzt sich zusammen aus einem zeitabhängigen Trend für die Station $a(x,t)$, einem Trend für die Zeit $g(t)$ und den Residuen $e(x,t)$, die diese Bedingung erfüllen:

$$z(x,t) = a(x,t) + g(t) + e(x,t) \quad x = 1, \dots, n \quad t = 1, \dots, T \quad (5.1)$$

Das Ziel ist die Berechnung der stationären Residuen aus den Messwerten. Die Trennung zwischen deterministischen und stochastischen Komponenten kann über verschiedene Ansätze erfolgen, z.B. durch Meanpolishing nach Cressie 1993 bzw. durch das Abziehen des mittleren Tagesganges an den Stationen.

5.2.1 Meanpolishing

Beim Meanpolishing nach Cressie 1993, das programmtechnisch relativ leicht zu implementieren ist, wird von den Rohdaten schrittweise der Mittelwert (des Tages, der Station) abgezogen. Das Modell sieht dann wie folgt aus:

$$Z(x,t) = a(x) + g(t) + e(x,t) \quad x = 1, \dots, n \quad t = 1, \dots, T \quad (5.2)$$

Raum und Zeit sind also trennbar. Die Residuen können jedoch für verschiedene Raum- und Zeitpunkte berechnet werden. Anders als beim Filtern des mittleren Tagesganges wird hier ein über alle Stationen gemittelter (sachsenweiter) Wert abgezogen. Das Verfahren wird solange iteriert, bis die Summe dessen, was abgezogen wird, gegen Null konvergiert.

In der vorliegenden Untersuchung war dies nach drei Iterationsschritten eigentlich immer der Fall. Meanpolishing beruht auf der Annahme, dass sich ein Messwert aus folgenden Anteilen zusammensetzt:

data = all + row + column + residual

(Messwert = Gesamteffekt + Zeileneffekt + Spalteneffekt + Residuum)

Gibt es r Zeilen (Tage) und c Spalten (Stationen), so hat jeder Gitterpunkt eine Beobachtung Y_{ij} , die sich wie folgt zusammensetzt:

$$Y_{ij} = Y_{..} + (Y_{i.} - Y_{..}) + (Y_{.j} - Y_{..}) + (Y_{ij} - Y_{i.} - Y_{.j} + Y_{..}) \quad i = 1, \dots, c \quad j = 1, \dots, r \quad (5.3)$$

Der Punkt symbolisiert dabei die Mittelung über den entsprechenden Index. Der Algorithmus eliminiert sukzessive die Mittelwerte der Zeilen, der Spalten, der Zeilen und Spalten usw., akkumuliert diese in Zeilen-, Spalten- und Gesamteffekt und hinterlässt eine Tabelle der Residuen. Dabei wird die räumliche x -Koordinate (Spalte) des Meanpolishing nach Cressie durch den Stationsindex und die räumliche y -Koordinate (Zeile) durch den Tagesindex ersetzt, und die Daten werden vom Stations- und Tageseinfluss bereinigt. Man kann sich dies wie folgt vorstellen: das gegebene Feld sei eine Karte, die nach Cressie mittelwertbereinigt werden soll.

```
1 1 1 1
2 2 2 2
2 2 2 2
1 1 1 1
```

Jetzt ziehen wir die Zeilenmittelwerte ab:

```
0 0 0 0
0 0 0 0
0 0 0 0
0 0 0 0
```

Dies ist ein einfaches Feld ohne Zeilen- und Spalteneffekt. Ziehen wir jetzt den Spaltenmittelwert, der bereinigten Daten ab, so bleibt das Feld unverändert. Der Vorgang konvergiert und wir haben als bereinigtes Feld:

```
0 0 0 0
0 0 0 0
0 0 0 0
0 0 0 0
```

Nehmen wir an, wir hätten keine Zufallsfelder, sondern reine Zeilen- und Spalteneffekte etwa so:

$$\begin{array}{ccc} 1 & 1 & 1 \\ 2 & 2 & 2 \\ 1 & 1 & 1 \end{array} + \begin{array}{ccc} -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \end{array} = \begin{array}{ccc} 0 & 1 & 2 \\ 1 & 2 & 3 \\ 0 & 1 & 2 \end{array}$$

Also Ausgangsfeld:

$$\begin{array}{ccc} 0 & 1 & 2 \\ 1 & 2 & 3 \\ 0 & 1 & 2 \end{array}$$

Zeilen(=Tages-)mittelwerte abziehen:

$$\begin{array}{ccc} 0 & 1 & 2 \\ 1 & 2 & 3 \\ 0 & 1 & 2 \end{array} - \begin{array}{ccc} 1 & 1 & 1 \\ 2 & 2 & 2 \\ 1 & 1 & 1 \end{array} = \begin{array}{ccc} -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \end{array}$$

Wir haben als neue Tabelle:

$$\begin{array}{ccc} -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \end{array} - \begin{array}{ccc} -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \end{array} = \begin{array}{ccc} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{array}$$

Aber nicht immer geht das in einem Schritt und nicht immer kommt man zu der Tabelle, die nur Nulleinträge besitzt. Insbesondere bleiben immer die Zufallsfehler übrig.

Das um die genannten Effekte bereinigte geostatistische Feld sollte ein vernünftiges Variogramm haben (vgl. Kapitel 6). Die Originaldaten werden eine stark streuende, wenig strukturierte Variogrammwolke mit großen Ausreißern aufgrund von gemischten Stationspaaren (ländliche und städtische Station) liefern.

Es wurden auch andere Trendmodelle überprüft, u.a. wurde statt des Tages die Halbstunde (48 Zeitschritte) am Tag bzw. die fortlaufende Halbstunde im Untersuchungszeitraum (4416 Zeitschritte) bereinigt. Außerdem wurde über 48 Halbstunden allerdings für zwei Stationsgruppen (Stadtstationen und Landstationen) das Meanpolishing durchgeführt. Zum Vergleich der verschiedenen Trendansätze kann man die Varianz der Schätzwerte durch die Varianz der Messwerte teilen, um so ein Maß für die durch das Modell erklärte Varianz des Prozesses zu erhalten. Diese Werte schwanken zwischen 42,2 % (für 48 Halbstunden) und 79,9 % (für 4416 Halbstunden). Der Ansatz mit den beiden Stationsgruppen bringt es auf 44 % erklärte Varianz.

Diese Ergebnisse sind nicht überraschend, da die Genauigkeit des Modells natürlich steigt je mehr Zeitschritte bzw. Stationsgruppen in das Modell integriert werden. Aus den mittlere-wertsbereinigten Daten wurden anschliessend Variogrammwolken und experimentelle Variogramme berechnet, an die Variogrammodelle angepasst wurden, mit deren Hilfe anschließend die Vorhersage durchgeführt werden kann.

5.2.2 Filtern des mittleren Tagesganges

Eine andere Möglichkeit, zu stationären Residuen zu kommen ist das Filtern des mittleren Tagesganges der betreffenden Stationen nach folgendem Modell:

$$z(x,t) = a(x,t) + e(x,t) \quad (5.4)$$

Die mittleren Tagesgänge wurden in Kapitel 5.1.1 berechnet. Mit einem C++-Programm (Trendabziehen) werden die mittleren Tagesgänge von den Rohdaten subtrahiert. Der Anteil der durch das Modell erklärten Varianz liegt bei ca. 50 %. Auch Guttorp et al. (1994) empfehlen das Abziehen stationsspezifischer Stundenmittelwerte, die an allen Stationen ein ähnliches zeitliches Muster mit niedrigen Werten in der Nacht, einem Ansteigen in den Morgenstunden und einem Maximum am Nachmittag aufweisen. Auch nach dem Abziehen des mittleren Tagesganges, zeigen die Residuen eine starke zeitliche Korrelation (vgl. auch Meiring et al. 1998). Die Autoren benutzen autoregressive Filter zweiter Ordnung, um zu stationären Residuen zu kommen.

5.2.3 Ergebnisse der Trendmodelle im Vergleich

Die Residuen durch Meanpolishing unterscheiden sich von den Residuen durch das Abziehen des mittleren Tagesganges. Berechnet man aus den bereinigten Daten Variogramme in Raumrichtung, so unterscheiden diese sich jedoch nicht. Das Abziehen des globalen (sachsenweiten) Tagesmittelwertes, der ja für alle Stationen gleich ist, wirkt sich auf das Variogramm nicht aus. Hier ist die Art der Trendbereinigung (Meanpolishing bzw. mittleren Tagesgang abziehen) also nicht entscheidend. Die Daten sind in beiden Fällen räumlich stationär. Anders verhält es sich in Zeitrichtung. Hier unterscheiden sich die Variogramme aus den auf unterschiedliche Art und Weise trendbereinigten Daten.

In beiden Fällen ergeben sich Instationaritäten, insbesondere für die verkehrsbeeinflussten Stationen, die sich in zyklischen Schwankungen des Variogramms bzw. der Autokorrelationsfunktion äußern.

Das Abziehen des globalen (sachsenweiten) Tagesmittelwertes beim Meanpolishing wirkt sich auf das räumliche Variogramm nicht aus, weil sich der Wert für die verschiedenen Stationen gleich ist und beim Vergleich der Werte der Stationspaare damit verschwindet.

6. Variogrammschätzung

Als Ausgangsdaten für die Variogrammschätzung in Raumrichtung dienten die Ozonmesswerte der sächsischen Stationen um 16 Uhr im Sommer (Mai, Juni, Juli) der Jahre 1995 bis 1999. Diese Rohdaten wurden, wie in Kapitel 5.2 beschrieben, trendbereinigt, um zu „stationären“ Residuen e_{ij} zu gelangen. Anschließend wurde eine Variogrammanalyse mittels dieser Residuen durchgeführt. Dabei wurden die Variogrammwerte gleicher Zeitpunkte (z.B. 16-Uhr-Werte im Sommer, $T = 92$) stationsweise (i = Stationsindex) nach Formel (6.1) gemittelt. Auch Guttorp et al. 1994 berechnen räumliche Korrelationen über mehrere Zeitpunkte. An dieser Stelle stellt sich die Frage nach der Grundgesamtheit der Prozesse. Betrachtet man diese als die Realisierung des Prozesses bei der aktuellen Großwetterlage, so wird die Variogrammschätzung natürlich wesentlich ungenauer. Aus diesem Grund und wegen des kleinen Darstellungsmaßstabes wurde auf die Unterteilung des Datenkollektivs in allochtone und autochtone Wetterlagen verzichtet, die inhaltlich sicher ihre Begründung hat. Betrachtet man als Grundgesamtheit die Messwerte während des gesamten Sommers, so kann man das Variogramm wesentlich besser schätzen. Es bestehen dann zwar zeitliche Korrelationen zwischen den Messwerten, die zeitliche Mittelung ist aber dennoch erlaubt.

$$g(h) = \frac{1}{2N(h) * T} \sum_{j=1}^T \sum_{i=1}^{N(h)} (e(x_{ij}) - e(x_{ij} + h))^2 \quad (6.1)$$

Während die unbereinigten Daten zu einer eher unstrukturierten Variogrammwolke führen (vgl. Abb. 6.1), scheint das trendbereinigte geostatistische Feld der Ozonimmissionen ein vernünftiges Variogramm zu haben (Hoffmann 2001b). Die experimentellen Variogrammwolken wurden mittels eines C++-Programmes aus den bereinigten Messwerten (Residuen) berechnet.

Dabei wurden die quadrierten Differenzen zwischen zwei Stationen zeitlich gemittelt, um auf diese Weise eine stabilere Variogrammschätzung zu ermöglichen.

Guttorp et al. 1994 stellen in ihrer Arbeit fest, dass sich die Variogramme aus den Daten unterschiedlicher Tageszeiten stark unterscheiden. Dies wird auch in der vorliegenden Studie bestätigt. Es wurden die Variogramme um 6 Uhr (Tagesminimum) und um 16 Uhr (Tagesmaximum) berechnet und miteinander verglichen (vgl. Abb. 6.2).

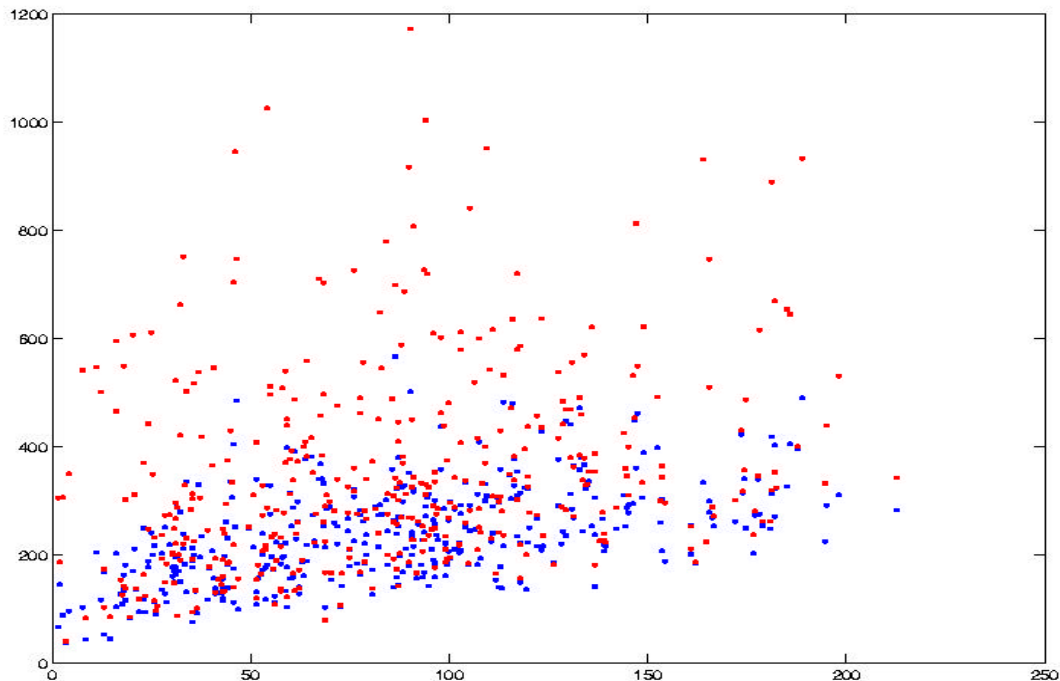


Abb. 6.1: Variogrammwolken im Sommer 1995 aus trendbereinigten (blau) und unbereinigten Daten (rot)

Die Variogrammwerte um 6 Uhr sind in der Regel niedriger als die 16-Uhr-Variogrammwerte, was auf den Skaleneffekt (niedrigere Morgenwerte) zurückzuführen ist, und das Variogramm steigt langsamer an. Große Ausreißer ergeben sich beim Auftreten von gemischten Stationspaaren (ländliche und städtische Stationen). Die Variogrammwerte sind dann extrem hoch. Zu diesem Zeitpunkt sind die Unterschiede zwischen den Stationstypen am größten. Anders verhält es sich mit den 16-Uhr-Werten. Hier treten solche Ausreißer nur ganz vereinzelt auf und die Variogrammwolke sieht insgesamt sehr viel strukturierter aus. Mit Hilfe eines *MATLAB*-Programmes wurde die Anpassung der an die berechneten experimentellen Variogramme durchgeführt.

Dabei wurden die Variogrammparameter nach visuellen und inhaltlichen Gesichtspunkten so bestimmt, dass sie möglichst gut zu den Daten passen. Im Beispiel wurde ein Exponentielles Modell mit den Modellparametern *nugget* = 80 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)² (Restvarianz im Ursprung), *sill* = 380 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ($\sigma^2 = \sigma_S^2 + \sigma_R^2 = 300 + 80$) und *range* = 100 km angepasst (vgl. Abb. 6.3). Für die Jahre 1996 bis 1999 wurden diese Parameter natürlich ebenfalls bestimmt (vgl. Tab. 6.1).

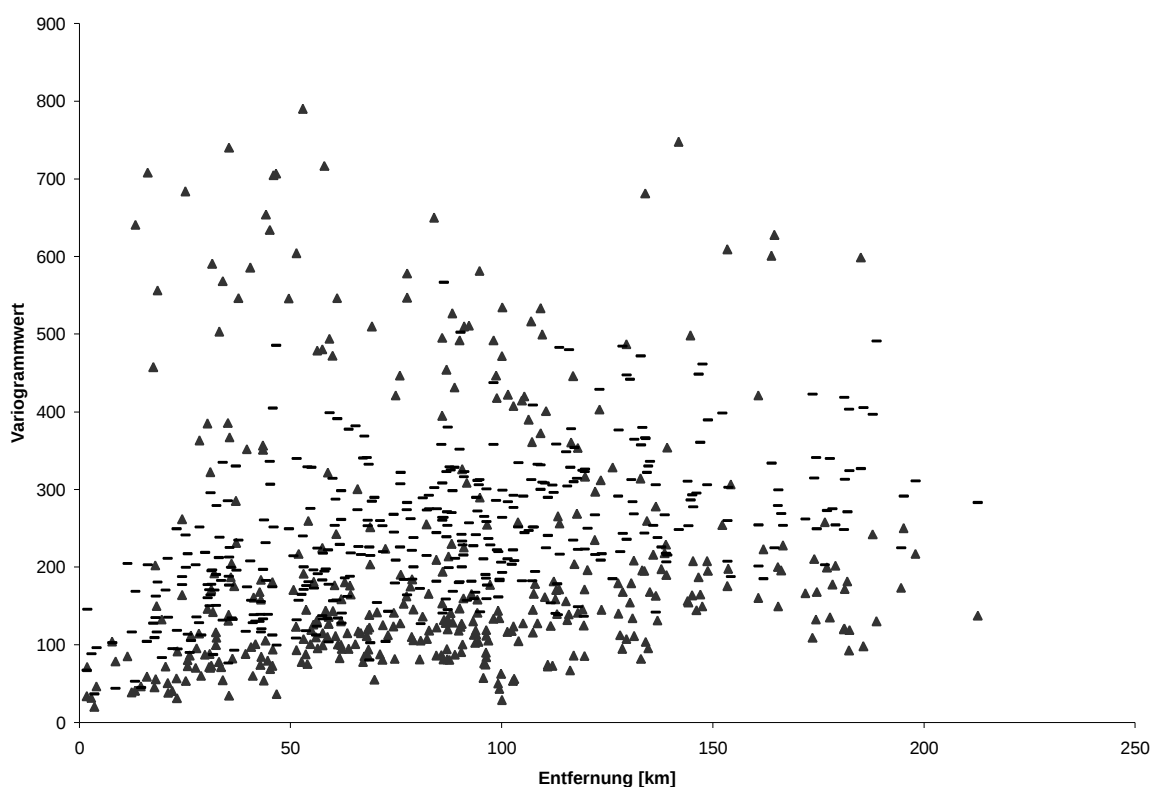


Abb. 6.2: 6-Uhr-Variogrammwolke (Dreiecke) und 16-Uhr-Variogrammwolke (Balken) der Ozonkonzentration im Sommer 1995

Tab. 6.1 Variogrammparameter 1995 bis 1999

Jahr	Sill	Range	Nuggeteffekt
1995	300	100	80
1996	200	40	70
1997	240	80	60
1998	220	80	40
1999	230	80	60

Für die Variogrammmittelwerte der Distanzklassen wurden t -Konfidenzgrenzen für ein Signifikanzniveau von 95 % berechnet (vgl. Tab. 6.2). Die Voraussetzung dafür sind unabhängige normalverteilte Daten. Variogrammwerte sind in der Regel jedoch χ^2 -verteilt.

Da die Variogrammwerte zeitlich gemittelt wurden, sind sie jedoch annähernd normalverteilt. Für die ersten beiden Distanzklassen ist das Konfidenzintervall fragwürdig, da nur sehr wenige Werte für die Schätzung zur Verfügung stehen. Bei diesen wenigen Werten wird jedoch davon ausgegangen, dass sie relativ stabil geschätzt sind, da sie auf mehreren Messwerten beruhen.

Tab. 6.2: 95 %-Konfidenzintervall für die Variogrammschätzung

Distanzklasse	Konfidenzintervall
0-10 km	6,95
10-20 km	30,13
20-30 km	26,61
30-40 km	20,38
40-50 km	32,46
50-60 km	22,57
60-70 km	34,52
70-80 km	24,73
80-90 km	24,49
90-100 km	30,17
100-110 km	25,68
110-120 km	40,64
120-130 km	55,82
130-140 km	36,4
140-150 km	36,14
150-160 km	30,69

Von besonderer Bedeutung ist es, insbesondere in Hinsicht auf den Entwurf von Messnetzen, die Reichweite der räumlichen Zusammenhänge festzustellen (Stoyan et al. 1997). So scheint der, in der vorliegenden Untersuchung abgeleitete range, sogar größer als das Beobachtungsfenster von 220 km zu sein. Der abgeleitete range ist gut mit dem von anderen Autoren ermittelten range (Tilmes 1999, Phillips et al. 1997) vereinbar. Vergleiche des sills mit Angaben in anderen Publikationen sind meist nicht möglich, da die Autoren vor der Variogrammodellierung meist Datentransformationen durchführen.

