



Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre II:
Troposphäre

***Globale Verteilungsmuster anthropogener
Stickoxidemissionen:
Vergleich und Integration von troposphärischen
Satellitenbeobachtungen und Modellrechnungen***

Nicola Toenges-Schuller

***Globale Verteilungsmuster anthropogener
Stickoxidemissionen:
Vergleich und Integration von troposphärischen
Satellitenbeobachtungen und Modellrechnungen***

Nicola Toenges-Schuller

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 4160

ISSN 0944-2952

Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre II: Troposphäre Jül-4160

D 38 (Diss., Köln, Univ., 2004)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

☎ 02461 61-5220 · Telefax: 02461 61-6103 · e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de

Kurzzusammenfassung

Stickoxide (NO_x , $\text{NO}+\text{NO}_2$) spielen eine wichtige Rolle in der troposphärischen Chemie, zum Beispiel als Vorläufersubstanz für Ozon. Ihre Verteilung wird mit globalen Chemie-Transport-Modellen untersucht; diese benötigen Emissionsdaten als Eingabedateien. Ein weit verbreitetes Emissionskataster ist die EDGAR-Datenbank, in der anthropogene Emissionen auf Basis von Wirtschaftsdaten der einzelnen Länder abgeschätzt werden, und die große Unsicherheiten enthält.

In dieser Arbeit werden neben dem EDGAR-Kataster Satellitendaten verwendet, um die geographischen Verteilungsmuster anthropogener Stickoxidquellen abzuschätzen. Wegen der kurzen troposphärischen Lebensdauer von NO_x (≈ 1 Tag) korrelieren die Quellfelder räumlich gut mit der troposphärischen NO_2 -Verteilung, deshalb können über den durch anthropogene Emissionen dominierten Gebieten die Messungen des Satelliteninstrumentes GOME der troposphärischen NO_2 -Säulendichtefelder als Proxy für die anthropogenen Emissionen dienen. Hier werden zwei GOME-Auswertungen verwendet, eine von Richter & Burrows (IUP Bremen) und eine von Leue et al. (IUP Heidelberg). Als weiteres Proxy dienen in dieser Arbeit kalibrierte Satellitenmessungen der Lichter der Welt bei Nacht des OLS (Operational Linescan System, Defense Meteorological Satellite Program, NGDC).

Im Rahmen dieser Arbeit wird ein Verfahren entwickelt, dass es erlaubt, mit Hilfe der räumlichen Korrelationskoeffizienten mindestens dreier Felder, deren Fehler als unabhängig angenommen werden können, auf die Musterfehler dieser Felder zu schließen (Korrelations-Fehleranalyse). Der Musterfehler wird hier definiert als das Verhältnis der Varianz des in einem Feld enthaltenen Fehlerfeldes zur Gesamtvarianz dieses Feldes.

Zunächst wird die Korrelations-Fehleranalyse auf die Jahresmittelwerte von vier NO_2 -Säulendichtefeldern über den durch anthropogene Emissionen dominierten Gebieten angewandt: Die beiden GOME-Auswertungen und zwei Modellrechnungen mit dem globalen Chemie-Transport-Modell MOZART. Die erste der Modellrechnungen wurde mit den auf EDGAR basierenden Standardemissionen des Modells durchgeführt, in der zweiten wurden die anthropogenen NO_x -Emissionen durch eine auf den Satellitenaufnahmen der Lichter der Welt bei Nacht basierende Quelle ersetzt. Da weder die Fehler der beiden GOME-Auswertungen (dasselbe Instrument, ähnliche Auswertungsalgorithmen) noch die Fehler der beiden Modellrechnungen (beide mit MOZART gerechnet) unabhängig sind, können für die Säulendichtefelder nur Fehlerbereiche angegeben werden. Die Musterfehler der beiden Modellrechnungen liegen jeweils zwischen 18% und 50%, der Musterfehler

der GOME-Auswertung von Richter & Burrows liegt zwischen 0% und 39% und der der GOME-Auswertung von Leue et al. zwischen 26% und 55%.