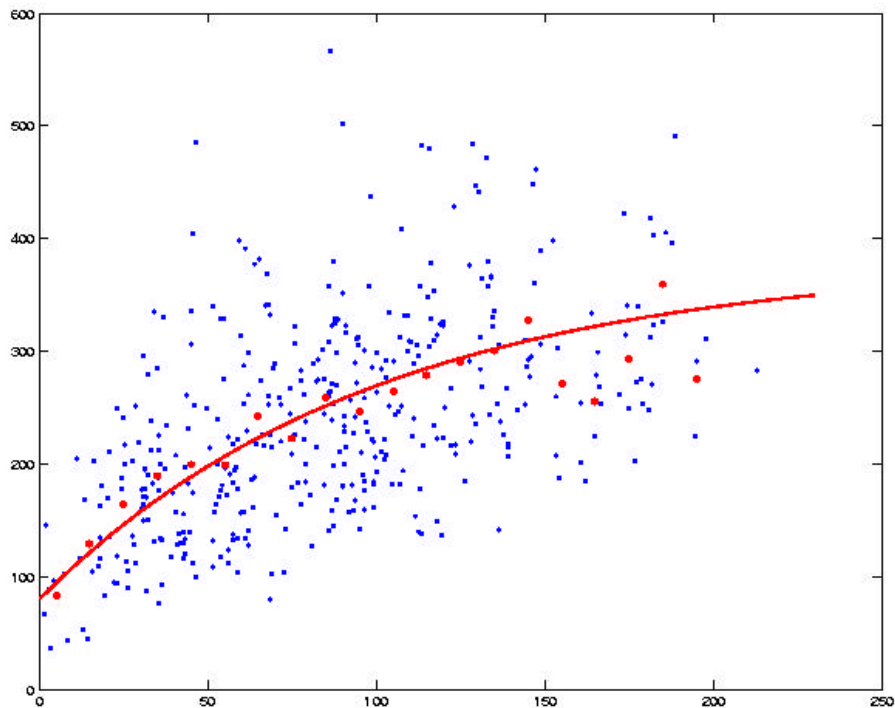


Abb. 6.3: Anpassung eines Exponentiellen Variogrammmodells an die Variogrammwolke bzw. die klassifizierten Werte (rote Punkte)

Die bei der räumlichen Vorhersage mit einem Exponentiellen Modell entstehenden Flächen sind weniger glatt als zum Beispiel bei einem Gaußschen Modell. Diese Interpolationsflächen haben an den Stützstellen Spitzen. Dies ist mit dem Prozess der Ozonverteilung gut vereinbar; durch Städte (repräsentiert durch die Lage der Messstellen) wird der Ozonwert kleinräumig stark herabgesetzt.

6.1 Anisotropieuntersuchung

Es wurde geprüft, ob die um den Tages- und Stationseinfluss trendbereinigten Werte (Residuen, vgl. Kapitel 5) bzw. deren Variogrammwerte noch eine Anisotropie aufweisen, d.h. ob es sich um eine Anisotropie des Trends, die durch die Trendelimination verschwinden sollte, oder eine Anisotropie des zufälligen Prozesses $S(x)$ (vgl. Kapitel 3.2) handelt.

Die nach Formel (6.1) ermittelten experimentellen Variogrammwerte wurden räumlich interpoliert - sozusagen eine „Variogrammkarte“ (interpolierte Karte der Variogrammwerte) erstellt.

Es wird dabei davon ausgegangen, dass die Wahl des Interpolationsverfahrens nicht entscheidend für das Interpolationsergebnis ist. Wenn die Eingangsdaten stark anisotrop sind, dann wird sich das, unabhängig vom Interpolationsverfahren, auch in der Variogrammkarte zeigen. Als Koordinaten dienen dabei nicht die ursprünglichen Koordinaten, sondern deren Hoch- und Rechtswertdifferenzen (Δx und Δy). Die entstehende Abbildung ist punktsymmetrisch im Ursprung. Auf der Ordinate sind die Rechtswertdifferenzen, auf der Abszisse die Hochwertdifferenzen aufgetragen. Deutlich erkennbar ist die Reichweite (range) des Prozesses von ca. 100 km. Bei größeren Entfernungen als der range werden die Variogrammwerte sehr hoch und damit die Unähnlichkeit groß. Die Struktur zeigt in gewisser Weise natürlich auch die Messnetzgeometrie. Eine Anisotropie ist nicht deutlich zu erkennen. Somit ist gezeigt, dass es sich um eine Anisotropie des Trends (der zuvor eliminiert wurde), nicht aber um eine Anisotropie des Prozesses handelt. Dies kann als Bestätigung für das eingesetzte Trendeliminationsverfahren gewertet werden.

Insgesamt kann festgestellt werden, dass die Variogrammkarte (vgl. Abb. 6.4) keine ausgeprägte Anisotropie erkennen lässt. Im folgenden wird deshalb von isotropen Variogrammodellen (natürlich nach der Elimination des anisotropen Trends) ausgegangen.

Eine isotrope Korrelationsstruktur ist auch das Ergebnis der Untersuchung von stündlichen Ozondaten von Guttorp et al. 1994 im San Joaquin Valley in Kalifornien.

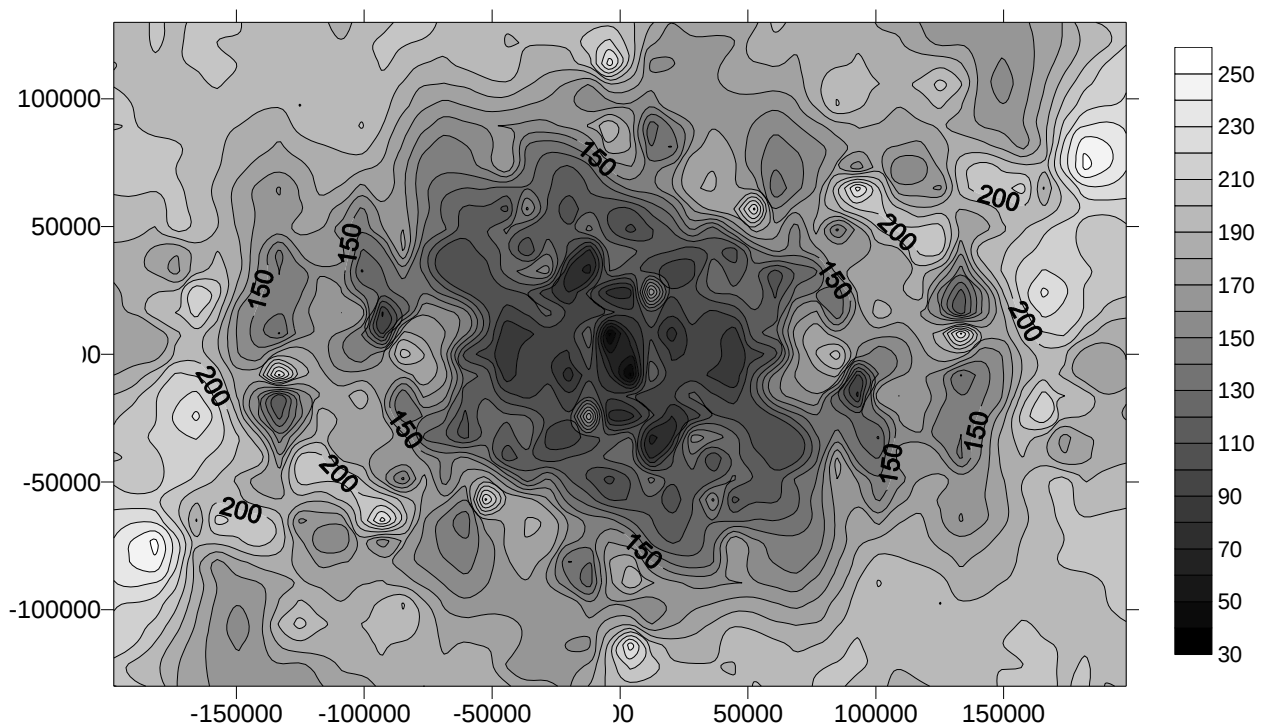


Abb. 6.4: Variogramkarte aus trendbereinigten Daten

6.2 Nuggetproblem

Es stellte sich heraus, dass der Nuggeteffekt des abgeleiteten Variogrammodells mit 20 bis 25 % des Gesamtsills verhältnismäßig hoch ist und dass die Ursache für diesen hohen Nuggeteffekt in den Städten mit mehreren Messstationen (Chemnitz, Dresden und Leipzig) zu suchen ist (Hoffmann 2001a). Diese Stationen innerhalb einer Stadt messen auf engem Raum ganz unterschiedliche luftchemische Regime. Durch die in den Städten messenden Stationen entsteht ein hoher Nuggeteffekt, der nicht das reale Verhalten von Ozonimmissionen im Nahbereich widerspiegelt, sondern sozusagen ein Artefakt des Messnetzes, das diese großen Unterschiede im Nahbereich zu stark abtastet. Die Kontinuitäten im Nahbereich werden jedoch nicht erfasst, weil es keine eng benachbarten ländlichen Stationen gibt, was ja auch messtechnisch nicht von Interesse ist, aber für eine bessere Variogrammschätzung im Nahbereich eigentlich notwendig wäre.

Die Unterschiede zwischen den Stationen können durch das einfache Abziehen eines Stationsmittelwertes oder ein lineares Umrechnen nicht eliminiert werden. Sie sind offensichtlich komplexerer Natur. Im einzelnen handelt es sich um die in der folgenden Tabelle beschriebenen Stationen.

Tab. 6.3: Charakteristik der Stationen im Nahbereich

Station	Höhe ü NN	Meßstellenkategorie	Gebiet	Lage, Orographie
Chemnitz-Mitte	300	Fläche	Innenstadt	Becken
Chemnitz-Nord	296	Verkehr	Innenstadt	Becken
Dresden-Nord	112	Verkehr	Innenstadt	Tal
Dresden-Post	112	Fläche	Innenstadt	Tal
Radebeul	191	Fläche	Stadttrand	Hügel
Leipzig-Mitte	110	Verkehr	Innenstadt	Ebene
Leipzig-Süd	120	Fläche	Innenstadt	Ebene
Leipzig-West	115	Fläche	Stadttrand	Ebene

Diese acht Stationen führen zu den sieben Stationspaaren (Chemnitz eins, Dresden drei und Leipzig drei), die weniger als 10 km voneinander entfernt sind; sie sind also allein für den Variogrammwert der ersten Distanzklasse verantwortlich. Dies sind die Paare Chemnitz-Mitte/Chemnitz-Nord (1,8 km), Dresden-Post/Dresden-Nord (1,73 km), Dresden-Post/Radebeul-Wahnsdorf (7,69 km), Dresden-Nord/Radebeul-Wahnsdorf (8,65 km), Leipzig-Mitte/Leipzig-Süd (2,81 km), Leipzig-Mitte/Leipzig-West (4,06 km) und Leipzig-Süd/Leipzig-West (3,53 km). Die größten Unterschiede entstehen bei Kombinationen aus Verkehrs- bzw. Flächenstationen, bei gleichen Stationspaaren sind die Korrelationen sehr viel besser. Probleme machen die Chemnitzer sowie Leipziger Stationen. Die Intensität ist von Jahr zu Jahr verschieden. Die Dresdener Stationen korrelieren trotz der verschiedenen Kategorien in der Regel sehr viel besser.

Es entstand die Idee, die Messwerte umzurechnen, derart, dass die Residuen an einer Station über eine Regression mit den Residuen der anderen Station ausgedrückt werden, also z.B. alle Werte auf „Stadtstation“ umzurechnen. Während die Rohdaten der betroffenen Stationen sehr hoch korrelieren, was nicht zuletzt auf die Ähnlichkeiten der Tagesgänge (also auf zeitliche, nicht auf räumliche Effekte) zurückgeführt werden muss, liegen die Verhältnisse für die Residuen anders. Durch die Trendelimination werden die zeitlichen Ähnlichkeiten aufgrund der Ähnlichkeit der Tagesgänge weitgehend herausgefiltert.

Die Folge ist, dass die Residuen nur noch schwach korrelieren. Dies betrifft vor allen Dingen die beiden Chemnitzer Stationen sowie die beiden Leipziger Stationen Leipzig-Süd und Leipzig-Mitte.

Für die Leipziger Stationen beträgt die Korrelation der Residuen immerhin noch 67 % und der Regressionsansatz wird durchgeführt. Dadurch wird der Variogrammwert für dieses Stationspaar um ca. 30 Einheiten erniedrigt. Mit diesem Ansatz können jedoch lediglich die ohnehin schon relativ niedrigen Variogrammwerte im Nahbereich (d.h. gute Korrelationen zwischen den Residuen der Stationen) weiter herabgesetzt werden. Die Stationspaare, die den hohen Nuggeteffekt verursachen, z.B. die beiden Chemnitzer Stationen, können so nicht bearbeitet werden, weil das Bestimmtheitsmaß der Regression hier nahe Null liegt. Das Verfahren wäre vermutlich erfolgsversprechender einzusetzen gewesen, wenn die Korrelationen zwischen den Residuen eindeutiger ausgefallen wären, so dass man alle Messwerte hätte auf einen Stationstyp „Stadt“ oder einen Stationstyp „Land“ umrechnen können.

Aufgrund der Streudiagramme der Residuen aller sieben beteiligter Stationspaare (vgl. Abb. 6.5) wurden kritische Fälle außerhalb des 95 %-Konfidenzintervalls identifiziert und aus der Variogrammberechnung ausgeschlossen. Dadurch konnten Verbesserungen der Variogrammwerte im Nahbereich erreicht werden. Außerdem wurden diese Ausreißerfälle einer qualitativen Analyse unterzogen. Es ist offensichtlich so, dass Ausreißer dann auftreten, wenn die Konzentrationen an der weniger stark verkehrsbeeinflussten Station besonders hoch im Vergleich zur stärker verkehrsbeeinflussten Station sind. Dies ist in der Regel dann der Fall, wenn die Windrichtung von der verkehrsärmeren zur verkehrsreicheren Station verläuft (vgl. Kapitel 6.2).

Eine bessere Schätzung des Nuggeteffektes kann erreicht werden, indem die jeweils verkehrsreichsten Stationen einer Stadt, also Chemnitz-Nord, Dresden-Nord und Leipzig-Mitte aus der Variogrammschätzung herausgelassen werden. Auf diese Weise bleiben die Paare Dresden-Post/Radebeul-Wahnsdorf sowie Leipzig-Süd und Leipzig-West für die Variogrammschätzung in der Distanzklasse kleiner 10 km erhalten und man erhält ein realistischeres Bild für den Nuggeteffekt, der nur etwa ein Viertel des aus allen Daten berechneten Nuggeteffektes beträgt.

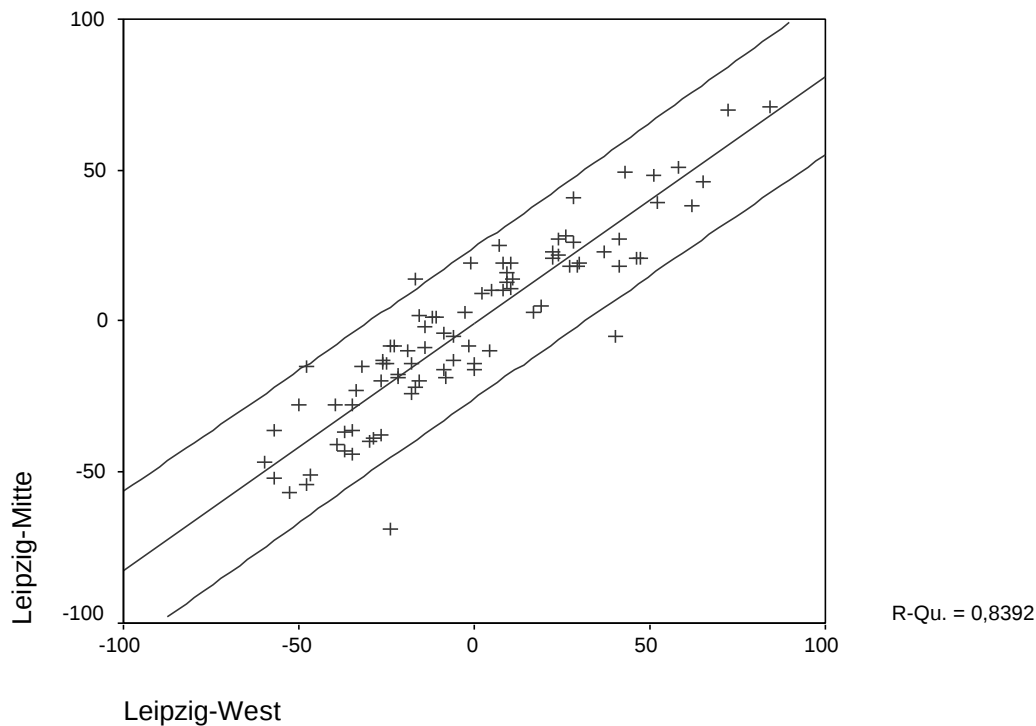


Abb. 6.5: Streudiagramm der Residuen der Stationen Leipzig-Mitte und Leipzig-West

Nun kann ein neues Variogrammmodell mit den Parametern 20, 300, 60 angepasst werden (vgl. Abb. 6.6, Tab. 6.3), d.h. der ursprünglich erhaltene Nuggeteffekt wurde auf ein Viertel reduziert. Ebenso wurde für die anderen Jahre verfahren. Dabei ergaben sich die in Tabelle 6.4 dargestellten Modellparameter. Es handelt sich bei allen Modellen um Exponentielle Modelle. Schaut man sich die Modellparameter an, so fällt auf, dass sie recht ähnlich sind und eine Vorhersage des Variogrammmodells möglich ist, ohne das empirische Variogramm der zu interpolierenden Daten zu kennen. Dies erscheint auch deshalb möglich, da das empirische Variogramm letztlich nur statistischer Ausdruck der zugrundeliegenden Prozesse und kausalen Zusammenhänge ist. Die Variogrammparameter der einzelnen Jahre sind sehr ähnlich bis auf Unterschiede im sill. Die Unterschiede im sill führen bei der Vorhersage zu denselben Vorhersagewerten, allerdings mit unterschiedlichen Vorhersagefehlern. Die Ozonkonzentration in Sachsen kann also mit einem Variogrammmodell aus vorhergegangenen Sommern, etwa mit den Parametern nugget 10, sill 230 und range 60, modelliert werden. Die Genauigkeit kann natürlich nicht als hoch angesehen werden und die Ergebnisse sind deshalb mit Vorsicht zu bewerten.

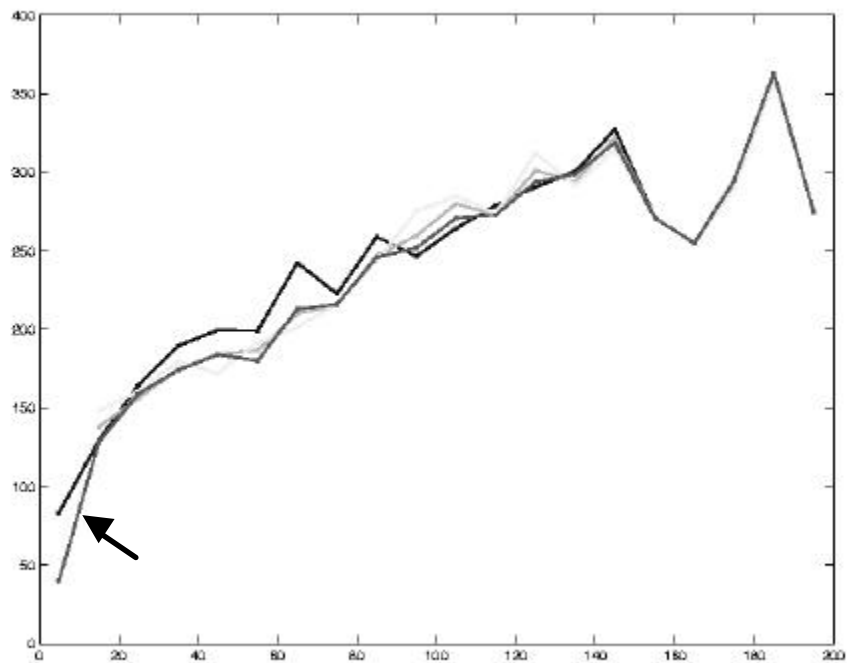


Abb. 6.6: Experimentelle Variogramme nach Auslassen von Stationen

Tab. 6.4: Parameter der Exponentiellen Variogrammmodelle unter Berücksichtigung des Nuggetproblems

Jahr	Nugget- effekt	Schwellen- wert	Reich- weite [km]
1995	20	300	60
1996	0	200	40
1997	10	240	80
1998	10	220	80
1999	30	230	80

6.3 Bedeutung der Windrichtung

Wie bereits erwähnt wurde (vgl. Kapitel 2.1), spielt der Wind für die raumzeitliche Ozonverteilung eine wichtige Rolle. Deshalb lag auch hier der Verdacht nahe, dass der hohe Nuggeteffekt mit der Windrichtung und dem damit verbundenen Transport schadstoffbelasteter Luft in Verbindung steht. Um diese Vermutung zu überprüfen, wurden zunächst die Streudiagramme der Residuen von jeweils zwei Stationen in derselben Stadt betrachtet.

Dabei ist auffällig, dass offensichtlich systematisch Ausreißer nach unten auftreten, wenn die Werte der verkehrsreicheren Station (Ordinate), die der verkehrsärmeren Station (Abszisse) aufgetragen werden, d.h. an der verkehrsärmeren Station treten sehr viel höhere Konzentrationen auf als dies im Mittel gegenüber der verkehrsreicheren Station der Fall ist. Nach der Identifizierung dieser Ausreißerfälle wurden die Windrichtungen an den Stationen zu diesen Zeitpunkten betrachtet. Dabei stellte sich heraus, dass die Ausreißer dann auftreten, wenn die verkehrsreichere Station im Lee liegt (also der Wind in Richtung der Orientierung der Stationen zueinander weht). Dadurch kommt es an der verkehrsreicheren Station zur Advektion von stickoxidhaltiger Luft. Dadurch wird das Ozon dort noch schneller abgebaut und der Gradient zwischen den Stationen wird größer. Die Ausreißer treten aber auch in der anderen Richtung auf, d.h. extrem hohe Werte an der verkehrsreicheren Station im Vergleich zur verkehrsärmeren Station, wenn der Wind in entgegengesetzte Richtung weht, d.h. die verkehrsreichere Station im Luv liegt. Dieser Effekt tritt aber nur im Nahbereich innerhalb der Städte auf, für weiter voneinander entfernte Stationen kann kein systematischer Effekt festgestellt werden. Fälle mit solchen Windkonstellationen sollten strenggenommen bei der Variogrammberechnung ausgeschlossen werden. Zunächst ist ein relativ hoher Aufwand für die Identifizierung dieser Fälle notwendig. Außerdem sind die Angaben der Windrichtungen an den Stationen immer mit relativ großen Unsicherheiten verbunden. Wie oben erwähnt, werden gute Ergebnisse dadurch erreicht, dass man die am stärksten verkehrsbelastete Station einer Stadt aus der Variogrammanalyse ausschließt. Generell kommt es durch Städte und dem damit verbundenen Verkehr zur Ozonreduktion. Zu einer besonders großen Reduktion kommt es kleinräumig innerhalb von Straßenschluchten. Die höchsten Ozonkonzentrationen treten nach derzeitigem Wissen ca. 30 bis 50 km leewärts von Städten auf. Das Ozon der Städte wird in der Regel nicht durch Advektion von außen herantransportiert, sondern entsteht durch thermische Turbulenz und vertikale Einmischung.