Bei einer Betrachtung der Emissionsfelder stehen mit EDGAR, OLS und GOME drei unabhängige Quellen für die Korrelations-Fehleranalyse zur Verfügung. Um den ungerichteten Transport zumindest teilweise auszugleichen, werden die GOME-Felder einer Entfaltung und einer Potenzierung unterzogen; dies schärft die Muster der dann als Quellfelder interpretierten Satellitenmessungen. Wenn vor der Fehleranalyse Ausreißer in den Quellfeldern eliminiert werden, lauten die hier bestimmten Musterfehler für die vier Emissionsfelder: EDGAR anthropogen: $(27 \pm 5)\%$, Lichterquelle: $(26 \pm 5)\%$, NO_x -Quelle GOME Richter: $(33 \pm 5)\%$ und NO_x -Quelle GOME Leue: $(45 \pm 5)\%$. Für EDGAR lagen bislang nur grobe Fehlerschätzungen vor; die Fehlerangaben für die Satellitenfelder können dazu beitragen, die Auswertungsalgorithmen zu verbessern.

Schließlich werden die vier Quellfelder so zu einem neuen Feld kombiniert, dass der Musterfehler dieses Kombinationsfeldes minimal wird. Unter der Annahme, dass die in dem durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet bestimmten Musterfehler auch in den übrigen Regionen gelten, kann eine flächendeckende anthropogene NO_x -Emissionsquelle konstruiert werden: In den biogen dominierten Gebieten werden nur die anthropogenen EDGAR-Emissionen und die Lichterquelle kombiniert; in den anthropogen dominierten Gebieten nach Möglichkeit alle vier Felder, an Gitterpunkten, an denen ein oder zwei Felder Ausreißer aufweisen oder nicht definiert sind, nur die jeweils anderen Felder. Der Musterfehler dieser Kombinationsquelle beträgt $(15 \pm 2)\%$, was eine deutliche Reduktion gegenüber den Fehlern der Ursprungsfelder darstellt.

Das so kombinierte Quellfeld ist nur bis auf einen konstanten Offset und einen konstanten Faktor bestimmt, da durch das Kombinationsverfahren nur das Muster des Feldes eindeutig festgelegt wird. Offset und Faktor werden hier relativ zur anthropogenen Quelle des EDGAR-Katasters bestimmt. Mit dem damit vollständig bestimmten Quellfeld wird eine MOZART-Modellrechnung durchgeführt. Die räumliche Korrelation des Jahresmittelwertes des troposphärischen NO_2 -Säulendichtefeldes dieser Modellrechnung mit beiden GOME-Auswertungen ist besser als die der ursprünglichen Modellrechnungen mit der EDGAR- oder der Lichterquelle.

Abstract

Global distribution pattern of anthropogenic nitrogen oxide emissions: Comparison and integration of tropospheric satellite observations and model calculations

Nitrogen oxide (NO_x , $\text{NO}+\text{NO}_2$) plays a key role in tropospheric chemistry, for example as an important precursor of ozone. Its distribution is studied with global chemistry transport models, which need surface emission data as input. A widely-used emission inventory is the EDGAR database, where the anthropogenic emissions are estimated using economic data of the individual countries. This database contains large and mostly unknown uncertainties.

In this thesis, satellite data are used in addition to EDGAR to estimate the geographical distribution pattern of anthropogenic NO_x emissions. Due to the short tropospheric lifetime of NO_x (≈ 1 day), its global distribution is highly correlated to the distribution of the emissions, which allows using measurements of tropospheric NO_2 column densities by the satellite instrument GOME as a proxy for anthropogenic emissions in the areas dominated by those emissions. Two GOME evaluations are used in this thesis, one done by Richter & Burrows (IUP Bremen) and one done by Leue et al. (IUP Heidelberg). As yet another proxy for anthropogenic emissions, calibrated satellite measurements of the nighttime lights of the world (Operational Linescan System (OLS), Defense Meteorological Satellite Program, NGDC) are used.

Within this thesis, a method is developed to calculate pattern errors using the correlation coefficients of at least three fields with independent errors (correlation error analysis). The pattern error of a field is defined here as the ratio of the variance of the error contained in that field to the variance of the total field.

At first, the correlation error analysis is applied to the annual mean values of four NO_2 column density fields in those areas dominated by anthropogenic emissions: Two GOME evaluations and two model calculations done with the global chemistry transport model MOZART. The first model calculation was done using the model's standard emission fields which are based on the EDGAR database; in the second calculation, the anthropogenic NO_x emissions were replaced by a source based on the satellite images of the nighttime lights of the world. Since neither the errors of the two GOME evaluations (same instrument, similar evalua-

tion algorithms) nor the errors of the two model calculations (done by the same model) are independent, only error ranges can be given for the column density fields: The pattern errors of the two model calculations range from 18% to 50%, the pattern error of the GOME evaluation by Richter & Burrows ranges from 0% to 39% and the pattern error of the GOME evaluation by Leue et al ranges from 26% to 55%.

For the correlation error analysis of the emission fields, there are three independent sources available: EDGAR, OLS and GOME. To at least partly eliminate the effect of undirected transport, the GOME fields are deconvoluted and risen to a higher power. This sharpens the patterns of the satellite measurements when interpreted as emissions. If outliers in the source fields are eliminated before applying the correlation error analysis, the pattern errors of the four fields determined in this thesis read as follows: EDGAR anthropogenic: $(27 \pm 5)\%$, light-based NO_x source: $(26 \pm 5)\%$, NO_x source GOME Richter: $(33 \pm 5)\%$, NO_x source GOME Leue: $(45 \pm 5)\%$. So far, the error estimates for EDGAR were rather rough; the error specifications for the GOME fields can help to improve the retrieval algorithms.

Finally, the four emission fields are combined minimizing the pattern error of the combination field. Assuming that the pattern errors that were determined in the areas dominated by anthropogenic emissions are the same in other regions as well, an anthropogenic NO_x emission field with global coverage can be constructed: In the areas dominated by biogenic emissions, only the anthropogenic EDGAR source and the light-based emissions are combined. In the areas dominated by anthropogenic emissions, all four fields are combined where possible. At grid points where one or two fields show outliers or are undefined, only the other fields are combined. The pattern error of the combination field amounts to $(15 \pm 2)\%$, which is a considerable reduction compared to the pattern errors of the four original fields.

The combination field is unique only up to a constant offset and a constant factor, since only the pattern of that field is fixed by the construction. This offset and factor are chosen relative to the anthropogenic NO_x emissions of EDGAR. With this source field a MOZART model calculation is done. The spatial correlation of the annual mean of the tropospheric column densities of this field with either of the GOME evaluations is higher than that of the original model calculations with either the EDGAR or the light-based NO_x emissions.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Satellitenfelder	5
1.1 GOME: Troposphärische NO ₂ -Säulen	5
1.1.1 Das Instrument	5
1.1.2 Auswertungsschritte	6
1.1.3 Auswertungen verschiedener Arbeitsgruppen	8
1.1.4 Auswahl der verwendeten Datensätze	13
1.2 OLS: Lichter der Welt bei Nacht	14
1.2.1 Das Instrument	14
1.2.2 Auswertungsschritte	15
1.2.3 Datenprodukt: menschliche Siedlungen	16
2 Modell	17
2.1 MOZART	17
2.1.1 Beschreibung	17
2.1.2 Evaluierung	19
2.1.3 Rechenzeit und Speicherbedarf	20
2.2 EDGAR	20
2.2.1 Historie der Entwicklung von EDGAR	20
2.2.2 Prinzip	21
2.2.3 Unsicherheiten	22
2.3 Lichter: Proxy für anthropogene NO _x -Emissionen	23
3 Direkter Vergleich der NO₂-Felder	25
3.1 NO ₂ -Felder	25
3.1.1 GOME-Messungen	25
3.1.2 Modellierete Säulendichten	26
3.2 Vergleich Satellitenmessung – Modellrechnung	30
3.2.1 Gesamtinventar	30
3.2.2 Zonale Mittelwerte	32
3.2.3 Räumliche Korrelationskoeffizienten	33
3.2.4 Literatur: Weitere Vergleiche	37