7. Räumliche Vorhersage - Kriging

Nachdem die Variogrammschätzung abgeschlossen ist, können wir uns dem eigentlichen Vorhersageproblem zuwenden. Die Vorhersage kann nicht mit einem einfachen Krigingverfahren erfolgen, da die Ozonimmissionen u.a. vom Verkehrseinfluss und der Höhenlage abhängig sind. Diese Driftinformationen sind jedoch a priori nur an den Messstellen bekannt. Als zusätzliche flächendeckende Information kann das digitale Höhenmodell (*DHM*) von Sachsen in einer Auflösung von 2500 m verwendet werden. Als weitere Zusatzinformation wurde ein Gitter in derselben Dimension wie das DHM erzeugt, das Gitterzellen, die eine Stadt enthalten eine eins zuweist und sonst nur Nullen enthält. Viele Städte sind durch das Messnetz bereits abgedeckt, einige Mittelstädte wie Torgau, Meißen und Riesa jedoch nicht. Deshalb ist diese Zusatzinformation ebenfalls wichtig. In diesem Kapitel werden die Schwierigkeiten der räumlichen Interpolation speziell für das sächsische Immissionsmessnetz offensichtlich. Es können nur wenige Beispiele gezeigt werden. Besonderer Wert wurde auf eine möglichst exakte Variogrammschätzung gelegt (vgl. Kapitel 6), die ja die Grundvoraussetzung für eine vernünftige Vorhersage ist und ohne kritisches Hinterfragen im gegebenen Fall zu einer zumindest zweifelhaften Vorhersage geführt hätte.

7.1 Schwierigkeiten der Vorhersage

Die räumliche Ozonverteilung, die durch anthropogene und biogene Emissionen ausgelöst wird, ist eine schwer zu modellierende Variable, da die Ozonkonzentration zeitlich und räumlich stark variiert. So kann laut Loibl et al. 1994 die Ozonkonzentration in Gebieten mit komplexer Topographie auf Distanzen von weniger als 25 km um über 200 % variieren.

Selbst bei mittleren Windgeschwindigkeiten von 3 m/s kann das Ozon innerhalb von 10 h um 100 km verfrachtet werden (Fiedler 2000). Hinzu kommen noch Probleme, die aus der Messnetzkonfiguration resultieren. Das Messnetz wurde einst geplant, um die Maximalkonzentrationen von Primärschadstoffen (im wesentlichen Schwefeldioxid und Stickoxide) möglichst gut abschätzen zu können. Die meisten Messstellen befinden sich deshalb in städtischen Ballungsgebieten. Diese Messstellen sind bezüglich des Ozons allerdings nur sehr kleinräumig repräsentativ. Durch den Einfluss des Menschen ist die Repräsentativität der Messstellen also begrenzt durch die lokal unterschiedlichen Emissionscharakteristika. In der Zwischenzeit hat sich die Problematik in der Luftreinhaltung in Richtung der Sekundärschadstoffe (Ozon, Peroxiacetylnitrat (*PAN*) und andere) verschoben. In den Gebieten, in denen die maximalen Ozonkonzentrationen erwartet werden dürfen, ca. 30 bis 50 km im Lee der großen Städte, fehlen jedoch nach wie vor Messstellen. Auch in den Reinluftgebieten gibt es nur verhältnismäßig wenige Messstellen (Carlsfeld, Collmberg, Fichtelberg, Schwartenberg und Zinnwald). Diese sind noch dazu relativ weit voneinander entfernt, so dass sie kaum Aufschlüsse über das Verhalten über geringe Distanzen liefern. Im Nahbereich entsteht durch mehrere Messstellen in derselben Stadt (vgl. Kapitel 6.1) deswegen der Eindruck, dass ein relativ grosser Nuggeteffekt vorliegt. Dieser ist jedoch ausschließlich auf die Messnetzgeometrie zurückzuführen. Hätte man im Nahbereich auch Paare von ländlichen Stationen gehabt, hätte sich ein anderes Bild ergeben. Die städtischen Stationen können auf engem Raum sehr unterschiedliche Ergebnisse liefern, insbesondere bei entsprechenden Windrichtungen. Diese Tatsache muss bei der Variogrammschätzung unbedingt berücksichtigt werden.

Sowohl die Verteilung als auch die lokalen Charakteristika der Messstellen in Sachsen sind sehr inhomogen. So betonen auch Phillips et al. 1997, dass der Mangel an Messstationen in nicht-städtischen Gebieten zu Problemen beim Kriging oder anderen einfacheren Interpolationsmethoden wie Inverse Distanzverfahren für die Vorhersage des Ozongehalts führt. Wenn die Messstellen nicht für das gesamte Untersuchungsgebiet repräsentativ sind, sind die Vorhersagen meist verzerrt.

Zu diesem räumlichen Aspekt kommt noch der zeitliche Repräsentativitätsaspekt. So ist die Repräsentativität von Nachmittagsdaten an ländlichen Stationen etwa doppelt so hoch einzuschätzen wie die Repräsentativität von morgendlichen Messungen an verkehrsbeeinflussten Stationen (Tilmes 2001).

Ein weiteres Problem besteht darin, dass die Informationen über die Driftvariablen (Stadt, Grad der Emissionsbeeinflussung) nur an den Messstellen vorliegen.

Flächendeckende Informationen (also an allen Vorhersagestellen) sind oft nur schwer zugänglich und/oder mit relativ großen Unsicherheiten (v.a. Emissionsdaten) belastet.

Ein Problem der Darstellung ergibt sich bei der räumlichen Interpolation insofern, dass die Interpolation ein rechteckiges Gitter liefert, das über die Grenzen des Untersuchungsgebietes hinausgeht, also auch Gebiete abdeckt, in denen es keine Messstellen gibt. Hier sind die Ergebnisse der Interpolation natürlich mit großen Unsicherheiten verbunden. Da die Kartendarstellung für das Bundesland Sachsen angestrebt wurde, war es aus darstellerischen Gründen notwendig, die Landesgrenzen aus dem Interpolationsrechteck auszuschneiden. Dies ist anhand einer sogenannten bln-Datei (englisch blank), die die digitalen Grenzen Sachsens enthält, möglich. Die bln-Datei enthält in der ersten Zeile die Anzahl der Punkte des Polygons und dann die Koordinaten (Hoch- und Rechtswerte) der Punkte, durch die diese Grenze digitalisiert wurde. Blankt man ein Interpolationsgitter mit dieser Datei, so erhält man ein neues Gitter, in dem Werte außerhalb Sachsens ausgeblendet sind. Eine solche Datei mit den digitalen Umrissen eines Landes oder Bundeslandes lässt sich auch aus den bei ArcView mitgelieferten Datensätzen (shape-files) relativ leicht erzeugen. Es muss jedoch darauf hingewiesen werden, dass der Grenzverlauf aufgrund von Rundungen der Gauß-Krüger-Koordinaten (die Koordinaten der Messstationen sind nur auf 10er Meter genau) nicht exakt mit dem tatsächlichen Grenzverlauf übereinstimmt. Für diese Darstellungszwecke ist er jedoch ausreichend.

Durch Änderungen der Dateiköpfe lassen sich die Interpolationsergebnisse auch mit *ISATIS* oder *ArcView* darstellen. Außerdem gibt es direkte Schnittstellen zwischen den verschiedenen Systemen. Durch das äquidistante Raster (2500 m) ist auch eine Darstellung mit *MATLAB* möglich.

7.2 Driftvariablen für die Vorhersage

Die Driftvariablen bezüglich des Ozons lassen sich qualitativ relativ leicht benennen: Emissionen von anthropogenen und biogenen Vorläufersubstanzen, räumliche und zeitliche Nähe zu den Emissionsquellen, Jahres- und Tageszeit, Wettereinfluss (Globalstrahlung, Windrichtung, Windgeschwindigkeit) und die Höhenlage der Stationen. Schwieriger wird es allerdings, wenn diese Einflussfaktoren quantifiziert werden sollen.

Emissionsangaben sind meist mit mehr oder weniger großen Unsicherheiten behaftet, das Verkehrsaufkommen und vor allem die meteorologischen Bedingungen unterliegen starken Schwankungen.

Natürlich gibt es darüber hinaus auch noch zahlreiche Interdependenzen zwischen diesen Einflussfaktoren, so dass der Einfluss eines einzelnen Faktors auf die Ozonkonzentration nur schwer zu bestimmen ist, der oft durch den Einfluss anderer Faktoren verwischt wird. Viele bekannte Gesetzmäßigkeiten (z.B. die Konzentrationen sind in den Städten niedriger als auf dem Land) gelten nur im Mittel. Die einzelnen Realisierungen können jedoch stark von diesen mittleren Gesetzmäßigkeiten abweichen. Selbst numerische Ausbreitungsmodelle sind derzeit nicht in der Lage, diese Einflussfaktoren hinreichend genau zu berücksichtigen (Drüeke 1995). Die wichtigsten Einflussfaktoren Wetter, Verkehr und Höhe sollen für die vorliegenden Untersuchungen dennoch berücksichtigt werden.

Das Wetter wurde insofern berücksichtigt, dass man sich auf drei Sommermonate (Mai, Juni, Juli) und hier in der Regel auf die 16-Uhr-Werte (Tagesmaximum) beschränkt hat. Der Verkehrseinfluss ist in den Messwerten in Form der Höhe der Werte und der Form des Tagesganges an den Messstellen enthalten. Ebenso sollte die Höhe der Station in den Messwerten enthalten sein. Theoretisch sollten deshalb die genannten Einflüsse im Rahmen der Trendelimination (vgl. Kapitel 5.2) eliminiert worden sein, was durch die Isotropieuntersuchung (vgl. Kapitel 5.3) auch bestätigt wird.

Außerdem wurde ein Kriging der Originalwerte mit dem Geländemodell als externer Driftvariablen eingesetzt. Die Ergebnisse sind ähnlich wie beim Ordinary Kriging mit dem residuellen Variogramm. Beim Kriging mit dem Geländemodell als externer Driftvariablen wird jedoch nur ein Einflussfaktor berücksichtigt und dessen Einfluss auf die Ozonkonzentration deshalb möglicherweise überschätzt. Vorzuziehen ist deshalb der Ansatz des Ordinary Krigings mit dem Variogramm der Residuen, weil hier die Wechselwirkungen der Einflussfaktoren vermutlich besser berücksichtigt werden. Interpoliert man die Halbstundenmittelwerte zu einem bestimmten Zeitpunkt, so können die Ergebnisse in den erstellten Karten auf den ersten Blick merkwürdig erscheinen, je nachdem, wie gut diese Szene mit den mittleren Ozonverhältnissen übereinstimmt oder auch nicht übereinstimmt. Nicht immer sind deshalb die Konzentrationen in den Städten niedriger als auf dem Land. Die Natur hat also unter Vernachlässigung der Zeitabhängigkeit eine Vielzahl von Realisierungen eines Zufallsfeldes ausgebildet. Ein Problem besteht auch darin, wie man die Informationen über die Driftvariablen flächendeckend zur Verfügung stellen kann.

Der Ordinary Kriging-Ansatz (mit residuellem Variogramm) führt an den Messstellen selbst und in ihrer unmittelbaren Umgebung zu guten Ergebnissen, Probleme entstehen an den Vorhersagestellen, v.a. wenn dort Städte sind oder besondere topographische Verhältnisse vorliegen. Diese Information ist dann nicht in den Messwerten enthalten und kann durch die Interpolation nicht berücksichtigt werden. Aufgrund der räumlich dichteren Sekundärinformationen sehen deshalb die Karten, die durch ein Kriging mit externer Drift erzeugt werden, räumlich auch wesentlich differenzierter aus als Karten, die ohne Sekundärinformationen erzeugt werden.

7.3 Geeignete Krigingverfahren

Die Ozonverteilung ist von verschiedenen Driftvariablen abhängig. Es gibt verschiedene Möglichkeiten, diese Driftvariablen in die Vorhersage zu integrieren. Das Kriging mit Externer Drift (KED) (vgl. Kapitel 3.2.2.3) stellt eine Möglichkeit zur Integration von Driftvariablen dar. Im vorliegenden Fall wurde ein Externes Drift Kriging mit der Höhe durchgeführt. Auf der Grundlage des in Kapitel 6 abgeleiteten Variogrammmodells der Residuen kann die räumliche Vorhersage erfolgen. Um die Daten in einem von *SURFER* direkt verarbeitbaren Format ausgeben zu können, wurden C++-Programme für Ordinary Kriging, Universal Kriging und die Krigingstandardabweichung geschrieben. Die Visualisierung der Ergebnisse erfolgt mit *SURFER*. Es wurde ein Ordinary Kriging der Messwerte, die den Trend enthalten, auf der Grundlage des Variogramms der Residuen durchgeführt. Theoretisch hätte man auch eine Karte des sachsenweiten Trends und eine Karte der Residuen erstellen und diese dann addieren können. Hier bestehen allerdings Schwierigkeiten bei der Erstellung dieser sachsenweiten Trendkarte. Da für die Vorhersage nur globale Verfahren eingesetzt werden, ist es mathematisch unbedeutend, ob man die Messwerte (die den Trend ja enthalten) mit dem residuellen Variogramm krigt oder zu einer Trendkarte die mit dem residuellen Variogramm gekrigten Residuen hinzuaddiert. Der Einsatz globalen Krigings scheint auch deswegen berechtigt, weil dadurch der globale Mittelwert besser geschätzt wird. Weit entfernte Punkte erhalten ohnehin ein sehr niedriges Gewicht. Früher wurde oft aufgrund mangelnder Rechnerkapazitäten eher lokales Kriging bevorzugt; ein Argument, das heutzutage außer Kraft ist. Außerdem wurde mit *ISATIS* ein Kriging mit externer Drift (vgl. Kapitel 3.3.2) mit dem Digitalen Geländemodell Sachsens (vgl. Abb. 7.1) durchgeführt.

Die Ergebnisse wurden über mehrere Zwischenschritte (Datenimport in *ISATIS*, Externes Drift Kriging, Ergebnisexport in *ArcView*-Datei, Umwandlung der *ArcView*-Datei in eine *SURFER*-grid-Datei) mit *SURFER* visualisiert (Rasterkarte mit Isolinien überlagert), um die Vergleichbarkeit der Darstellungen zu gewährleisten.

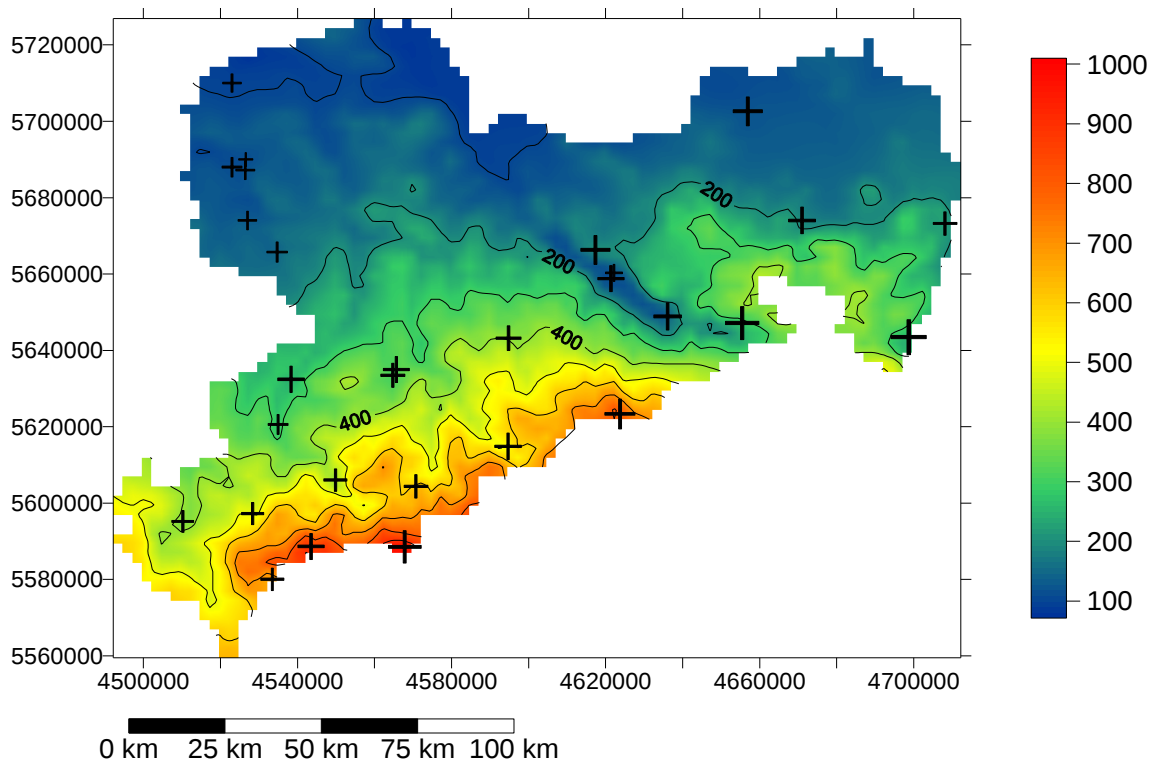


Abb. 7.1: Digitales Geländemodell [m] von Sachsen

Als Beispieldatensatz wurde die Ozonkonzentration am 30. Mai 1995 um 16 Uhr ausgewählt. Dabei handelt es sich um einen Datensatz, der die mittlere Ozonverteilung relativ gut darstellt. Die Messwerte können Tabelle 7.1 entnommen werden. Es stehen an 29 Stationen Messungen zur Verfügung (die Stationen Collmburg und Schwarzenberg sowie Plauen-Süd sind zu diesem Zeitpunkt noch nicht im Messprogramm). Die höchsten Konzentrationen treten in Zittau-Ost ($116 \mu\text{g}/\text{m}^3$), in Mitteldorf ($106 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und am Fichtelberg ($104 \mu\text{g}/\text{m}^3$) – also entlang des Erzgebirgskammes – auf. Die niedrigsten Konzentrationen findet man an den Stationen Leipzig-Mitte ($19 \mu\text{g}/\text{m}^3$), Dresden-Nord ($33 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Delitzsch ($39 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Auffallend ist weiterhin der starke Konzentrationsunterschied zwischen den Stationen Dresden-Nord ($33 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Dresden-Post ($75 \mu\text{g}/\text{m}^3$) auf engem Raum (Entfernung 1,73 km).

Die Vorhersage wird also in diesem Gebiet die größten Fehler aufweisen müssen, weil das Vorhersageverfahren nicht in der Lage ist, diese großen Schwankungen kleinräumig wiederzugeben. Aufgrund der großen Variabilität dieser Momentaufnahmen liefert natürlich auch die räumliche Vorhersage unterschiedlicher Zeitpunkte ganz unterschiedliche Bilder. Die meisten Gesetzmäßigkeiten gelten nur im Mittel. Eine Interpolation der Stationsmittelwerte dürfte deshalb zu gesicherteren Ergebnissen führen.

Tab. 7.1: Ozonkonzentrationen am 30.05.1995, 16 Uhr

Messstation	Rechtswert	Hochwert	Ozon
Annaberg-Buchholz	457076	560436	63
Aue	454984	560602	59
Auerbach	452836	559721	56
Bautzen	467097	567402	77
Böhlen	452700	567400	39
Borna	453470	566573	47
Carlsfeld	454352	558862	75
Chemnitz-Mitte	456472	563343	65
Chemnitz-Nord	456565	563497	73
Delitzsch	452300	571000	39
Dresden-Nord	462217	566032	33
Dresden-Post	462140	565877	75
Fichtelberg	456785	558849	104
Freiberg	459481	564319	69
Glauchau	453831	563242	77
Görlitz	470812	567322	63
Hoyerswerda	465690	570262	88
Klingenthal	453345	558002	59
Leipzig-Mitte	452655	568998	19
Leipzig-Süd	452643	568717	40
Leipzig-West	452300	568800	45
Mittelndorf	465545	564713	106
Olbernhau	459466	561485	76
Pirna	463610	564887	80
Plauen	451021	559515	55
Radebeul-Wahnsdorf	461735	566631	87
Zinnwald	462374	562332	92
Zittau-Ost	469870	564345	116
Zwickau	453493	562059	46

Die Interpolationsergebnisse ($21,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis $115,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) schwanken in der Regel nicht in dem Maße wie die Messwerte ($19 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis $116 \mu\text{g}/\text{m}^3$), da die Messstellen durch das Raster nicht genau getroffen werden. Dies ist im übrigen auch die Ursache dafür, dass die Kriging-standardabweichung nicht den Wert Null erreicht, sondern nur Werte größer Null besitzt. Mit *SURFER* bzw. *ISATIS* ist dieser Glättungseffekt der Messwerte noch ausgeprägter als mit dem selbstgeschriebenen Programm.

Außerdem liefern unterschiedliche Programmsysteme unterschiedliche Ergebnisse, was in der unterschiedlichen Zuordnung der Vorhersagewerte zu den Rasterzellen (Zentrum, Eckpunkt) begründet ist. Es gibt zwei unterschiedliche Philosophien in Form von digitalen Bildern auf der einen und sogenannten grids auf der anderen Seite. Digitale Bilder werden durch Pixel aufgebaut. Dabei wird der Wert eines Pixel seiner unteren linken Ecke zugeordnet. Bei grids erhält jeder Knoten einen Wert. Auf diese Weise führt Punktkriging zu Schätzwerten an den Knoten und Blockkriging zu Schätzwerten in der Masche.