4	Korrelations–Fehleranalyse: Methode	39
4.1	Korrelationskoeffizienten und Fehlervarianzen	39
4.2	Konstruktion eines kombinierten Feldes	42
4.2.1	Transformation auf Felder mit unkorrelierten Fehlern . . .	43
4.2.2	Berechnung der Wichtungsfaktoren	43
4.2.3	Behandlung von Ausreißern	45
4.3	Zusammenfassung der Methode	47
4.4	Beispiel	48
5	Anthropogen dominierte NO₂–Säulendichtefelder	59
5.1	Datenfelder	59
5.2	Korrelations–Fehleranalyse	61
5.2.1	Musterfehler: Wertebereiche	61
5.2.2	Wichtungsfaktoren: Wertebereiche	67
5.3	Beispiel für ein kombiniertes Säulendichtefeld	68
5.3.1	Versuch Abschätzung Fehlerkovarianz	68
5.3.2	Musterfehler und Wichtungsfaktoren für den Beispielfall .	69
5.4	Robuste Betrachtung des Beispielfalles	70
5.4.1	Einfluss einzelner Gitterpunkte auf den Musterfehler . . .	72
5.4.2	Identifizierung von Ausreißern	72
5.4.3	Berücksichtigung der Ausreißer bei der Kombination . . .	76
5.4.4	Geographische Lokalisierung der Ausreißer	78
5.5	Andere Fehlerangaben	81
5.6	Vergleich GOME Auswertung Boersma et al.	82
6	GOME–Säulendichten: Proxy für anthropogene Emissionen	87
6.1	Säulendichten — Emissionen	87
6.1.1	Transport	88
6.1.2	Lebensdauer und NO–Anteil des NO _x	92
6.2	Offset und Skalierung	93
6.2.1	... der entfalteten Säulen relativ zu den Emissionen	93
6.2.2	... der Satelliten–Säulen relativ zur Modellrechnung	97
6.3	Varianzen der Quellfelder	101
6.4	Zusammenfassung	104
7	Fehleranalyse Emissionen	107
7.1	Musterfehler der Emissionen	107
7.2	Ausreißer	110
7.3	Kombiniertes Emissionsfeld (anthropogen)	115
7.4	Vergleich mit der Quelle von Martin et al.	121
7.5	MOZART–Rechnung mit der neuen Quelle	122
	Ausblick	128
A	Bootstrap–Verfahren	129

B Faltung	131
B.1 Faltung	131
B.2 Entfaltung	132
Abbildungsverzeichnis	133
Tabellenverzeichnis	135
Literaturverzeichnis	137

Einleitung

Seit der industriellen Revolution hat sich die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre aufgrund von anthropogenen Aktivitäten deutlich verändert. Unter den emittierten Spurengasen spielen Stickoxide (NO_x , $\text{NO} + \text{NO}_2$) eine wichtige Rolle. NO_2 ist einerseits selbst giftig, andererseits sind die Stickoxide als Radikale hoch reaktiv und maßgeblich an der Ozonchemie (in der Troposphäre wie in der Stratosphäre) beteiligt. Troposphärisches Ozon wiederum ist Bestandteil des Sommersmogs und wirkt auch sehr effektiv als Treibhausgas (siehe IPCC Bericht [18]).

Boden- oder flugzeuggestützte Messkampagnen sind zwangsläufig räumlich und zeitlich eng begrenzt, so dass die globale Verteilung der Stickoxide lange Zeit nur durch Modellierung mit globalen Chemie-Transport-Modellen (CTM) untersucht werden konnte. Solche Modelle berechnen bei vorgegebener Meteorologie, etwa der Ausgabe von Allgemeinen Zirkulationsmodellen (*general circulation model*, GCM) oder von meteorologischen Analysen aktueller Jahre zum Beispiel vom ECMWF, unter Benutzung eines chemischen Reaktionsmechanismus die globale Verteilung chemischer Spurengase. Dazu benötigen sie Emissionsdaten als Eingabedateien.