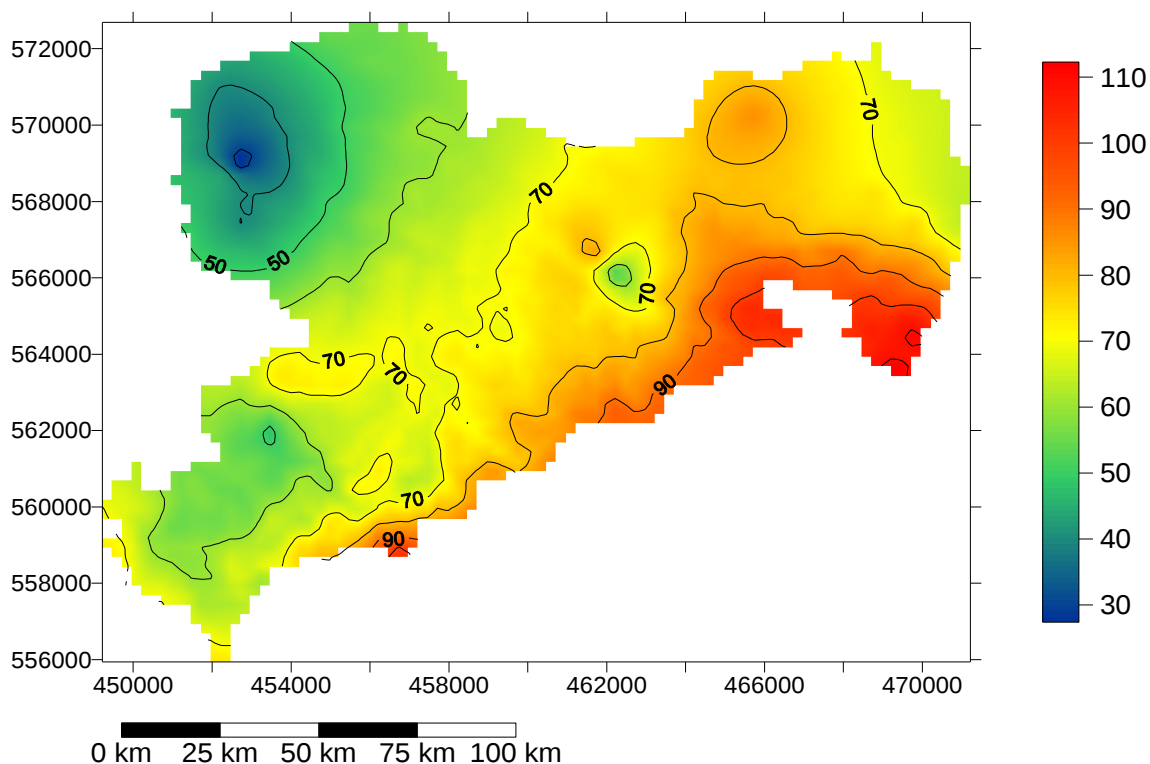


Abb. 7.2: Ozonkonzentration [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] am 30.05.1995 als Ergebnis eines ED-Krigings mit der Höhe als externer Driftvariablen

Die im Beispiel erzeugte Karte (vgl. Abb. 7.2) ist mehr oder weniger gut interpretierbar. Deutlich werden die Städte (Leipzig, Dresden, Zwickau) mit ihren niedrigen Ozonkonzentrationen. Die Lage der Stadt Chemnitz ist nicht in Form von niedrigen Konzentrationen, wie es bei den anderen Städten der Fall ist, erkennbar. Diese Tatsache wurde auch bei Untersuchungen des Ingenieurbüro Lohmeyer festgestellt. Andererseits wird die Zunahme der Konzentrationen zu den Erzgebirgsstandorten mit einer Zunahme der Isolinien in Richtung des Erzgebirgsverlaufes deutlich. Die größten Vorhersagefehler treten im Bereich der Dresdener Stationen auf, da die Messwerte hier kleinräumig stark schwanken.

8. Zeitliche Vorhersage

Die bisherigen Untersuchungen betrafen in erster Linie die räumliche Dimension der Ozonkonzentrationen. Es soll jedoch auch die zeitliche Dimension untersucht werden. Ausgangsdaten für die zeitliche Analyse sind die Sommerdatensätze der einzelnen Jahre. Für die Analysen werden einmal nur die 16-Uhr-Werte (92 Werte je Sommer und Station, vgl. Abb. 8.1) und einmal die gesamten Sommerdatensätze (4416 Werte je Station) herangezogen. In Abbildung 8.1 erkennt man leicht, dass die Ozonkonzentrationen um 16 Uhr an der Station Fichtelberg von Tag zu Tag stark schwanken. Aus den trendbereinigten Daten (vgl. Kapitel 5.2.2) wurde in einem ersten Ansatz versucht, Zeitvariogramme zu berechnen. Die Analysen und Prognosen werden bei der zeitlichen Untersuchung stationsweise ausgeführt.

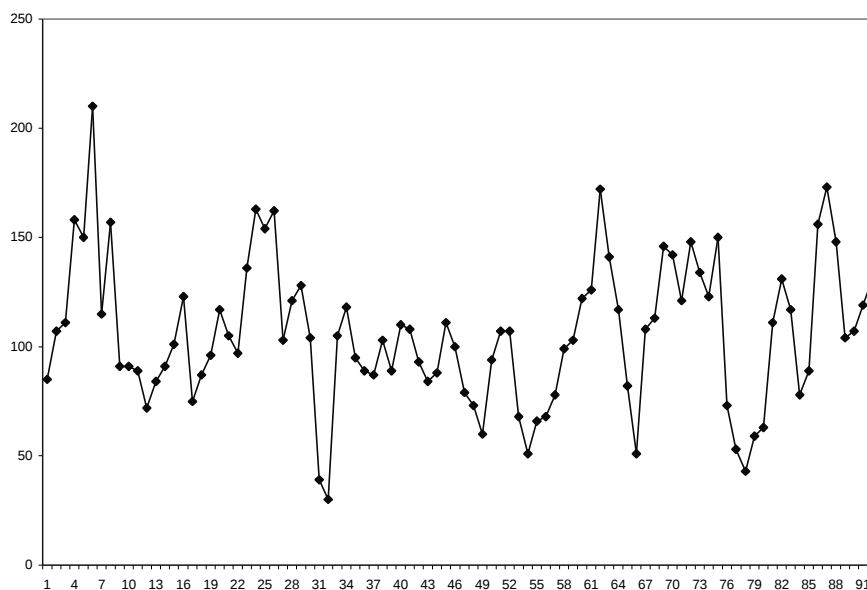


Abb. 8.1: Ozonkonzentrationen [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] an der Station Fichtelberg, Sommer 1995, 16 Uhr

Es bestehen jedoch Probleme bei der Eliminierung der zeitlichen Trends. Selbst nach Abziehen des mittleren Tagesganges an den Stationen bleibt in den Variogrammen die zyklische Komponente des Tagesganges (48 Halbstunden) sichtbar. Dies gilt insbesondere für verkehrsbeeinflusste Stationen. Während bei ländlichen Stationen der Tagesgang wesentlich weniger stark ausgeprägt ist und sich durch Abziehen des mittleren Tagesganges recht gut eliminieren lässt, ist dies bei städtischen Stationen nicht der Fall. Auch nachdem der mittlere Tagesgang subtrahiert wurde, bleibt die zyklische Tageskomponente im Variogramm bzw. der Autokorrelationsfunktion der Residuen deutlich sichtbar. Die zeitliche Korrelationsstruktur von Ozondaten ist offensichtlich nicht stationär. Zu diesem Ergebnis kommen auch Guttorp et al. (1994). Sie empfehlen die Verwendung von Lochvariogrammen (z.B. cardinal sine) oder das Herausfiltern des periodischen Verhaltens. Normalerweise erfolgt die Trendbestimmung bei Ozondaten über eine Mittelwertfilterung (Christakos u. Vyas 1998). Abbildung 8.2 zeigt die Zeitvariogramme für die Stationen Fichtelberg, Leipzig-Mitte und Radebeul-Wahnsdorf. Man erkennt die Schwingungen aufgrund zyklischer (saisonaler) Schwankungen im Variogramm vor allem für die beiden verkehrsbeeinflussten Stationen Leipzig-Mitte und Radebeul-Wahnsdorf.

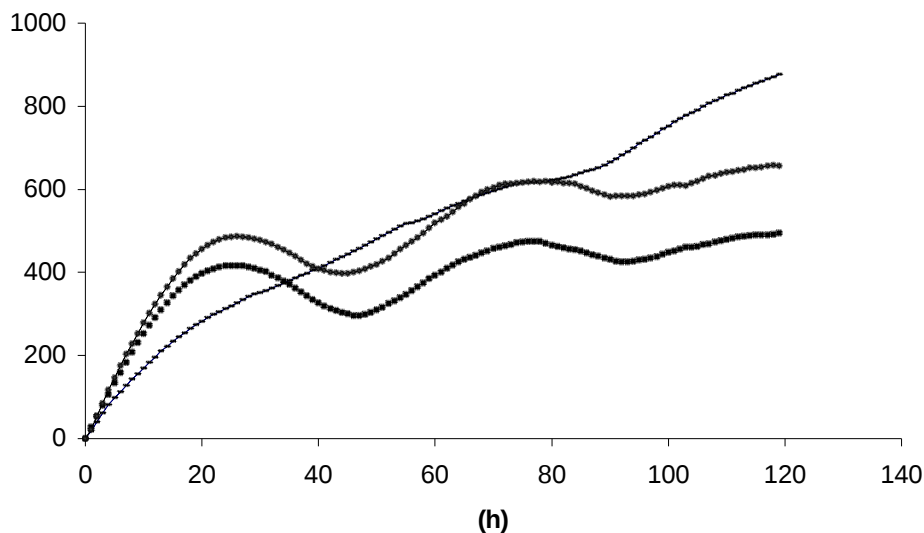


Abb. 8.2: Zeitvariogramm der Stationen Fichtelberg (-), Leipzig (■) und Radebeul-Wahnsdorf (●)

In Übereinstimmung mit der Literatur (vgl. Mayer 1998) wird erwartet, dass sich Abhängigkeiten im Zeitbereich und damit von meteorologischen Parametern nur schwer nachweisen lassen.

Bei der Ozonproblematik spielen zu viele andere Einflussfaktoren (z.B. die Entfernung zu Emissionsquellen, die Höhenlage der Station, topographische Besonderheiten, Verfrachtung des Ozons im Zusammenhang mit Windrichtung und -geschwindigkeit, Eintrag von Ozon) eine Rolle, die den Zeiteinfluss verwischen. Wesentlich deutlicher als bei Ozon werden zeitliche Einflüsse bei Primärschadstoffen, z.B. dem Schwefeldioxid.

Für die zeitliche Vorhersage der Ozonkonzentration im Sinne von Vorhersagen der Maximalkonzentration (16-Uhr-Werte) für den kommenden Tag bzw. den Nachmittag desselben Tages wurden zunächst verschiedene Methoden der Zeitreihenanalyse (Exponentielle Glättung, ARMA-Modelle) untersucht, die auch in der Literatur beschrieben werden.

Probleme bei der zeitlichen Vorhersage der Ozonkonzentration bestehen aufgrund der Komplexität der zugrundeliegenden photochemischen Reaktionen und der hohen Variabilität der Emissionen der Vorläufersubstanzen (biogene und anthropogene) sowie der meteorologischen Parameter (vgl. auch Simpson u. Layton 1983). Für die Prognose der Ozonkonzentration ist deswegen strenggenommen mindestens eine Prognose des Verkehrsaufkommens und eine Wetterprognose (Prognose der Maximaltemperatur) notwendig. Dennoch soll hier versucht werden, anhand einfacher zeitreihenanalytischer Verfahren eventuelle Gesetzmäßigkeiten (Unterschiede zwischen den Stationstypen) festzustellen, um tendenzielle Abschätzungen treffen zu können. Eine Schwierigkeit bei der Zeitreihenanalyse stellt, wie bei der Berechnung von Variogrammen in Zeitrichtung bereits erwähnt, die Filterung zeitlicher Trends dar.

8.1 Exponentielle Glättung

Die Exponentielle Glättung ist eine Vorhersagemethode für nichtsaisonale Reihen ohne Trend und eignet sich am besten für kurzfristige (Einperioden-)Vorhersagen (Chatfield 1982). Sie zeichnet sich durch geringen Speicherplatzbedarf sowie formale Einfachheit aus.

8.1.1 Verfahren

Es sei $x_1, \dots, x_N$ die stationäre nichtsaisonale Zeitreihe aus N Zeitpunkten, dann berechnet sich die Schätzung für $\hat{x}_{N+1}$ nach folgender Formel:

$$\hat{x}(N,1) = c_0 x_N + c_1 x_{N-1} + c_2 x_{N-2} + \dots \quad (8.1)$$

wobei $\hat{x}_{N+1} := \hat{x}(N,1)$

Die $\{c_i\}$ sind dabei die Gewichte. Intuitiv sind geometrische Gewichte angebracht, die in konstantem Verhältnis abnehmen. Der Schätzwert ist also eine gewichtete Summe aus den vorangegangenen Beobachtungen, wobei die letzten Beobachtungen mehr Gewicht bekommen als die weiter zurückliegenden. Die $\{c_i\}$ werden so gewählt, dass ihre Summe eins ergibt:

$$c_i = a (1-a)^i \quad (8.2)$$

Setzt man die c_i in obige Formel ein, so erhält man:

$$\hat{x}(N,1) = ax_N + a(1-a)x_{N-1} + (1-a)^2 x_{N-2} + \dots \quad (8.3)$$

Diese Gleichung enthält genaugenommen eine unendliche Zahl von Beobachtungen. In der Praxis hat man jedoch nur eine endliche Zahl.

$$\begin{aligned} \hat{x}(N,1) &= ax_N + (1-a)[ax_{N-1} + a(1-a)x_{N-2} \dots] \\ &\quad ax_N + (1-a)\hat{x}(N-1,1) \end{aligned} \quad (8.4)$$

Wird $\hat{x}(1,1)$ gleich x_1 gesetzt, so kann die Formel rekursiv für die Berechnung der Vorhersage verwendet werden. Der Aufwand für die Rechnung reduziert sich enorm, da nur die letzte Beobachtung und die vorangegangene Vorhersage verwendet werden. Dieser Vorgang wird als Exponentielle Glättung bezeichnet. Da die geometrischen Gewichte auf einer Exponentialkurve liegen, entstand das Adjektiv „exponentiell“. Man hätte jedoch ebenso gut von geometrischer Glättung sprechen können (Chatfield 1982). Der Wert des Glättungsparameter a hängt von den Eigenschaften der Zeitreihe ab und liegt zwischen 0 und 1. Je kleiner a , desto stärker ist die Glättung. Bei großem a erhalten nur die nicht lange zurückliegenden Zeitpunkte ein großes Gewicht. Die Beobachtung, die i Perioden vorausliegt, erhält das Gewicht $a(1-a)^i$. Der Glättungsparameter wird normalerweise so bestimmt, dass der Prognosefehler minimiert wird. Dabei genügt es in der Regel a in 0.1er Schritten zu erhöhen und das α auszuwählen, das den geringsten Prognosefehler liefert.

Gewöhnlich ist die Funktion des Schätzfehlers in Abhängigkeit von a in Nähe des Minimums jedoch ziemlich flach, so dass die Wahl von a nicht besonders kritisch ist bzw. auf die Optimierung verzichtet werden kann (Hartung 1998).

8.1.2 Beispiel 16-Uhr-Werte

Zuerst wurde versucht, die 16-Uhr-Messwerte exponentiell zu glätten. Ursprünglich sollte auch das morgendliche Minimum (ca. 6 Uhr) in die Berechnung einbezogen werden. Allerdings bestehen zwischen diesem Wert und dem Nachmittagswert so geringe, in der Regel nicht einmal signifikante Korrelationen, dass man ihn vernachlässigen kann.

Es wird davon ausgegangen, dass die Messwerte keinen Trend und keine Saisonkomponente enthalten, da nur die Sommerdaten (Mai, Juni, Juli) der Stationen und nur ein Wert pro Tag (16 Uhr) ausgewählt wurden. In Abb. 8.3 ist das Ergebnis der Exponentiellen Glättung für die Station Fichtelberg im Jahr 1995 mit dem Glättungsparameter $\alpha = 0,83$ dargestellt. Die geglättete Reihe passt sich augenscheinlich der Messreihe hinreichend genau an. Die Messwerte wurden mit unterschiedlichen Glättungsparametern a geglättet. Je größer a gewählt wird, desto mehr passt sich die geglättete Reihe der Messreihe an bzw. umso schwächer ist die Glättung. Das Verfahren wurde mittels *STATGRAPHICS* (Menüpunkt Special – Time Series Analysis – Forecasting) durchgeführt. *STATGRAPHICS* bietet die Möglichkeit, den Glättungsparameter ausgehend von einem Startwert zu optimieren.

In *STATGRAPHICS* wird über fehlende Werte hinweggeglättet. Hier ist aber insbesondere bei langdauernden Messwertausfällen Vorsicht geboten. Der Trend wird dabei teilweise ins Negative fortgesetzt und der Glättungsparameter wird aufgrund des Ersetzungsverfahrens in der Regel stark überschätzt. Für die vorliegende Arbeit wurden die fehlenden 16-Uhr-Werte deshalb im Vorfeld der Glättung soweit wie möglich (z.B. durch den Mittelwert zwischen 15:30 Uhr und 16:30 Uhr) ersetzt. Es wurde zunächst erwartet, dass sich für die unterschiedlichen Stationstypen unterschiedliche Größenordnungen des optimalen Glättungsparameters ergeben. Dies konnte jedoch nicht bestätigt werden. Der optimale Glättungsparameter wird durch die Minimierung folgender Summe abgeleitet:

$$\sum_{i=2}^N (x_i - \hat{x}(i-1,1)) \quad (8.5)$$

Die Wahl von α ist jedoch relativ unkritisch, da die Funktion des Schätzfehlers recht flach verläuft, so dass auf die Optimierung in vielen Fällen verzichtet werden kann (Hartung 1998). Vermutlich deshalb ist es problematisch, eine Systematik der Glättungsparameter in Abhängigkeit von den unterschiedlichen Stationstypen herauszufinden.

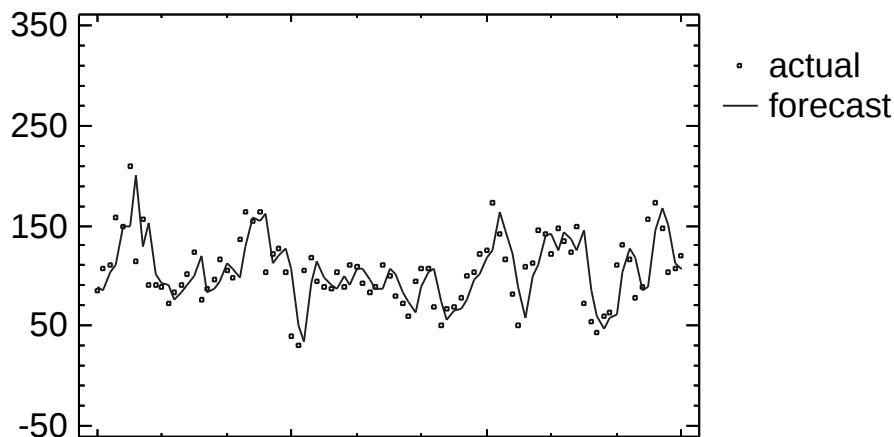


Abb. 8.3: Exponentielle Glättung der 16-Uhr-Werte im Sommer 1995 an der Station Fichtelberg mit $\alpha = 0,83$

8.2 ARMA-Modelle

Viele Messreihen können durch lineare Prozesse in guter Näherung beschrieben werden (Schlittgen u. Streitberg 1991). Die Modellierung von Zeitreihen im Box-Jenkins-Ansatz durch ARMA-Prozesse verläuft in verschiedenen Phasen (vgl. Abb. 8.4).

8.2.1 Verfahren

ARMA-Modelle haben zwei wesentliche Komponenten. Die Abkürzung ARMA steht für AR (Autoregressive) und MA (Moving Average).

Ein derartiges Zeitreihenmodell wird als $ARMA(p,q)$ bezeichnet. Dabei gibt p den Grad der Autoregression und q die Ordnung des gleitenden Durchschnitts an. Die ARMA-Modelle gehen auf Box und Jenkins zurück (Chatfield 1982).

Bei autoregressiven Prozessen $AR(p)$ erklärt sich jeder Wert der Reihe als Funktion seiner p Vorgänger. Im einfachsten Fall $AR(1)$ kann der Wert x_t durch den vorhergehenden Wert x_{t-1} versehen mit einem Gewicht b_1 und einer Störung e_t (zur Zeit t) erklärt werden.

$$x_t = b_1 x_{t-1} + e_t \quad (8.6)$$

Der Prozess hat sozusagen kein Gedächtnis, weil alle weiter zurückliegenden Werte keinen Einfluss auf die Vorhersage haben. Wenn weiter zurückliegende Werte x_{t-i} mit $i > 1$ keine zusätzliche Information zur Vorhersage liefern, heißt das jedoch nicht, dass zu ihnen keine Korrelationen mehr bestehen (Menz 1991). Der Wert zur Zeit t ist abhängig vom Wert zum Zeitpunkt $t-1$, dieser vom Wert zum Zeitpunkt $t-2$ usw. Jede Störung e_t hat im Laufe der Zeit also einen immer schwächeren Einfluss auf alle folgenden Werte x_{t+i} . Daraus folgt, dass der $AR(1)$ -Prozess eine exponentiell abfallende Autokorrelationsfunktion hat, aus der sich b für Dx nach $\exp(-aDx)$ ableiten lässt. Im allgemeinen gehen p vorherige Werte in das Modell ein. Die Parameter b_t müssen aus den Zeitreihenwerten geschätzt werden und geben Aufschluss darüber, wie stark die Abhängigkeit von den vorangehenden Werten ist.

Der zweite Bestandteil von ARMA-Modellen ist der $MA(q)$ -Prozess, bei dem der Wert x_t durch die Störung e_t und die gewichtete Störung des vorhergehenden Zeitpunkts beschrieben wird.

$$x_t = e_t + a_1 e_{t-1} \quad (8.7)$$

Der MA-Prozess unterscheidet sich vom AR-Prozess dadurch, dass sich der Wert x_t als gewichtetes Mittel einer bestimmten Anzahl q von vorhergehenden Störungen ergibt. Eine Störung vor mehr als q Zeitpunkten hat keinen Einfluss mehr.