Die Hauptquellen für Stickoxide in der Troposphäre sind Verbrennungsprozesse (anthropogene Emissionen, Wald- und Buschfeuer), Bodenemissionen durch mikrobiologische Prozesse, Blitzemissionen und Luftmassenaustausch der Troposphäre mit der Stratosphäre. Die anthropogenen Emissionen, hauptsächlich bedingt durch Verbrennung fossiler Rohstoffe in Energieversorgung, Verkehr und Industrie, machen einen großen Teil der Stickoxidquelle aus. Ein weit verbreitetes Emissionskataster ist die EDGAR-Datenbank, in der anthropogene Emissionen auf Basis von Wirtschaftsdaten der einzelnen Länder abgeschätzt werden; sie enthält – wie alle Kataster – große Unsicherheiten. Die auf diesem Datenbestand basierenden Hauptquelltypen des CTM MOZART-2 sind in Tabelle 1 aufgelistet.

Seit einem knappen Jahrzehnt steht eine weitere Möglichkeit zur Verfügung, die globale NO_2 -Verteilung zu untersuchen: Satelliteninstrumente können in globaler Abdeckung mit fester räumlicher und zeitlicher Auflösung atmosphärische Spurengaskonzentrationen über einen langen Zeitraum hinweg konsistent messen. Im April 1995 startete das Satelliteninstrument GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) und nimmt seither zuverlässig Spektren auf, die die Bestimmung einer Reihe von Spurengasen einschließlich NO_2 ermöglichen; erst in den letzten Jahren tauchten Probleme auf. Mit MIPAS und SCIAMACHY auf ENVISAT (Start 28.02.02) und OMI als Teil des Aura-Systems (Start 15.06.04) der NA-

Quellentyp	Quellstärke	Charakteristika
anthropogene Emissionen	26.7 Mt/y	Schwerpunkt: nordhemisphärische Industriezentren, schwach ausgeprägter Jahresgang
Biomasseverbrennung	11.0 Mt/y	Schwerpunkt in den Tropen, hohe interannuelle wie intraannuelle Variabilität
Bodenemissionen	6.6 Mt/y	Schwerpunkt in den Tropen und der jeweiligen Sommerhemisphäre
Blitzemissionen	3.1 Mt/y	dreidimensionale Quellverteilung, „C-Profil“

Tabelle 1: Hauptquellen für Stickoxide in der Troposphäre im CTM MOZART-2

SA stehen im Prinzip weitere Instrumente mit höherer räumlicher wie spektraler Auflösung zur Verfügung, sobald deren Daten für eine Interpretation freigegeben werden.

Satellitenmessungen können sehr gut mit Modellrechnungen verglichen werden, da in beiden Fällen Mittelwerte über ein großes Gebiet bestimmt werden: Ein Spektrometer auf einem Satelliten misst die Absorption entlang des gesamten Lichtweges, Modellausgaben stellen immer den Mittelwert einer durch die Auflösung vorgegebenen Gitterbox dar. Bei *in situ* Messungen hingegen ist nicht immer klar, ob einzelne Punktmessungen für die entsprechende Gitterbox eines globalen Modells repräsentativ sind.

Leider stellen die Satellitenauswertungen keine global konsistente Größe mit nach einmaliger Eichung an jedem Punkt der Erde gleich großen Fehlern dar. In die Auswertung gehen vielmehr Annahmen über lokale Parameter wie zum Beispiel Wolkenbedeckungsgrad, Bodenalbedo und das angenommene Höhenprofil der gesuchten Spurengase ein. Wenn auf Basis einer Satellitenauswertung, die hinsichtlich des angenommenen Höhenprofils auf Modellergebnisse zurückgreift, neue Emissionsfelder bestimmt werden, und diese anschließend wiederum als Eingabe für das Modell verwendet werden, so besteht die Gefahr, dass eine bei Vergleichen gefundene hohe Übereinstimmung lediglich auf gemeinsame Fehler zurückzuführen ist.