In der Spezifikationsphase werden Entscheidungen über die Modellordnung (p,q) getroffen. Außerdem muss durch Grafiken zunächst geprüft werden, ob die Reihe stationär ist, d.h. ob Mittelwert und Varianz sich im Laufe der Zeit nicht verändern. Ist die Reihe nicht stationär, so werden in der Regel geeignete Differenzen verwendet. Die folgenden Analyseschritte, insbesondere die Modelldiagnose, machen jedoch oft eine Änderung dieser anfänglichen Schätzung erforderlich.

Der klassische Box-Jenkins-Ansatz betrachtet zur Festlegung der Ordnung (p,q) bestimmte Muster in der Autokorrelationsfunktion (ACF) und der partiellen Autokorrelationsfunktion (PACF). Bei der Modellschätzung werden die Parameter des Prozesses bei vorgegebener Modellordnung geschätzt.

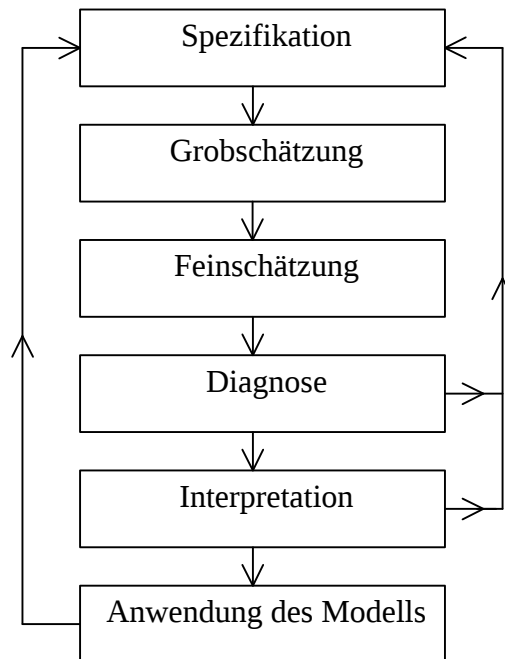


Abb. 8.4: Phasen des Box-Jenkins Ansatzes nach Schlittgen u. Streitberg 1991

Die Modelldiagnose überprüft die Gültigkeit des angepassten Modells. Die Schritte bis zur Diagnose werden solange wiederholt, bis eine zufriedenstellende Anpassungsgüte erreicht ist. Bei der Modellinterpretation erfolgt die wissenschaftliche Deutung des gefundenen Modells. Daran schließt sich die Anwendung des Modells (Prognose) an.

Die Autokorrelationsfunktion (ACF) und die partielle Autokorrelationsfunktion (PACF) geben Aufschluss über die Parameter p bzw. q bei der ARMA-Modellierung und liefern Informationen zur Modellbeurteilung. Zumindest reine AR- bzw. MA-Prozesse lassen sich durch ihre ACF bzw. ihre PACF relativ gut identifizieren. $AR(p)$ -Modelle haben exponentiell fallende ACFs mit p Spitzen in den ersten p Werten der PACF. $MA(q)$ -Modelle haben q Spitzen in den ersten q Werten der ACF und exponentiell fallende Werte der PACF (Fieger u. Toutenburg 1995). Ein Autokorrelationskoeffizient (r_k oder r_k) ist eine normierte Maßzahl, die den Grad der zeitverzögerten Korrelation der Werte der Zeitreihe mit sich selbst angibt und nach Formel (8.8) berechnet.

$$r_k = \frac{\sum_{i=1}^{n-k} (z_i - \bar{z})(z_{i+k} - \bar{z})}{\sum_{i=1}^n (z_i - \bar{z})^2} \quad (8.8)$$

$$q_{11} = r_1$$

$$q_{22} = (r_2 - r_1)^2 / (1 - r_1)^2$$

$$q_{kj} = q_{k-1,j} - q_{kk}q_{k-1,k-j} \quad k = 2, \dots, n \quad j = 1, \dots, k-1 \quad (8.9)$$

$$q_{kk} = \frac{\left(r_k - \sum_{j=1}^{k-1} q_{k-1,j} r_{k-j} \right)}{\left(1 - \sum_{j=1}^{k-1} q_{k-1,j} r_j \right)} \quad k = 3, \dots, n \quad (8.10)$$

Die nach Formel (8.8) berechnete ACF ist aber nur dann eine Schätzung der entsprechenden theoretischen ACF, wenn der zugrundeliegende stochastische Prozess stationär ist. Der partielle Autokorrelationskoeffizient (vgl. Formel (8.10)) gibt die Autokorrelationen bereinigt um den Effekt sich überschneidender Zeitpunkte an (Schlittgen u. Streitberg 1991). Der Name partiell stammt daher, dass man von den Messwerten den Anteil, den man schätzen kann, subtrahiert. Die Residuen werden wie Produkte betrachtet und daraus wird zur Ermittlung der partiellen Autokorrelation der Erwartungswert gebildet. Mit der partiellen Autokorrelation soll festgestellt werden, ob die mit Hilfe der Autokorrelationsfunktion festgestellten Korrelationen zwischen Lag-Reihen wirklich daraus resultieren, dass sich die Werte der ersten Reihe auf die einer späteren größeren Zeitabstandes auswirken, oder ob sie sich lediglich aus Korrelationen erster Ordnung (d.h. der Auswirkung eines Wertes jeweils nur auf den Folgewert) ergeben, die sich dann in jeweils abgeschwächter Form auf größere Verzögerungen auswirken. Partielle Korrelationen sind deshalb Korrelationen größerer Lags, die jeweils um die Korrelationen geringerer Verzögerungen bereinigt wurden. Wie bei der Schätzung der Autokorrelationskoeffizienten r_k lassen sich auch die partiellen Autokorrelationskoeffizienten $r_p(k)$ aus allen Wertepaaren z_i, z_{i+k} bestimmen, die sich im Abstand k in der Zeitreihe z_i mit $i = 1(1)n$ finden lassen.

Der Unterschied besteht nun darin, dass von diesen nun nicht der Erwartungswert $\bar{z}$, sondern ihre optimalen Schätzwerte $\hat{z}_i, \hat{z}_{i+k}$ abgezogen werden, die sich aus den jeweils dazwischenliegenden $k-1$ Messwerten über folgende Linearkombinationen ableiten lassen:

$$\begin{aligned}\hat{z}_i &= a_i z_{i+1} + \dots + a_{k-1} z_{i+k-1} \\ \hat{z}_{i+k} &= a_i z_{i+k-1} + \dots + a_{k-1} z_{i+1}\end{aligned}\tag{8.11}$$

Die unbekannten Gewichtungskoeffizienten $a_i, \dots, a_{k-1}$ werden in (8.11) antisymmetrisch den dazwischenliegenden Messwerten zugeordnet. Sie werden über die sogenannten Yule-Walker-Gleichungen der Ordnung $k-1$ bestimmt, die einer Simple Kriging-Lösung entsprechen. Die partielle Autokorrelationskoeffizienten könnte wie folgt geschätzt werden:

$$r_p(k) = \frac{\sum_{i=1}^{n-k} (z_i - \hat{z}_i)(z_{i+k} - \hat{z}_{i+k})}{\sqrt{\left(\sum_{i=1}^{n-k} (z_i - \bar{z}_i)^2 \right) \left(\sum_{i=1}^{n-k} (z_{i+k} - \bar{z}_{i+k})^2 \right)}}\tag{8.12}$$

Aus (8.12) ist ersichtlich, dass die Prognosen (8.11) mit dem Wachsen des Betrages der partiellen Autokorrelation immer ungünstiger werden. Aufgrund dieser Eigenschaft liefert die partielle Autokorrelationsfunktion, die sich praktisch einfacher nach (8.8) – (8.10) als nach (8.12) ableiten lässt, wertvolle Informationen für die Zeitreihenanalyse (Menz, Vorlesung Geomodellierung).

Die Abweichungen der Beobachtungen vom angenommenen Modell sollten keine erkennbaren Muster aufweisen und ihre ACF und PACF sollten nicht signifikant von Null verschieden sein (vgl. Abb. 8.7). Ist dies dennoch der Fall, so sind die Modellparameter vermutlich falsch gewählt.

8.2.2 Beispiel 16-Uhr-Werte

Im konkreten Anwendungsfall der trendbereinigten 16-Uhr-Ozonwerte legten die PACF und die ACF (vgl. Abb. 8.5) zunächst nahe, dass es sich um einen AR(1)MA(2)-Prozess handelt. Bei der Modellüberprüfung zeigte sich jedoch, dass die AR-Komponente des Modells statistisch nicht signifikant ist (P-value = 0,86). Es handelt sich eher um einen MA-Prozess erster oder zweiter Ordnung, was darauf hindeutet, dass die Variabilität der 16-Uhr-Werte von Tag zu Tag sehr groß ist und nur ein geringer Zusammenhang besteht. In Abbildung 8.6 ist die Modellierung der Messwerte durch einen ARMA(0,2)-Prozess dargestellt.

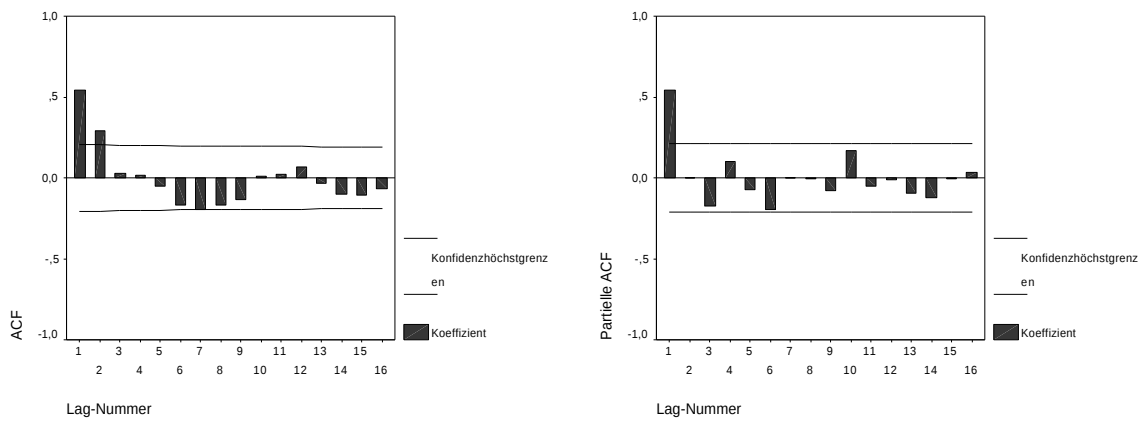


Abb. 8.5: ACF und PACF der 16-Uhr-Werte, Sommer 1995, Fichtelberg

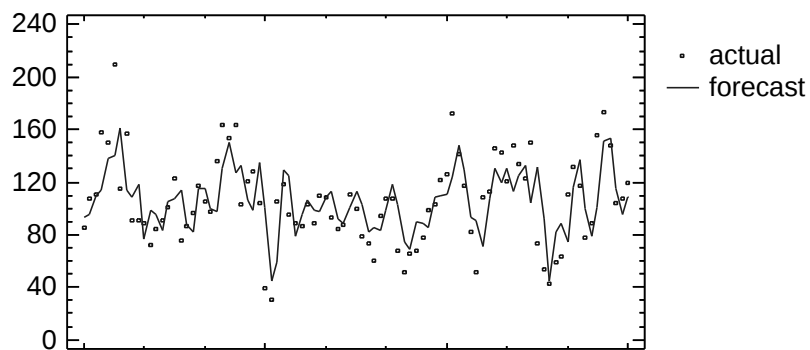


Abb. 8.6: ARMA(0,2)-Modell der 16-Uhr-Werte, Sommer 1995, Fichtelberg

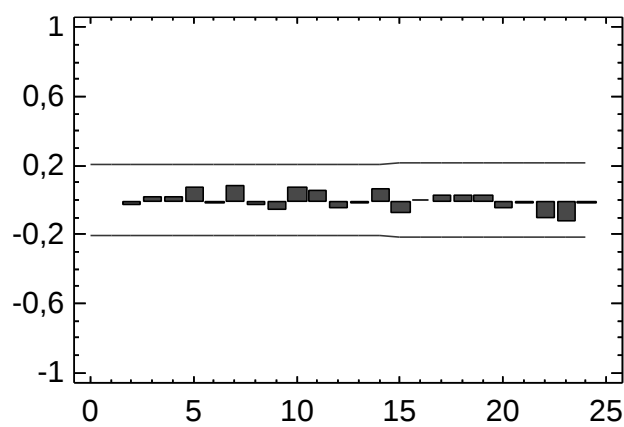


Abb. 8.7: ACF der Residuen für Fichtelberg, Sommer 1995, 16 Uhr

Bei der Untersuchung der trendbereinigten Gesamtsommerdatensätze erhält man einen AR(1)-Prozess (vgl. Abb. 8.8), der auch als Markow-Modell bezeichnet werden kann. Der Wert zum Zeitpunkt x_t hängt also nur vom Wert des Zeitpunkts x_{t-1} ab, alle früheren Werte haben keinen direkten Einfluss auf x_t . Der Prozess besitzt sozusagen nur ein kurzes Gedächtnis. Auch Prybutok et al. 2000 untersuchen ARMA-Modelle zur Vorhersage von täglichen Ozonspitzenkonzentrationen und vergleichen sie mit Modellergebnissen durch neuronale Netze. Auch sie finden eine Autokorrelationsfunktion, mit einer Spitze im Lag 1 und gedämpften Sinusschwingungen nach dem ersten Lag (vgl. Abb. 8.8). Die partielle Autokorrelationsfunktion bricht nach dem ersten Lag ab.

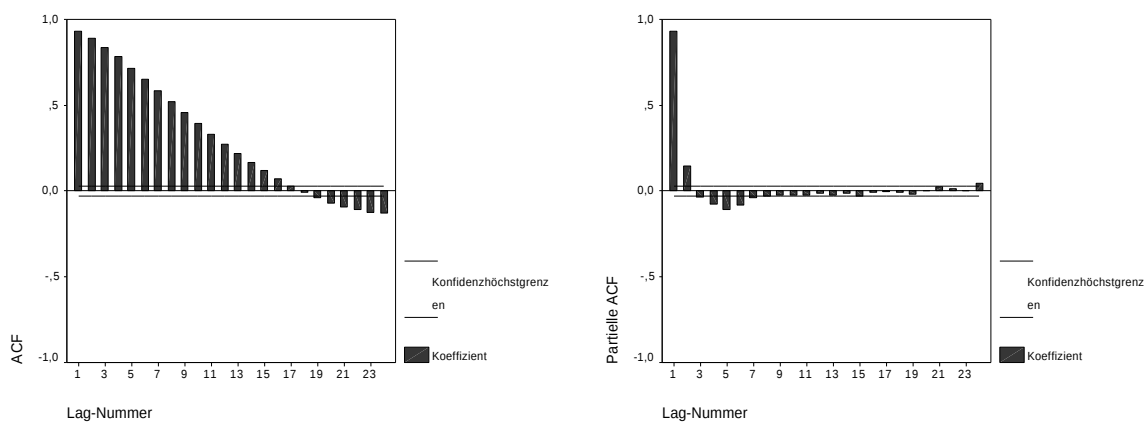


Abb. 8.8: ACF und PACF der vollständigen Sommerdatensätze, Beispiel Leipzig

Die von Simpson u. Layton 1983 entwickelten ARMA-Modelle konnten höchstens 32 % der Varianz des Datensatzes erklären. In diesem Bereich der Varianzerklärung (bis 33,5 %) bewegen sich auch die für die sächsischen Stationen angepassten ARMA-Modelle.

8.3 Eigenes Modell

In Anlehnung an die räumlichen geostatistischen Verfahren wurde ein zeitliches Vorhersagemodell entwickelt, bei dem die Messwerte in einen deterministischen Teil und einen stochastischen Teil zerlegt werden. Die Zeitreihen müssen dabei stationär sein, d.h., es ist zunächst eine Saisonbereinigung erforderlich. Wird mit den vollständigen Sommerdatensätzen gearbeitet, so muss also der Tagesgang eliminiert werden.

8.3.1 Saisonbereinigung

Aus der Sicht der klassischen Zeitreihenanalyse setzt sich eine Zeitreihe aus dem Trend (Grundrichtung der Zeitreihe über langen Zeitraum), einer Saisonkomponente (saisonale Schwankungen mit Perioden von einigen Stunden bis zu einem Jahr) und einer irregulären Komponente zusammen, die auch als unsystematische Komponente bezeichnet wird und den Status einer Zufallsvariablen hat. Diese Elemente einer Zeitreihe können additiv oder multiplikativ miteinander verbunden sein. Um diese Komponenten herausarbeiten zu können, müssen die anderen Komponenten ausgeschaltet werden; im multiplikativen Fall werden sie „herausdividiert“, im additiven Fall subtrahiert.

Im vorliegenden Fall wird davon ausgegangen, dass es keinen (jahreszeitlichen) Trend gibt, da pro Jahr nur drei Monate (Mai, Juni, Juli) ausgewählt wurden. Während man rein sprachlich und intuitiv unter der Saisonkomponente eher jahreszeitlich bedingte Schwankungen versteht, ist im vorliegenden Fall der Tagesgang (48 Halbstundenmittelwerte) als Saisonkomponente zu betrachten. Da „Saisonkomponente“ in der Zeitreihenanalyse ein feststehender Begriff ist, soll er trotz der sprachlichen Irritation beibehalten werden. Eine Saisonbereinigung ist notwendig, um zu stationären Zeitreihen zu kommen. Saisonschwankungen im Falle von Ozonimmissionen können beschrieben werden als systematische, wenn auch nicht notwendigerweise streng regelmäßige oder konstante Zyklen innerhalb eines Tages, die durch das Wetter, die Einstrahlungsverhältnisse und das tägliche Verkehrsaufkommen bzw. die Emission von Vorläufersubstanzen hervorgerufen werden und zu lokalen Maxima an der Saisonfrequenz führen. Die Saisonbereinigung wurde mit dem Programmsystem *STATGRAPHICS* durchgeführt. Prinzipiell werden zwei Methoden der Saisonbereinigung unterschieden; die multiplikative Methode bzw. die additive Methode. Von einer additiven saisonalen Komponente sollte ausgegangen werden, wenn die Zeitreihe eine additive saisonale Schwankung aufweist, d.h. das Ausmaß der Schwankung unabhängig vom Niveau der Reihe ist. Ein multiplikatives Modell sollte bevorzugt werden, wenn die Schwankungen sich proportional zum Niveau der Reihe verhalten. Im vorliegenden Fall wurde von einem additiven Modell ausgegangen. Formal lässt sich die Saisonbereinigung (Phasendurchschnittsverfahren) wie folgt beschreiben: $x_{t,i}$ bezeichnet den Messwert am t -ten Tag (insgesamt 92 in den drei Monaten) in der i -ten Halbstunde. Für jede Halbstunde wird der Mittelwert und dann der Gesamtdurchschnitt gebildet. Beim multiplikativen Modell werden die Saisonfaktoren (saisonale Indices) dadurch bestimmt, dass der entsprechende Halbstundenmittelwert durch den Gesamtmittelwert geteilt wird.

Beim additiven Modell wird der Gesamtmittelwert abgezogen. Die saisonalen Indices sind also auf den Gesamtmittelwert bezogen. Ein Wert kleiner Null bedeutet, dass der Messwert erhöht wird, ein Wert größer Null, dass der Wert reduziert wird. Diese Art der Saisonbereinigung kann mit *STATGRAPHICS* (wahlweise additiv oder multiplikativ) durchgeführt werden. Sieht man sich die Grafiken der saisonalen Indices an (vgl. Abb. 8.9), so fällt auf, dass man im wesentlichen die Form des mittleren Tagesgangs (vgl. Kapitel 5.1.1) erhält. Dabei sind die Form und Amplituden von Landstationen und verkehrsbeeinflussten Stationen sehr unterschiedlich. Für die Landstationen wird im folgenden die Anpassung einer Funktion beschrieben.

Die Autokorrelationsfunktionen der saisonbereinigten Zeitreihen fallen exponentiell ab (vgl. Abb. 8.10). Die partiellen Autokorrelationsfunktionen verschwinden in der Regel nach dem ersten Zeitlag (vgl. Abb. 8.8). Die exponentielle Korrelationsfunktion deutet darauf hin, dass es sich bei der Ozonverteilung um einen Markow-Prozess (also einen stochastischen Prozess ohne Gedächtnis) handelt. Über die Methode der Kleinsten Quadrate (Ausgleichsrechnung) wurden an die Autokorrelationsfunktionen in erster Näherung einfache Exponentialfunktionen angepasst (vgl. Abb. 8.11). Der Parameter α dieser e-Funktionen nimmt charakteristische Werte für ländliche Stationen auf der einen und verkehrsbeeinflusste Stationen auf der anderen Seite an (vgl. Tab. 8.1). Die in Tabelle 8.1 dargestellten Parameter wurden durch die Anpassung an den stationären Teil der Autokorrelationsfunktion ermittelt. In weiteren Forschungsarbeiten sollte untersucht werden, inwieweit durch eine genauere Modellierung der Autokorrelationsfunktion, etwa durch Verwendung trigonometrischer Funktionen, bessere Vorhersagen erzielt werden können.

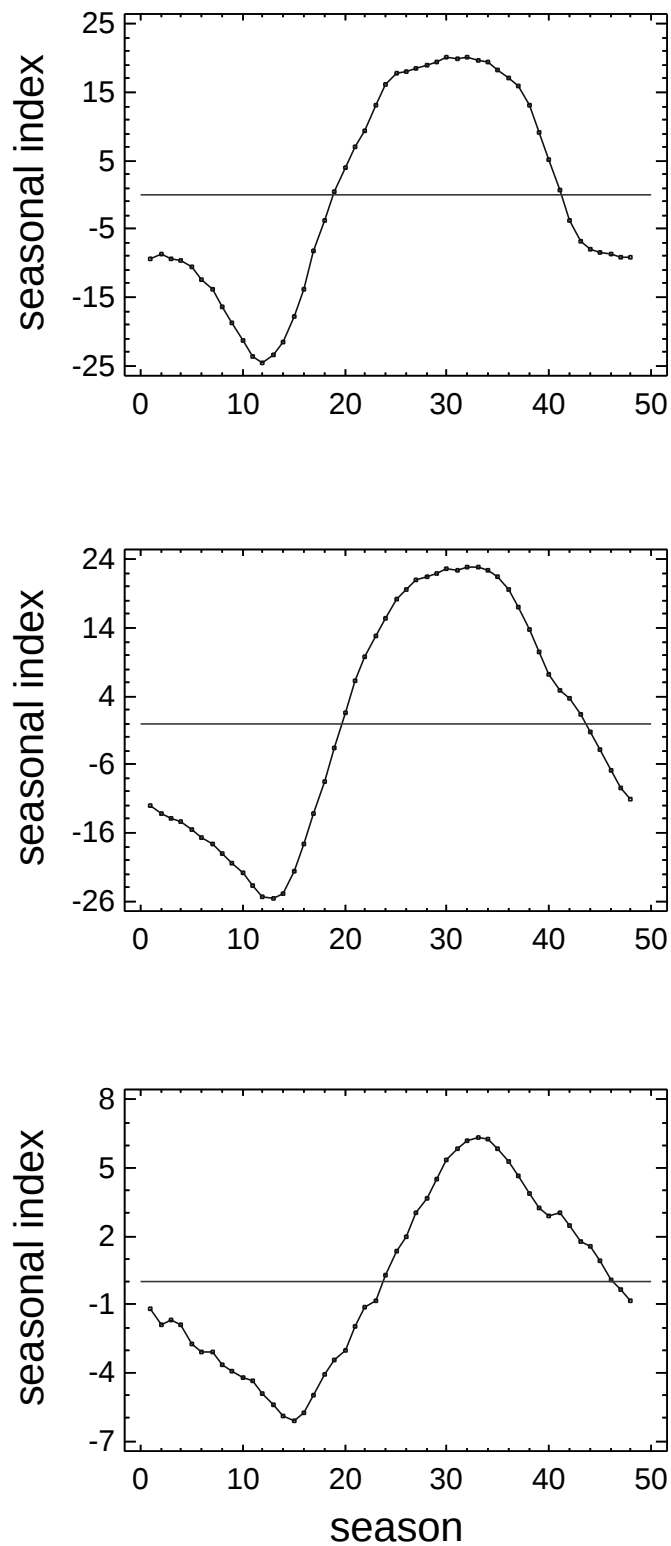


Abb. 8.9: Saisonfaktoren (additives Modell) der Stationen Leipzig-Mitte, Radebeul-Wahnsdorf und Fichtelberg (von oben nach unten)

Arbeitet man mit den saisonal angepassten (trendbereinigten) Werten weiter und schaut sich die Autokorrelationen dieser Werte an, so wird deutlich, dass die Saisonbereinigung für Landstationen erfolgreich war, während sie bei den Stadtstationen problematischer ist (vgl. Abb. 8.10). Dieser Effekt wurde ebenfalls bei den Variogrammen in Zeitrichtung beobachtet. Auch nach der Trendbereinigung zeigt die ACF gedämpfte Sinusschwingungen.

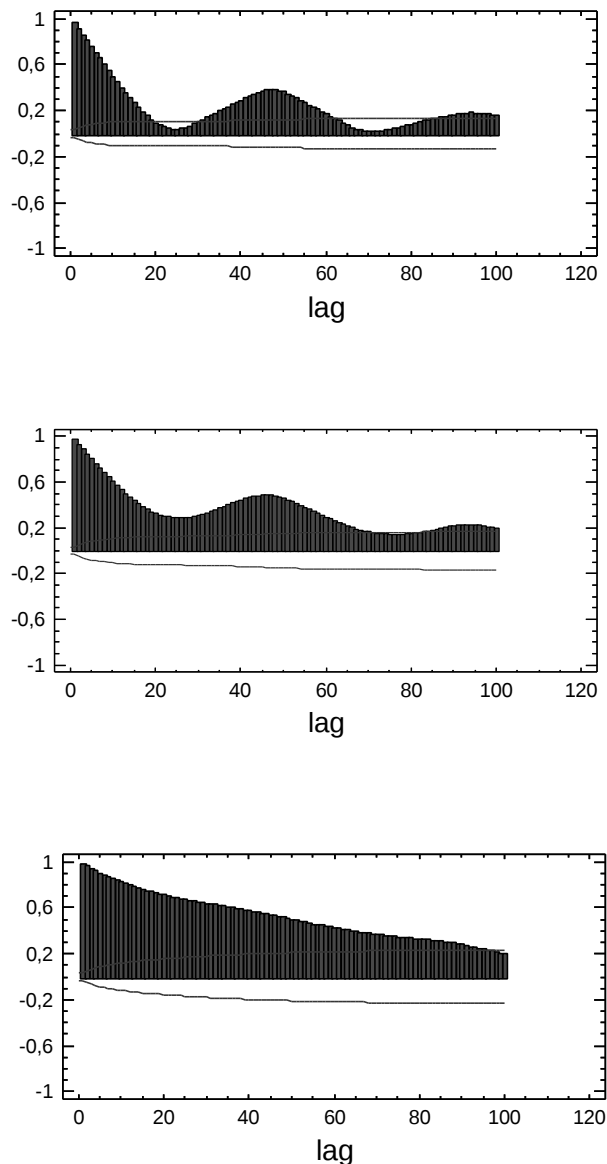


Abb. 8.10: Autokorrelationen der trendbereinigten Werte der Stationen Leipzig-Mitte, Radebeul-Wahnsdorf und Fichtelberg (von oben nach unten)

Tab. 8.1: Parameter der Korrelationsfunktion und Korrelationslängen der Stationen

Messstelle	alpha	Korrelations- länge [1/2 h]
Annaberg-Buchholz	0,113	21
Aue	0,111	17
Auerbach	0,093	22
Bautzen	0,070	23
Böhlen	0,081	23
Borna	0,094	19
Carlsfeld	0,015	110
Chemnitz-Mitte	0,098	21
Chemnitz-Nord	0,106	18
Collmberg	0,023	100
Delitzsch	0,074	25
Dresden-Nord	0,078	24
Dresden-Post	0,071	23
Fichtelberg	0,014	120
Freiberg	0,054	30
Glauchau	0,106	17
Görlitz	0,085	20
Hoyerswerda	0,073	22
Klingenthal	0,104	17
Leipzig-Mitte	0,085	24
Leipzig-Süd	0,185	24
Leipzig-West	0,067	25
Mittelndorf	0,092	27
Olbernhau	0,193	21
Pirna	0,075	24
Plauen	0,119	15
Plauen-Süd	0,128	15
Radebeul-Wahnsdorf	0,107	29
Schwartenberg	0,018	105
Zinnwald	0,047	115
Zittau-Ost	0,099	21
Zwickau	0,103	17

Anhand der Tabelle ist leicht zu erkennen, dass die verkehrsbelasteten Stationen höhere α -Werte ($0,06 \leq \alpha \leq 0,13$) aufweisen als die ländlichen ($0,01 \leq \alpha \leq 0,02$). Dies deutet auf die geringere Reichweite der zeitlichen Autokorrelation bei verkehrsbeeinflussten Stationen hin (Jacobsen 2000, Tilmes 1999). Die zeitliche Erhaltensneigung reicht von ca. 7 Stunden an stark verkehrsbeeinflussten Stationen (Plauen) bis zu ca. zweieinhalb den Tagen an den ländlichen Stationen (Carlsfeld, Fichtelberg, Zinnwald). Bei den ländlichen Stationen ist die Autokorrelation in der Regel über 2 Tage hinaus statistisch signifikant, während dies bei den Stadtstationen in der Regel bereits nach wenigen Stunden nicht mehr der Fall ist. Dies entspricht dem Wissen über die unterschiedlichen Tagesgänge dieser beiden Stationstypen.

Bei den ländlichen Stationen sind die Konzentrationen ganztägig hoch und unterliegen nur geringen Schwankungen, an verkehrsbeeinflussten Stationen dagegen, schwanken die Konzentrationen im Tagesverlauf sehr stark. Deshalb sind zeitliche Vorhersagen für verkehrsbeeinflusste Stationen in der Regel mit größeren Unsicherheiten behaftet als Vorhersagen für ländliche Stationen.

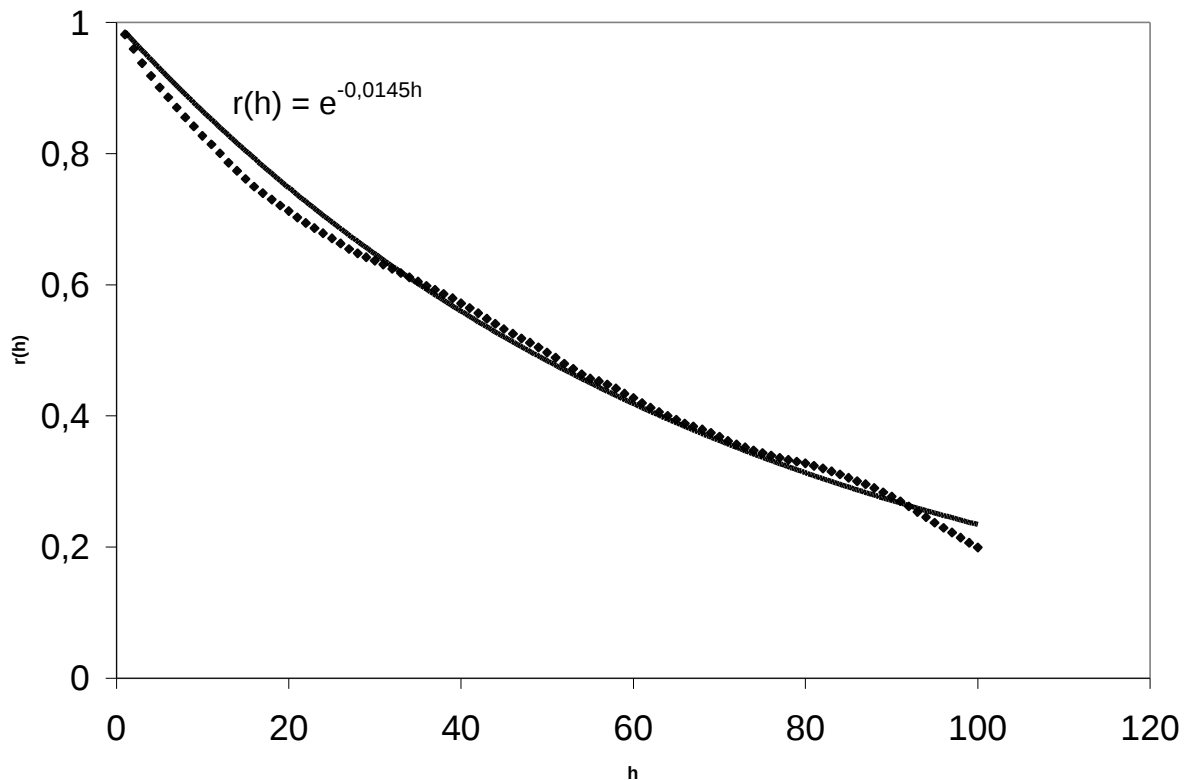


Abb. 8.11: Anpassung der Exponentialfunktion an die Autokorrelationsfunktion, Beispiel Fichtelberg, $\alpha = 0,0145$

8.3.2 Vorhersagemodell, Ergebnisse und Validierung

Das Ziel ist nun ausgehend vom Zeitpunkt t eine Vorhersage zum Zeitpunkt $t+dt$. Das Vorhersagemodell lässt sich formal wie folgt beschreiben:

$$\begin{aligned}\hat{Z}(t) &= \hat{m} + \hat{d}(t) + \hat{x}(t) \\ \hat{Z}(t+dt) &= \hat{m} + \hat{d}(t+dt) + \hat{x}(t+dt)\end{aligned}\tag{8.13}$$

Die Ozonkonzentration zum Zeitpunkt $t+dt$ setzt sich also zusammen aus dem globalen Mittelwert plus dem Saisonalen Index zum Vorhersagezeitpunkt (deterministischer Teil) plus dem Schätzwert zum Zeitpunkt $t+dt$ der aus den Residuen berechneten Korrelationsfunktion $K(t)$ (stochastischer Teil). Der globale Mittelwert sowie der langjährige mittlere Tagesgang wurde aus den Sommerdatensätze der vorhandenen Jahre berechnet. Im folgenden wird die Herleitung dieses zeitlichen Prognoseverfahrens in Anlehnung an die Vorgehensweise beim Kriging gezeigt. Der Schätzwert der Residuen zum Zeitpunkt t ergibt sich dadurch, dass der Wert zum Zeitpunkt Null mit einem Faktor a multipliziert wird. Ziel der Krigingverfahren ist es, die Schätzvarianz also den Erwartungswert der quadrierten Differenzen zwischen gemessenen und prognostizierten Werten zu minimieren. Der Schätzwert wird durch aX_0 ersetzt und die Gleichung umgeformt. Wegen der angenommenen Stationarität gilt, dass der Erwartungswert der Residuen zum Zeitpunkt t gleich Null ist. Der Erwartungswert ihrer Quadrate ist gleich sigma. $K(t)$ bezeichne die Korrelationsfunktion der Residuen, die einer e-Funktion entspricht. Um den Fehler zu minimieren, bildet man nun die Ableitung der quadrierten Differenzen nach a und setzt sie gleich Null. Auf diese Weise ergibt sich, dass der Gewichtungsfaktor a in diesem Fall $\exp(-at)$ ist.

$$\begin{aligned}
 \hat{X}_t &= aX_0 \\
 E(X_t - \hat{X}_t)^2 &= a^2 EX_0^2 - 2aEX_0X_t + EX_t^2 \\
 &= a^2 s^2 - 2as^2 K(t) + s^2 \\
 &= a^2 s^2 - 2as^2 \exp(-at) + s^2 \\
 &= s^2 (a^2 - 2a \exp(-at) + 1)
 \end{aligned} \tag{8.14}$$

Ableitung nach a bilden

$$2a - 2 \exp(at) = 0$$

$$a = \exp(-at)$$

Anhand dieses Modells sind theoretisch Vorhersagen für beliebige Zeitschritte möglich. Es sollte jedoch darauf geachtet werden, dass der Zeitschritt nicht zu groß gewählt wird (für Landstationen nicht größer als 2 Tage = 96 Halbstunden, für verkehrsbeeinflusste Stationen nicht größer als einige Stunden). Das beschriebene zeitliche Vorhersagemodell liefert gute Ergebnisse für die ländlichen Stationen. Die Vorhersagewerte passen sich relativ gut an die Messwerte an.

Der Vorhersagefehler (Abweichung zwischen Modellwert und Messwert) wird um so geringer, je kürzer der Zeitschritt gewählt wird. Prognosen ausgehend vom 16-Uhr-Wert des Vortages zum 16-Uhr-Wert des Folgetages erscheinen jedoch ohne weiteres möglich. Abbildung 8.12 zeigt die Ergebnisse einer Vorhersage an der Station Fichtelberg im Sommer 1995 ausgehend von den 16-Uhr-Werten des Vortages für 16 Uhr des Folgetages (24h-Vorhersage). Gegenübergestellt sind die Messwerte und die vorhergesagten Werte. Man sieht, dass der Vorhersagewert vom Messwert des Vortages abhängt und erkennt den Glättungseffekt der Vorhersage, d.h. extreme Messwerte können durch das Modell nicht erreicht werden. Insgesamt aber ist die Anpassung recht gut. Der mittlere Modellfehler (27,2) ist deutlich geringer als der Fehler, der entstehen würde, wenn man den Zeitreihenmittelwert (33,3) oder den Vortageswert (29,9) als Vorhersage einsetzen würde. Er ist ebenfalls deutlich geringer als der Fehler, der durch die Exponentielle Glättung der 16-Uhr-Werte entsteht (28,9). Die hohe Varianz der 1995er Ausgangsdaten (vgl. Tab. 5.2) macht natürlich auch die Vorhersage schwieriger. Für die übrigen Jahre sind die Modellergebnisse deshalb im Vergleich zu den übrigen Modellen noch besser.

Anders verhält es sich für die verkehrsbeeinflussten Stationen. Hier ist der Parameter der Korrelationsfunktion verhältnismäßig groß (vgl. Tab. 8.1), d.h. die zeitliche Autokorrelation klingt schnell ab und der stochastische Teil im Modell bekommt auch bei kleinen Zeitschritten nur ein sehr geringes Gewicht. Dies führt dazu, dass im wesentlichen eine Vorhersage des Mittelwertes der Zeitreihe zum betreffenden Zeitpunkt erfolgt. Die realen Messwerte an verkehrsbeeinflussten Stationen schwanken jedoch sehr stark um ihre Mittelwerte, so dass das vorgeschlagene Modell in diesem Fall nur unbefriedigende Ergebnisse liefert. Die Probleme der zeitlichen Prognose für verkehrsbeeinflusste Stationen deuteten sich bereits bei der Saisonbereinigung an.

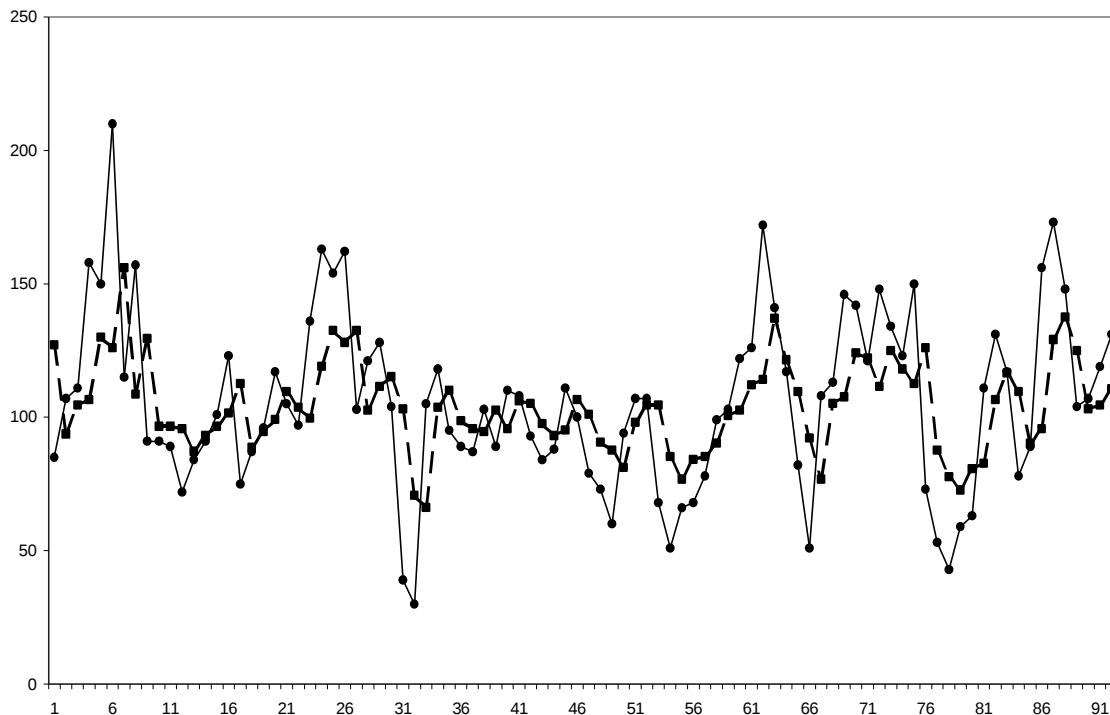


Abb. 8.12: Fichtelberg 1995 Sommer, Eintagesvorhersage der 16-Uhr-Ozonkonzentration, Messwerte (-) und Vorhersage (---)

Da sich für die verkehrsbeeinflussten Stationen über den gesamten Untersuchungszeitraum stark ausgeprägte zeitliche Autokorrelationsfunktionen (vgl. Abb. 8.8) ergeben haben, die jedoch durch periodische Schwingungen gekennzeichnet sind, wurde hier auf die Anpassung einer Exponentialfunktion verzichtet. Stattdessen werden für die Vorhersage die empirischen Autokorrelationskoeffizienten für den Modellparameter a in (8.14) verwendet. Gerade für ein Vorhersageintervall von 24 Stunden, erscheint angesichts der Autokorrelationsfunktionen, die hier in der Regel ein Maximum haben (vgl. Abb. 8.10), eine Vorhersage sinnvoll. Für die 24h-Vorhersage an der Station Leipzig-Mitte wurde der empirische Korrelationskoeffizient (0,38) verwendet. Die Vorhersageergebnisse sind ähnlich gut wie bei der Vorhersage an ländlichen Stationen (mittlerer Fehler $26,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Für dazwischenliegende Vorhersageintervalle, ist die Vorhersage schwieriger. Bei etwa einem halben Tag erreichen die Autokorrelationsfunktionen ein Minimum. Der Korrelationskoeffizient für stark verkehrsbeeinflusste Stationen liegt nahe Null, z.B. Leipzig-Mitte mit 0,037. Die Vorhersage liefert deshalb im wesentlichen den Mittelwert um 16 Uhr. Die Vorhersagefehler sind dennoch etwas geringer als die Fehler bei einer reinen Mittelwertvorhersage.

Für weniger stark verkehrsbeeinflusste Stationen, z.B. Radebeul-Wahnsdorf mit 0,29, ist der Korrelationskoeffizient höher, so dass sich die Vorhersagereihe etwas besser an die Messreihe anpasst. Abb. 8.13 zeigt die 24h-Vorhersageergebnisse an der Station Leipzig-Mitte.