In dieser Arbeit werden von Modellrechnungen unabhängige Auswertungen des Satelliteninstruments GOME betrachtet. Als Abschätzungen für anthropogene Emissionen dient zum einen das EDGAR-Emissionskataster, zum anderen werden Satellitenaufnahmen der Lichter der Welt bei Nacht als Proxy für menschliche Aktivitäten herangezogen. Auf Basis dieser Emissionsschätzungen werden Modellrechnungen mit dem globalen Chemie-Transport-Modell MOZART durchgeführt. Die Ziele dieser Arbeit sind folgende:

- Quantifizierung der Fehler von EDGAR anthropogen und GOME im anthropogen dominierten Gebiet,
- Identifizierung von Ausreißern in den betrachteten Datensätzen,
- Konstruktion eines optimierten anthropogenen Emissionsfeldes mit spezifizierter Fehlermarge.

Bei dem Kombinationsfeld soll transparent nachvollziehbar sein, in welchen Anteilen die GOME-Messungen, die Satellitenaufnahmen der Lichter und die anthropogenen EDGAR-Emissionen in der neuen Quelle enthalten sind.

Um diese Ziele erreichen zu können, wird in Kapitel 4 eine Methode der Korrelations-Fehleranalyse entwickelt, die es ermöglicht, die Fehler der Verteilungsmuster von mindestens drei Datensätzen mit unabhängigen Fehlern zu bestimmen. Diese Methode wird in Kapitel 5 in dem von anthropogenen Emissionen dominierten Gebiet auf die Säulendichtefelder angewandt. In Kapitel 6 wird versucht, aus den Satellitensäulen Quellfelder abzuschätzen, dabei werden eine Entfaltung zur teilweisen Kompensation des Transports, eine Subtraktion von Offsets, eine Skalierung auf die EDGAR-Quellstärke sowie eine Anpassung der Varianz der Felder durchgeführt. Mittels der Korrelations-Fehleranalyse werden die Fehler der Verteilungsmuster der so erzeugten Quellfelder bestimmt, auf deren Basis diese Felder dann zu einem optimierten Emissionsfeld kombiniert werden.

Kapitel 1

Satellitenfelder

Zur Abschätzung der troposphärischen NO_2 -Verteilung und der anthropogenen NO_x -Emissionen werden in dieser Arbeit neben Modellrechnungen zweierlei Satellitenmessungen verwendet.

Die erste herangezogene Datenquelle ist das GOME-Instrument (*Global Ozone Monitoring Experiment*), mit dem erstmals kontinuierlich Messungen verschiedener troposphärischer Spurengase über mehrere Jahre und in globaler Abdeckung vom Satelliten aus durchgeführt werden konnten. Im Unterkapitel 1.1 werden das Instrument und die Auswertungen verschiedener Arbeitsgruppen vorgestellt.

Als weitere und davon unabhängige Datenquelle werden speziell zur Abschätzung anthropogener NO_x -Emissionen Satellitenaufnahmen der Lichter der Welt bei Nacht des OLS-Instruments (Operational Linescan System) als Proxy herangezogen. Dieses Instrument und die verwendeten Daten werden im Unterkapitel 1.2 beschrieben.

1.1 GOME: Troposphärische NO_2 -Säulen

1.1.1 Das Instrument

Das GOME-Instrument [5] befindet sich auf dem zweiten europäischen Fernerkundungssatelliten ERS-2, der am 21. April 1995 gestartet wurde. Dieser Satellit kreist in einer sonnensynchronen polaren Umlaufbahn, die den Äquator stets um 10:30 lokaler Zeit passiert, und er erreicht nach drei Tagen globale Abdeckung.

Das Instrument selbst besteht aus vier Spektrometern mit jeweils 1024 Kanälen im UV- und sichtbaren Bereich. Es misst in Nadir-Geometrie, das heißt, es schaut senkrecht herunter zur Erdoberfläche und nimmt Absorptionsspektren des von der Erdoberfläche und allen darüber liegenden Luftschichten reflektierten Lichts auf, siehe Abbildung 1.1. Mit Hilfe eines Scan-Spiegels werden jeweils drei Pixel senkrecht zur Flugrichtung aufgenommen, gefolgt von einem Rückwärts-Scan. Die Größe eines Bodenpixels beträgt $320 \text{ km} \times 40 \text{ km}$, für den Rückwärts-Scan entsprechend $960 \text{ km} \times 40 \text{ km}$. Durch die Vorwärtsbewegung des Satelliten überstreicht der Rückwärts-Scan etwa die Hälfte der Fläche der drei Vorwärts-

Scans. Zusätzlich werden in drei Spektralbändern mit höherer räumlicher, aber geringerer spektraler Auflösung integrierte Intensitäten gemessen. Diese können zur Bestimmung des Wolkenbedeckungsgrades und der Bodenalbedo herangezogen werden.