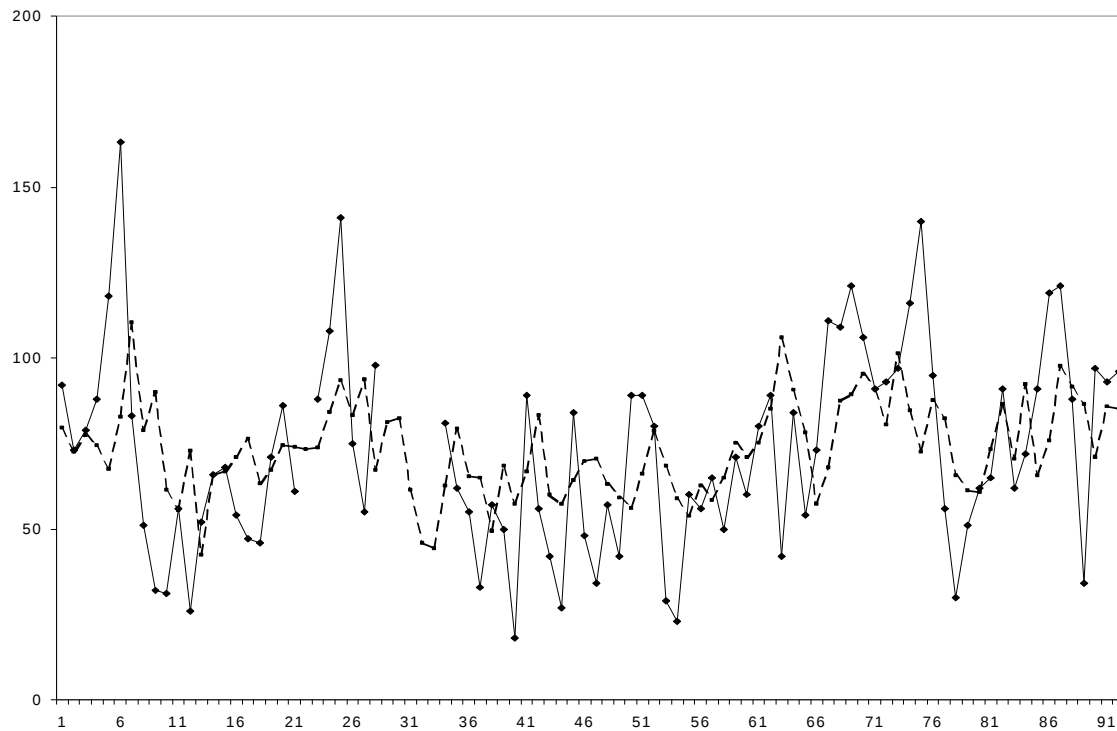


Abb. 8.13: Leipzig-Mitte 1995 Sommer, Eintagesvorhersage der 16-Uhr-Ozonkonzentration, Messwerte (-) und Vorhersage (---)

Theoretisch sind damit auch für verkehrsbeeinflusste Stationen Vorhersagen für beliebige Vorhersageintervalle möglich. Die besten Ergebnisse ergeben sich allerdings für 24h-Vorhersagen. Dies haben bereits die Korrelationsuntersuchungen in Kapitel 5 nahegelegt. Die höchsten Korrelationen treten bei Messwerten im Abstand von 24 Stunden auf. Dies kann z.B. auf die ähnlichen meteorologischen Bedingungen und das Verkehrsaufkommen zurückgeführt werden. Die Korrelationen für dazwischenliegende Intervalle sind dagegen gering. Um die Güte der Vorhersage beurteilen zu können, wurde eine Validierung der Vorhersageergebnisse angestrebt. Zu den Vorhersagewerten wurde zunächst ein Konfidenzintervall berechnet, um zu zeigen, in welchem Intervall der Messwert mit einer bestimmten statistischen Sicherheit erwartet werden kann (vgl. Abb. 8.14).

Die Vorhersagefehler sind normalverteilt, so dass die entsprechenden Quantile der Normalverteilung verwendet werden können. Dazu wurde die Standardabweichung des Schätzfehlers (Messwert minus Vorhersagewert zu jedem Zeitpunkt) berechnet. Sie beträgt 27,2, d.h. mit einer statistischen Sicherheit von 68 % kann der Vorhersagewert in einem Intervall von $\pm 27,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. mit einer Sicherheit von 95 % im Intervall von $\pm 54,4$ um den Vorhersagewert erwartet werden.

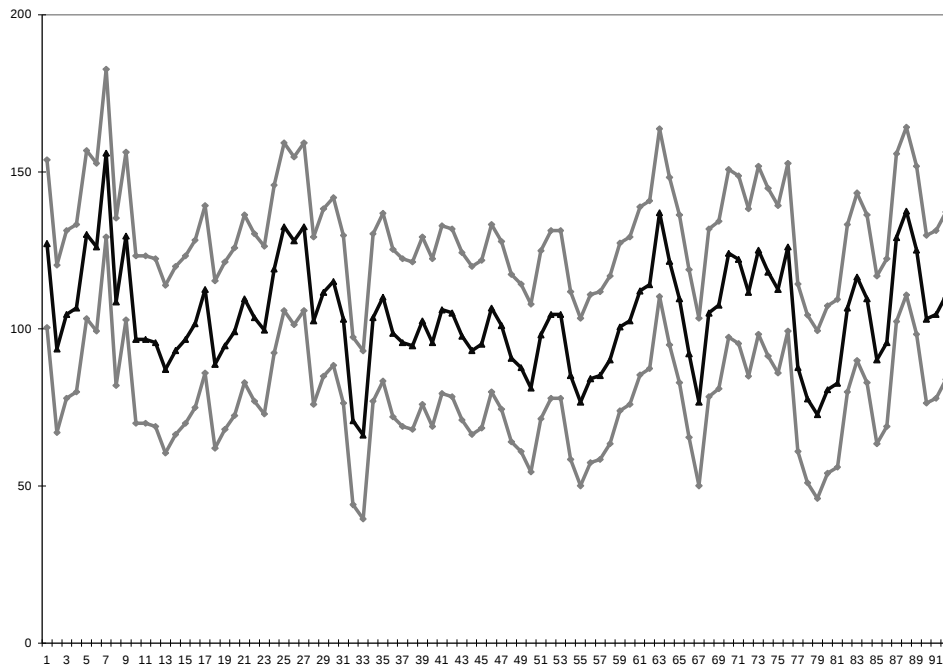


Abb. 8.14: Konfidenzintervall für die Eintagesvorhersage der 16-Uhr-Werte, Fichtelberg

Zur Überprüfung der Modellparameter wurde weiter untersucht, ob die theoretische Schätzvarianz mit der empirischen Schätzvarianz des Modells übereinstimmt. Der Schätzwert für das Residuum zum Zeitpunkt $t+Dt$ errechnet sich nach dem Modell aus $\exp(-aDt)$ multipliziert mit dem Residuum zum Zeitpunkt t . Der Schätzwert der Ozonkonzentration zum Zeitpunkt $t+Dt$ errechnet sich aus dem globalen Mittelwert (m) plus dem Tagesgangwert (d) plus dem Residuum (x). Nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz ergibt sich die Varianz des Schätzwertes der Ozonkonzentration dann aus der Summe der Varianzen der einzelnen Komponenten, d.h.

$$D_z^2 = D_m^2 + D_d^2 + D_x^2 \quad (8.15)$$

Dabei wird davon ausgegangen, dass die einzelnen Komponenten alle unabhängig voneinander sind. Weiter sind die Varianzen des globalen Mittelwertes und die Varianzen der Tagesgänge sehr klein, da sie aus dem gesamten Datenbestand berechnet wurden.

Deshalb wird davon ausgegangen, dass sie vernachlässigt werden können. Im folgenden sei K die angepasste exponentielle Korrelationsfunktion für die Residuen.

$$\begin{aligned}
 E(\hat{z} - z)^2 &= E(Kz_{i-1} - z_i)^2 \\
 &= r^2 \text{Cov}(z_{i-1}, z_{i-1}) + \text{Cov}(z_i, z_i) + 2K \text{Cov}(z_{i-1}, z_i) \\
 &= K^2 s^2 + s^2 - 2K s^2 \\
 &= s^2 (1 - K^2)
 \end{aligned} \tag{8.16}$$

Die theoretische Schätzvarianz zum Abstand Dt errechnet sich also nach obiger Formel. Dabei ist z der wahre aber unbekannte störgrößenfreie Wert an der Vorhersagestelle bzw. zum Vorhersagezeitpunkt. Die empirische Schätzvarianz ergibt sich nach folgender Formel:

$$D_{emp}^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (\hat{z}_i - z_i)^2}{n - u} \tag{8.17}$$

Dabei ist u die Anzahl der unbekannten Parameter in m und d . Da aber n sehr groß ist, entspricht $n-u$ ungefähr n . Die empirische Schätzvarianz berechnet sich aber im Unterschied zur theoretischen Schätzvarianz aus den störgrößenbehafteten Messwerten. Will man die empirische und die theoretische Schätzvarianz vergleichen, muss man deshalb die Störgrößenvarianz von der empirischen Schätzvarianz abziehen. Die Störgrößenvarianz ist die Restvarianz im Ursprung (also ca. 2 % der empirischen Varianz). Berechnet man nun die empirische und die theoretische Schätzvarianz so erhält man 720 und 732 (Standardabweichungen 26,8 bzw. 27,1). Von der empirischen Varianz wird nun noch ein Störgrößenanteil von 19,5 abgezogen, so dass sich 700,5 (Standardabweichung 26,5) ergibt. Die Werte sind also sehr gut in Übereinstimmung. Dies spricht dafür, dass die Modellparameter richtig geschätzt sind.

Des weiteren wurde eine Kreuzvalidierung durchgeführt, indem für jeden Vorhersagezeitpunkt der empirische Schätzfehler durch die Wurzel aus der theoretischen Schätzvarianz geteilt wurde.

Die theoretische Schätzvarianz bleibt in diesem Fall, im Gegensatz zum Normalfall bei der räumlichen Schätzung, konstant. Der Mittelwert dieser Quotienten liegt bei 0,025 und die Varianz der Quotienten liegt bei 0,98 (vgl. Abb. 8.15).

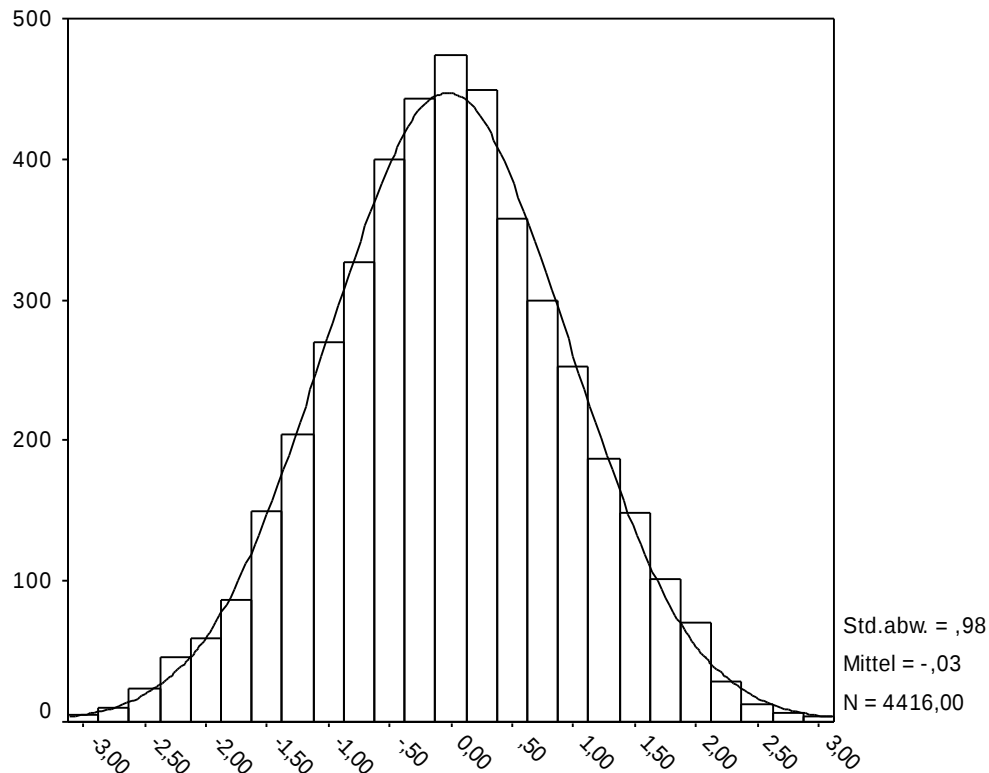


Abb. 8.15: Verteilung der z-scores der Kreuzvalidierung

Die vorgestellten zeitreihenanalytischen Verfahren sowie das vorgeschlagene eigene Modell erklären in der Regel nur ca. 30 bis 40 % der Varianz der Ausgangsdaten (vgl. auch Simpson und Layton 1983 oder Prybutok et al. 2000). Zeitreihenanalytische Verfahren können vermutlich in Kombination mit anderen Verfahren, wie z.B. Ausbreitungsrechnung mit Transportmodellen, neuronalen Netzen usw., zu besseren Ergebnissen führen (Prybutok et al. 2000).

9. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden die räumliche und zeitliche Variabilität von Ozonkonzentrationen in Sachsen auf der Grundlage der Ozonmesswerte des Sächsischen Landesamtes für Umwelt und Geologie im Zeitraum von 1995 bis 1999 analysiert. Um effektiv auf die Daten zugreifen und Abfragen bestimmter Zeitpunkte und/oder Stationen durchführen zu können, wurden die Rohdaten (ca. 1200 Dateien) in einer Datenbank organisiert (vgl. Kapitel 4). Raum und Zeit wurden bei der Analyse und Prognose getrennt voneinander betrachtet. Im Rahmen der explorativen Datenanalyse wurden zunächst deskriptive Statistiken berechnet (vgl. Kapitel 5). Dazu zählen Mittelwerte, Standardabweichungen, mittlere Tagesgänge, Korrelationen und Autokorrelationen. Sie dienen dazu, die zur Verfügung stehenden Daten möglichst anschaulich zu beschreiben und die wesentlichen Eigenschaften des Luftschadstoffs Ozon (vgl. Kapitel 2) anhand des zur Verfügung stehenden Datenmaterials quantitativ zu belegen. So konnte die starke räumliche und zeitliche Variabilität der Ozonkonzentration belegt werden. Es wurden mittlere Tagesgänge der Ozonkonzentration an den Stationen berechnet. Bei diesen Tagesgängen bestehen Unterschiede der Mittelwerte, der Form der Tagesgänge und der Reichweite der zeitlichen Autokorrelation an den unterschiedlich stark verkehrsbelasteten Messstationen. Es lassen sich im wesentlichen zwei Gruppen von Stationen identifizieren; an verkehrsbeeinflussten Stationen sind die Konzentrationen im Mittel niedriger und der Tagesgang ausgeprägter als an ländlichen Stationen. Diese Gruppierung konnte, wie erwartet, auch durch eine Clusteranalyse sowohl auf der Grundlage der mittleren Tagesgänge als auch der Stationsmittelwerte belegt werden (vgl. Kapitel 5.1.3). Der mittlere Tagesgang ist jedoch ein ideeller Verlauf. Die einzelnen Tagesgänge weichen nicht nur in ihrem Mittelwert, sondern auch und vor allem in ihrer Form, teilweise erheblich von diesem mittleren Zustand ab.

Für die Variogrammschätzung wurden die 16-Uhr-Werte (Tagesmaximum) der Monate Mai, Juni und Juli, in denen in der Regel die höchsten Konzentrationen auftreten, ausgewählt.

Die räumliche und zeitliche Differenzierung der Ozonkonzentration wird neben meteorologischen und topographischen Faktoren im wesentlichen durch von anthropogenen und biogenen Emissionen bestimmt. Es wird auf die Problematik und Komplexität der Driftvariablen im Falle von Ozonkonzentrationen eingegangen und verschiedene Verfahren zur Trendbereinigung (sowohl technische als auch inhaltliche) vorgestellt. Die Bereinigung räumlicher Trends scheint durch einfache Verfahren möglich zu sein, schwieriger verhält es jedoch mit verkehrsbeeinflussten Stationen. Auch nach der (mehrfachen) saisonalen Anpassung der Werte bleiben in Variogrammen und Autokorrelationsfunktionen gedämpfte Sinusschwingungen sichtbar. Weiterführende Forschungsarbeiten sollten sich deshalb mit der genaueren Modellierung der zeitlichen Trends, z.B. mit Hilfe von trigonometrischen Funktionen beschäftigen.

Aus den trendbereinigten Messwerten (Residuen) wurden im Rahmen der geostatistischen Strukturanalyse Variogramme berechnet. Es wurden Variogrammwerte gleicher Zeitpunkte gemittelt, damit die Schätzung stabiler wird und nicht zufällig durch eine einzige Realisierung bestimmt wird. Da die Standardsoftware lediglich eine Realisierung an einer Messstelle berücksichtigt, wurde für diese Art der Variogrammberechnung eine C++-Applikation implementiert. Zu Beginn der Forschungsarbeiten war unbekannt, wie groß die räumliche und zeitliche Reichweite der Nachbarschaftsbeeinflussung der Ozonkonzentration ist bzw. ob ihre Größe den Einsatz geostatistischer Vorhersageverfahren überhaupt rechtfertigt. In der vorliegenden Dissertation konnte gezeigt werden, dass die Ozonwerte auch nach der Elimination zeitlicher Trends (Jahresgang, Tagesgang, Wetterlage) und räumlicher Trends (Höhenlage der Station, Grad der Verkehrsbeeinflussung, Luv-Lee-Effekte) eine ausreichende räumliche und zeitliche Autokorrelation besitzen. Die Reichweite der räumlichen Korrelation scheint sogar größer zu sein als das Beobachtungsfenster von ca. 220 km, was auf die deutschland- bzw. europaweite Hintergrundkonzentration zurückgeführt werden kann (vgl. Kapitel 2.2).

Ein interessantes Phänomen zeigte sich zunächst in dem relativ hoch erscheinenden Nuggeteffekt, der durch die Analyse aller zur Verfügung stehender Stationsdaten ermittelt wurde.

Dieser hohe Nuggeteffekt, der sich bei der naiven Analyse aller zur Verfügung stehender Daten ergab, stellte sich anhand einiger inhaltlicher Überlegungen als ein Artefakt der Messnetzgeometrie heraus.

Er ist im wesentlichen das Ergebnis verkehrsbedingter anthropogener Emissionen. Innerhalb ein und derselben Stadt messen mehrere Stationen auf engem Raum sehr unterschiedliche luftchemische Regime. Die daraus resultierenden kleinräumigen Konzentrationsunterschieden führen zu hohen Variogrammwerten im Nahbereich. In der ersten Distanzklasse des Variogramms (bis zu 10 km) sind nur solche Stadt-Stadt-Paare enthalten, wären auch benachbarte ländliche Stationen vorhanden, hätte sich vermutlich ein anderes Bild ergeben. Am Ende stellte es sich als sinnvoll heraus, die jeweils verkehrsreichste Station einer Stadt (betroffen sind Chemnitz, Dresden und Leipzig) aus der Variogrammberechnung herauszulassen, um ein realistischeres Bild des „naturgewollten“ Nuggeteffektes zu erhalten. Auf diese Weise konnte der ursprüngliche Nuggeteffekt stark reduziert werden. Es kann angenommen werden, dass dieses Nuggetproblem nicht nur für das sächsische, sondern auch für andere Ländermessnetze charakteristisch ist, da die Messnetze einst in erster Linie zur Überwachung der Primärschadstoffe geplant wurden und für den Sekundärschadstoff Ozon deshalb nicht unbedingt repräsentativ sind und sollte bei der weiteren Planung der Messnetze unbedingt berücksichtigt werden. Wenn Stationen aufgrund finanzieller Zwänge eingestellt werden müssen, dann solche, die wenig zusätzliche Informationen bringen bzw. wenig repräsentativ sind. Aus geostatistischer Sicht wäre es hinsichtlich des Nuggetproblems von besonderem Interesse, die Messwerte benachbarter ländlicher Stationen vergleichen zu können. Außerdem erscheint es sinnvoll, im Lee der Bevölkerungsschwerpunkte, wo die maximalen Ozonkonzentrationen zu erwarten sind, Messstationen einzurichten. Dies ist in Sachsen z.B. mit der Einrichtung der Station Collnberg im Jahr 1998 geschehen.

Außerdem konnte eine Abhängigkeit der großen Konzentrationsunterschiede bei eng benachbarten Stationen, die zu dem hohen Nuggeteffekt führen, von der Windrichtung herausgefunden werden. Das Konzentrationsgefälle ist am größten, wenn der Wind von der verkehrsärmeren (ozonreicheren) Station zur verkehrsreicheren (ozonärmeren) weht, da hier die herantransportierte stickoxidhaltige Luft einen weiteren Ozonabbau bewirkt.

Da sich die angepassten Variogrammmodelle für die untersuchten fünf Sommer sehr ähneln, wurde ein mittleres Variogrammmodell mit den Parametern $nugget = 10 (\mu g/m^3)^2$, $sill = 230 (\mu g/m^3)^2$ und einem range von 60 km ermittelt, das für zukünftige Vorhersagen genutzt werden kann und nicht neu geschätzt werden muss. Dadurch wird die geostatistische Untersuchung um einen in der Regel langdauernden und schwierigen Schritt verkürzt. Die Genauigkeit dieser Variogrammparameter ist aufgrund des geringen Stichprobenumfangs (fünf Sommer) allerdings mit Vorsicht zu bewerten.

Der Schwerpunkt der geostatistischen Analyse wurde auf die möglichst genaue Schätzung der Variogramme gelegt. Ein gutgeschätztes Variogramm ist die Grundlage für eine gute räumliche Vorhersage. Trotzdem wird die Variogrammschätzung in vielen Untersuchungen oft etwas stiefmütterlich behandelt.

Anhand geeigneter Variogrammmodelle wird die eigentliche geostatistische Vorhersage (das Kriging) durchgeführt. Die Ozonkonzentration ist neben drei Raumkoordinaten auch von der Zeit abhängig (insgesamt vier Einflussgrößen). Die zur Verfügung stehenden Geostatistik-Programme unterstützen in der Regel jedoch nur zwei Einflussgrößen.

Mehrdimensionale (Anwendungs-)Fälle sind auch in der Literatur nur selten zu finden. Deshalb wurden Raum und Zeit hier getrennt behandelt. Die Ozonkonzentrationen wurden bei der geostatistischen Vorhersage der Veränderlichkeit zwischen den Messstellen nur als Funktionen der Lagekoordinaten angesehen. Ihre Abhängigkeit von der Höhe wurde jedoch als externe Drift berücksichtigt (Externes Drift Kriging). Bei der räumlichen Vorhersage der Ozonkonzentration besteht aufgrund der Komplexität der Driftvariablen noch weiterer Forschungsbedarf. Die Entscheidung darüber, was stochastisch und was deterministisch ist, ist generell problematisch. Deshalb ist sowohl die Trendbereinigung der Messwerte als auch die Wahl eines adäquaten Vorhersageverfahrens zur Integration der Driftvariablen nicht trivial und es müssen Entscheidungen bzw. Annahmen getroffen werden. Eine Möglichkeit zur Integration von Driftvariablen, z.B. der Meereshöhe, stellt das Kriging mit externer Drift (KED) dar. Beim Kriging mit externer Drift in *ISATIS* kann bislang nur eine Driftvariable in die Vorhersage integriert werden, in der Realität hat man es in der Regel aber mit mehreren Driftvariablen zu tun. Oft sind flächendeckende Informationen über die Driftvariablen nur schwer zugänglich.

Im Zeitbereich ist die Datenlage wesentlich günstiger als im Raumbereich. Hier bestehen für die Vorhersage jedoch erhebliche Probleme aufgrund der hohen zeitlichen Variabilität des Ozons. Zur zeitlichen Vorhersage (24h) der Ozonkonzentration an den Stationen konnten dennoch Verfahren der Zeitreihenanalyse (Exponentielle Glättung, ARMA-Modelle) erfolgreich eingesetzt werden. Darüber hinaus wurde ein eigenes Vorhersagemodell entwickelt (vgl. Kapitel 8.3), das zu besseren Vorhersageergebnissen führte als die einfachen Zeitreihenverfahren. Die Ozonkonzentrationen an ländlich geprägten Stationen lassen sich sowohl räumlich als auch zeitlich leichter vorhersagen als an stark verkehrsbeeinflussten Stationen. Für die verkehrsbeeinflussten Stationen wurde auf eine Funktionsanpassung zur Vorhersage des stochastischen Modellanteils verzichtet und stattdessen der empirische Autokorrelationskoeffizient für eine 24h-Vorhersage herangezogen.

Geostatistische und zeitreihenanalytische Verfahren können also zur raumzeitlichen Ozonvorhersage auch in diesem Maßstabbereich erfolgsversprechend eingesetzt werden. Sie zeichnen sich gegenüber numerischen Modellen durch einen sehr viel geringeren Anspruch an Inputdaten und Rechnerkapazitäten aus. Die Vorhersagegenauigkeiten sind ähnlich gut wie für deterministische Modelle (Jacobsen 2001). Der numerischen Modellierung sind aufgrund des unvollständigen Wissens über die physikalisch-chemischen Prozesse, die am Ozonauf- und Ozonabbau beteiligt sind (insbesondere die Rolle der biogenen Kohlenwasserstoffe, vgl. Kapitel 2.1) derzeit noch (Genauigkeits-)Grenzen gesetzt. Hier können stochastisch-deterministische Modelle deshalb auch weiterhin einen wichtigen Beitrag leisten.

Eine weiterführende Aufgabe besteht nun darin, auch zwischen den Messstellen zeitliche Vorhersagen vorherzunehmen, also Orts- und Zeitabhängigkeit nicht weiter getrennt voneinander zu betrachten. Hier besteht jedoch derzeit noch ein Mangel an geeigneten raumzeitlichen Variogramm- bzw. Kovarianzmodellen. Die Grundlage für eine raumzeitliche Modellierung der Ozondaten in Sachsen wurde mit dieser Arbeit gelegt, so dass nach Weiterentwicklung der Theorie und der Entwicklung geeigneter und flexibler raumzeitlicher Kovarianz- bzw. Variogrammmodelle auf dem vorhandenen Wissen aufgebaut werden kann.

Die neuen Entwicklungen in Richtung einer erkenntnisorientierten raumzeitlichen Geostatistik (vgl. Christakos 2000) können in Zukunft zu einer entscheidenden Verbesserung der Modelle führen. Allerdings befindet sich diese Entwicklung erst in der Anfangsphase, und es ist noch ein weiter Weg bis zu praktischen Ergebnissen.

Literatur

- Akin, H. u. Siemes, H. (1988): Praktische Geostatistik - Eine Einführung für den Bergbau und die Geowissenschaften, Springer Berlin.
- Alexander, J. (2000): Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben „Die Bedeutung biogener Kohlenwasserstoffe für die Ozonbildung und Erstellung eines Emissionskatasters in Rheinland-Pfalz“ im Auftrag der Forschungsvereinigung Automobiltechnik e.V. (FAT) (unveröffentlicht).
- Armstrong, M. (1998): Basic Linear Geostatistics. Springer Berlin.
- Baumbach, G. (1993): Luftreinhaltung – Entstehung, Ausbreitung und Wirkung von Luftverunreinigungen, Meßtechnik, Emissionsminderung und Vorschriften, Springer Berlin.
- Beilke, S. (2000): Langzeitentwicklung der Ozonbelastung im globalen, nationalen und regionalen Maßstab. – Troposphärisches Ozon. Eine kritische Bestandsaufnahme über Ursache, Wirkung und Abhilfemaßnahmen. – Symposium 8.-10.02.2000 Braunschweig, Schriftenreihe KRdL im VDI und DIN- Normenausschuss, Bd. 32, Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft (FAL) Institut für Agrarökologie, S. 55-81.
- Berger, G. (2000): Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie. Mündliche Mitteilungen.
- Boogaart, K.G. v.d. u. Brenning, A. (2001): Why is Universal Kriging Better than IRFk-Kriging: Estimation of Variograms in the Presence of Trend. Proc. 6th Annual Conference of the International Association for Mathematical Geology (IAMG), Cancún, México, <http://www.kgs.ukans.edu/Conferences/IAMG/Sessions/E/boogaart.html>
- Bronstein, I.N. u. Semendjajev, K.A. (1997) Taschenbuch der Mathematik, 3. Aufl.. Harri Deutsch Verlag, Frankfurt am Main.
- Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.) (2001): Aktionsprogramm Erzgebirge/Fichtelgebirge.

- Casado, L.X u. Rouhani, S. (1994): Geostatistical analysis and visualization of hourly ozone data. *Atmospheric Environment*, Vol. 28, No.12, pp 2105-2118.
- Chatfield, C. (1982): *Analyse von Zeitreihen, Eine Einführung*, Teubner Verlagsgesellschaft, Leipzig.
- Chilès, J.-P. u. Delfiner, P. (1999): *Geostatistics. Modeling Spatial Uncertainty*, Wiley New York.
- Christakos, G. (2000): *Modern spatiotemporal geostatistics*, Oxford University Press.
- Christakos, G. u. Vikram, M.V. (1997): Spatiotemporal analysis and mapping of sulfate deposition data over eastern U.S.A., *Atmospheric Environment*, Vol. 31, No. 21, pp 3623-3633.
- Christakos, G. u. Vikram, M.V. (1998): A composite space/time approach to studying ozone distribution over eastern United States, *Atmospheric Environment*, Vol. 32, no 16 pp 2845-2857.
- Cooper, S.M. u. Peterson, D.L. (2000): Spatial distribution of tropospheric ozone in western Washington, USA, *Environmental Pollution*, 107, pp 339-347.
- Cressie, N.A.C. (1993): *Statistics for Spatial Data*, rev. ed., Wiley New York.
- Cressie, N.A.C. u. Gotway, C.A. (1990): Spatial Prediction from Networks, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 7, pp 251-271.
- Daley, R. (1991): *Atmospheric Data Analysis*, Cambridge University Press, New York.
- Davis, J.C. (1986): *Statistics and Data Analysis in Geology*, 2nd ed., Wiley New York.
- Deutsch, C.V. u. Journel, A.G. (1998): *GSLIB: Geostatistical Software Library and User's Guide*, 2nd ed., Oxford University Press, New York.
- DWD Deutscher Wetterdienst (Hrsg.) (2000): Photosmog I, *promet* 26, Heft 3/4.
- DWD Deutscher Wetterdienst (Hrsg.) (2001): Photosmog II, *promet* 27, Heft 1/2
- Dierkesmann, R. u. Sandermann, H. (2000): Wirkung von Ozon auf Menschen und Pflanzen, *promet* 26, Heft 3/4, S. 151-161.
- Drüeke, M. (1995): Die räumliche Modellierung bodennaher Ozonimmissionen im Mesoscale – Ein Beitrag zur Regionalisierung von Luftschadstoffbelastungsdaten unter Einsatz geostatistischer Verfahren, Dissertation an der Universität Trier, Shaker Verlag, Aachen.
- Ebel, A. u. Hass, H. (1993): Correlation distances for air pollutants and implications for mesoscale modelling, *EMEP Workshop on the Accuracy of Measurements*, pp 201-207.

- Fabian, P. (1989): Atmosphäre und Umwelt – chemische Prozesse, menschliche Eingriffe, Berlin/Heidelberg.
- Fedorov, V.V. (1989): Kriging and other estimators of spatial field characteristics (with special reference to environmental studies), Atmospheric Environment, Vol. 23, No. 1, pp 175-184.
- Fiedler, F. (2000): Photosmog und bodennahes Ozon, *promet* 26, Heft 3/4, S. 88-89.
- Fiedler, F. u. Friedrich, R. (2001): Erforderliche Komponenten für die Ozonmodellierung, *promet* 27, Heft 1/2, S. 1-5.
- Fieger, A. u. Toutenburg, H. (1995): SPSS Trends für Windows - Arbeitsbuch für Praktiker, Prentice Hall Verlag GmbH, München.
- Fricke, W. (1993): On the mutual relation between data from different EMEP sites, EMEP Workshop on the Accuracy of Measurements, pp 180-189.
- Geovariances (Hrsg.) (1997): ISATIS Documentation, Geovariances France.
- Gneiting, T. u. Schlather, M. (2001): Space-time covariance models. In: A.H. El-Shaarawi a. W.W. Piegorsch (eds): The Encyclopedia of Environmetrics, Wiley New York.
- Golden Software Inc. (Hrsg.) (1994): SURFER for Windows - Contouring and 3D Surface Mapping, Golden – Colorado.
- Goovaerts, P. (2000): Geostatistical approaches for incorporating elevation into the spatial interpolation of rainfall, Journal of Hydrology, 228, pp 113-129.
- Goovaerts, P. (1997): Geostatistics for Natural Resources Evaluation, Oxford University Press, New York.
- Guenther, A.B. et al. (1995): A global model of natural volatile organic compound emissions, J. Geophys. Res., Vol. 100, D5, pp 8873-8892.
- Guttorp, P. et al. (1994): A Space-Time Analysis of Ground-Level Ozone Data, Environmetrics, Vol. 5, pp 241-254.
- Haas, T.C. (1995): Local Prediction of a Spatio-Temporal Process With an Application to Wet Sulfate Deposition, Journal of the American Statistical Association, Vol. 90, No. 432, pp 1189-1199.
- Haggett, P. (1975): Geography: a modern synthesis, Harper & Row, New York.
- Hartung, J. (1998): Lehr- und Handbuch der angewandten Statistik, 11. Aufl., Oldenbourg.
- Helbig A., Baumüller J., Kerschgens M.J. (Hrsg.), (1999): Stadtklima und Luftreinhaltung, 2. Aufl., Springer, Heidelberg.

- Herzfeld, U.C. (1989): Variography of submarine morphology: problems for deregularization and cartographical implications, *Math. Geol.*, Vol. 21, No. 7, pp 693-713.
- Hinze, C. u. Sobisch, H.-G. (1999): Spatial Modelling in Geology and its Practical Use, *Mathematische Geologie*, 4, pp 51-60.
- HLfU Hessische Landesanstalt für Umwelt (Hrsg.) (1996): Flächenhafte Darstellung der Immissionssituation - FLADIS Arbeits- und Umweltschutz, Heft 201, Wiesbaden.
- Höppe, P. U. Wagner, M. (2000): Risikoabschätzung der Ozonwirkung unter besonderer Berücksichtigung epidemiologischer Studien. – Troposphärisches Ozon. Eine kritische Bestandsaufnahme über Ursache, Wirkung und Abhilfemaßnahmen. – Symposium 8.-10.02.2000 Braunschweig, Schriftenreihe KRdL im VDI und DIN- Normenausschuss, Bd. 32, Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft (FAL) Institut für Agrarökologie, S. 191-214.
- Hoffmann, H. (2001a): Geostatistical analysis of spatial and temporal ozone immission structures. In: Longhurst, J.W.S. et al. (Hrsg.): *Air Pollution IX*, WITPress, Southampton, Boston, pp 511-520.
- Hoffmann, H. (2001b): Geostatistische Analyse räumlicher und zeitlicher Ozonimmissionsstrukturen in Sachsen. In: Fall, M. und Merkel, B. (2001) (Hrsg.): *Kontamination aus der Nutzung von Ressourcen - Probleme und Lösungen* Wissenschaftliche Mitteilungen 18 Institut für Geologie Freiberg, S. 149-159.
- Hoffmann, T. u. Klockow, D. (1998): Atmosphärenchemie biogener Kohlenwasserstoffe, *Chemie unserer Zeit*, 32, Nr. 4, S. 182-191.
- Isaaks, E.H. u. Srivastava, R.M. (1998): *An Introduction to Applied Geostatistics*, Oxford University Press, New York.
- Jacobsen, I. (2001): Erfordernisse für eine operationelle Ozonprognose und gegenwärtiger Stand, *promet* 27, Heft 1/2, S. 41-51.
- Journel, A.G. u. Huijbregts, C.J. (1978): *Mining Geostatistics*, Academic Press, New York.
- Kramp, F., Kley, D. u. Volz-Thomas, A. (1995): Die Rolle reaktiver Kohlenwasserstoffe bei der Photoxidantienbildung in ländlichen Gebieten. Ein Beitrag zur Bilanzierung der Photochemischen Ozonproduktion, Jülich.
- Künzle, T. u. Neu, U. (1994): Experimentelle Studien zur räumlichen Struktur und Dynamik des Sommersmogs über dem Schweizer Mittelland, *Geographica Bernensia* G17, Bern.
- Lahmann, E. (1990): *Luftverunreinigung – Luftreinhaltung – eine Einführung in ein interdisziplinäres Wissensgebiet*. Berlin/Heidelberg.
- Leiner, B. (1998): *Grundlagen der Zeitreihenanalyse*, 4. Aufl., R. Oldenbourg Verlag, München, Wien.

- Lohmeyer (1999): IMMIKART - Erstellung eines Programmsystems zur Übertragung von Schadstoffmeßwerten an Einzelpunkten auf die Fläche (Kurzbeschreibung).
- Loibl, W. u. Winiwarter, W. et al. (1994): estimating the spatial distribution of ozone concentrations in complex terrain, *Atmospheric Environment*, Vol. 28, No. 16, pp 2557-2566.
- Loibl, W. (1994): Flächeninterpolation von Meßdaten höhen- und tageszeitabhängiger Schadstoffbelastungen und deren Animation am Beispiel der Ozonkonzentration AGIT94.
- Matheron, G. (1971): The theory of regionalized variables and its applications. *Les Cahiers du Centre de Morphologie Mathématique de Fontainebleau*, N° 5, École Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- Mayer, H. u. Schmidt, J. (1998): Problematik der Kennzeichnung von sogenannten "Ozon-Wetterlagen", *Meteorol. Zeitschrift*, 7, Heft 1, S. 41-48.
- Meiring, W. et al. (1998): Space-time estimation of grid-cell hourly ozone levels for assessment of a deterministic model, *Environmental and Ecological Statistics*, Vol. 5, pp 197-222.
- Meixner, F.X. et al. (2000): Räumliche und zeitliche Verteilung anthropogener Quellen biogener Vorläufersubstanzen für Ozon, *promet* 26, Heft 3/4, S. 102-111.
- Menz, J. (1991): Gebirgs- und Lagerstättengeometrie. Studienhilfe an der TU Bergakademie Freiberg.
- Menz, J. u. Pilz, J. (1994): Kollokation, Universelles Kriging und BAYESScher Zugang, *Das Markscheidewesen*, 101, 2, S. 62- 66.
- Menz, J. (1999): Forschungsergebnisse zur Geomodellierung und deren Bedeutung, *Mathematische Geologie*, 4, S. 19-30.
- Möller, D. (2000): Quellen und Senken troposphärischen Ozons: eine Budgetbetrachtung. - Troposphärisches Ozon. Eine kritische Bestandsaufnahme über Ursache, Wirkung und Abhilfemaßnahmen. – Symposium 8.-10.02.2000 Braunschweig, Schriftenreihe KRdL im VDI und DIN- Normenausschuss, Bd. 32, Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft (FAL) Institut für Agrarökologie, S. 23-34.
- Nester, K. et al. (2001): Modellierung von Ozon auf der regionalen Skala, *promet* 27, Heft 1/2, S. 6-16.
- Niu, X.-F. (1996): Nonlinear Additive Models for Environmental Time Series, With Applications to Ground-Level Ozone Data Analysis, *Journal of the American Statistical Association*, Vol. 91, No. 435, pp 1310-1321.
- Obermeier, A. (1995): Ermittlung und Analyse von Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen in Baden-Württemberg, Universität Stuttgart, Forschungsbericht des Instituts für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Bd. 19.

- Pederson, U. (1993): Improvements of the spatial correlation structure by use of anisotropic variogram analysis, EMEP Workshop on the Accuracy of Measurements, pp 190-200.
- Phillips, D. L. et al. (1997): Use of auxiliary data for spatial interpolation of ozone exposure in southeastern forests, *Environmetrics*, vol. 8, pp 43-61.
- Poppe, D. u. Zimmermann, J. (2000): Chemische Ozonbildung in der atmosphärischen Grenzschicht, *promet* 26, Heft 3/4, S. 90-96.
- Prybutok, V. R., Yi, J. u. Mitchell, D. (2000): Comparison of neural network models with ARIMA and regression models for prediction of Houston's daily maximum ozone concentration, *European Journal of Operational Research*, 122, pp 31-40.
- Richter, K. et al. (1998): Abschätzung biogener Kohlenwasserstoffemissionen, *Zeitschrift für Umweltchemie und Ökotoxikologie*, 10, S. 319-325.
- Roselle, S.J., Pierce, T.E. u. Schere, K.L. (1991): The sensitivity of regional ozone modeling to biogenic hydrocarbons, *J. Geophys. Res.*, Vol. 96, D4, pp 7371-7394.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (Hrsg.) (1998): Halbjahresbericht zur Ozonbelastung in Sachsen Sommer 1998.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (Hrsg.) (1999): OMKAS newsletter 4/99, Lößnitz-Druck GmbH Radebeul.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (Hrsg.) (1999): Halbjahresbericht zur Ozonbelastung in Sachsen, Lößnitz-Druck GmbH Radebeul.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (Hrsg.) (2000): OMKAS - Tagungsband zur Abschlussveranstaltung am 16. März in Dresden, Apresys Informations-Systeme GmbH Dresden.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (Hrsg.) (1999): OMKAS newsletter 3/98.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (Hrsg.) (1996): OMKAS newsletter 1/96.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (Hrsg.) (1997): OMKAS newsletter 2/97.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (Hrsg.) (1999): Emissionssituation in Sachsen, Lößnitz-Druck GmbH Radebeul.
- Schlittgen, R. u. Streitberg, B.H.J. (1991): Zeitreihenanalyse, 4. Aufl., R. Oldenbourg Verlag, München, Wien.
- Simpson, D. et al. (1995): Biogenic emissions in Europe. 1. Estimates and uncertainties, *J. Geophys. Res.*, Vol. 100, D11, pp 22875-22890.
- Simpson, R.W. u. Layton, A.P. (1983): Forecasting peak ozone levels, *Atmospheric Environment*, Vol. 17, No. 9, pp 1649-1654.

- Slanina, J. (1997): Future research on biogenic emissions of volatile organic compounds: Requirements and strategy. In: Helas, G., Slanina, J. u. Steinbrecher, R. (Hrsg.): Bio-genic volatile organic compounds in the atmosphere, Amsterdam, pp 171-176.
- Stein, M.L. (1999): Interpolation of Spatial Data - Some Theory for Kriging, New York.
- Stoyan, D., Stoyan H. u. Jansen, U. (1997): Umweltstatistik, Statistische Verarbeitung und Analyse von Umweltdaten, Teubner Verlag, Stuttgart, Leipzig.
- Stoyan, D. (1993): Stochastik für Ingenieure und Naturwissenschaftler - Eine Einführung in die Wahrscheinlichkeitstheorie und die Mathematische Statistik, Akademie Verlag Berlin.
- Stroud, J. R. et al. (2001): Dynamic models for spatiotemporal data, Journal of Royal Statistical Society, 63, pp 673-689.
- Umweltbundesamt (UBA) (1991): Verkehrsbedingte Luft- und Lärmbelastungen – Emissionen, Immissionen, Wirkungen, UBA-Texte 40/91, Berlin.
- Umweltbundesamt (UBA) (1999): Emissionen nach Emittentengruppen in Deutschland zwischen 1990 und 1997.
- Umweltbundesamt (UBA) (2000): Hintergrundinformation Sommersmog, Umweltbundesamt Pressestelle, 17.05.2000 (<http://www.umweltbundesamt.de/uba-datenbanken/d-db-uba.htm>)
- Tilmes, S. (1999): Verfahren zur Analyse von Messungen atmosphärischer Spurengase mit dem Ziel der Assimilation in Chemie-Transportmodellen, Berichte des Deutschen Wetterdienstes (DWD), 207, Offenbach.
- Tilmes, S. u. Mohnen, V. (2001): Messungen, Messnetze, Qualitätssicherung, *promet* 27, Heft 1/2, S. 55-67.
- Tilmes, S. (2001): Quantitative estimation of surface ozone observation and forecast errors, Phys. Chem. Earth, Vol 25, No. 2, pp 123-126.
- Van Egmond, N.D. u. Onderdelinden, D. (1981): Objective analysis of air pollution monitoring network data; spatial interpolation and network density, Atmospheric Environment, Vol. 15, No. 6, pp 1035-1046.
- Ver Hoef, J.M. u. Barry, R.P. (1998): Constructing and fitting models for cokriging and multivariate spatial prediction, Journal of Statistical Planning and Inference, 69, pp 275-294.
- Wackernagel, H. (1995): Multivariate Geostatistics – An Introduction with Applications, Springer Berlin.
- Wickert, B., Obermeier, A. u. Friedrich, R.: Räumliche und zeitliche Verteilung anthropogener Quellen der Vorläufersubstanzen für Ozon, *promet* 26, Heft 3/4, S. 97-101.