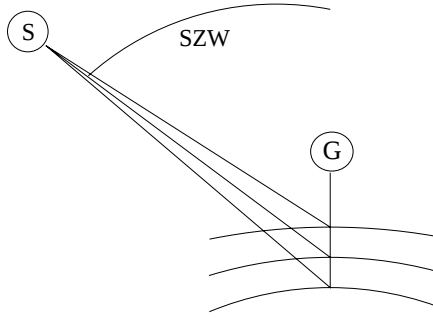


Abbildung 1.1: GOME-Beobachtungsgeometrie (Nadir-Geometrie), SZW: Sonnenzenithwinkel

Wie der Name sagt, ist die ursprüngliche Aufgabe von GOME die Bestimmung des globalen stratosphärischen Ozonfelds. Die Breite des spektralen Bereichs und die spektrale Auflösung erlauben jedoch darüber hinaus die Auswertung für andere absorbierende Spurengase, insbesondere auch in der Troposphäre. In dieser Arbeit werden troposphärische NO_2 -Säulendichten von GOME verwendet. Bei der Interpretation dieser Felder muss wegen des Tagesgangs der Stickoxidkonzentrationen der Messzeitpunkt von jeweils 10:30 Lokalzeit berücksichtigt werden.

Für die NO_2 -Säulendichten von GOME gibt es Auswertungen von verschiedenen Arbeitsgruppen, welche im Abschnitt 1.1.3 vorgestellt werden. Die grundlegenden Auswertungsschritte sind bei allen Gruppen dieselben und werden im Abschnitt 1.1.2 erläutert, es werden jedoch von den Gruppen teilweise unterschiedliche Annahmen gemacht. Diese Unterschiede werden in Tabelle 1.1 zusammengefasst.

1.1.2 Auswertungsschritte

Berechnung schiefer Säulendichten

Zunächst muss die gesamte NO_2 -Säule entlang des Lichtweges bestimmt werden. Dies geschieht unter Benutzung der DOAS-Methode (*differential optical absorption spectroscopy*) [31], die im Wesentlichen auf dem Gesetz von Lambert-Beer beruht:

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) e^{-\sum_i \sigma_i(\lambda) \int c_i(l) dl} A(\lambda),$$

worin λ die Wellenlänge, $I(\lambda)$ die gemessene Intensität, $I_0(\lambda)$ die Ursprungsintensität außerhalb der Erdatmosphäre und $A(\lambda)$ einen Abschwächungsfaktor aufgrund von Rayleigh- und Mie-Streuung in der Atmosphäre darstellen. Die Summe im Exponenten läuft über alle vorhandenen Spurengase, σ_i ist der jeweilige Absorptionsquerschnitt, l der Lichtweg und die c_i sind die unbekannten Konzentrationen der Spurengase. Deren Integral entlang des Lichtweges ergibt die gesuchten schiefen Säulendichten (*slant column densities*).

Die Gleichung ist leider nicht direkt lösbar, da bei Satellitenmessungen weder die Ursprungsintensität $I_0(\lambda)$ noch der Abschwächungsfaktor $A(\lambda)$ genau bekannt sind. Beide Größen ändern sich jedoch nur langsam mit der Wellenlänge. Die Absorptionsquerschnitte der Spurengase sind durch Labormessungen genau bekannt und können in einen niederfrequenten und einen hochfrequenten Teil bezüglich λ

zerlegt werden. Nach Logarithmieren der Gleichung können daher die niederfrequenten Größen zusammengefasst, durch ein Polynom modelliert und subtrahiert werden, aus dem hochfrequenten Anteil können dann die SCD berechnet werden.

Der Lichtweg geht durch die gesamte Atmosphäre, enthält also sowohl Troposphäre wie auch Stratosphäre. Das Sonnenlicht kann an der Erdoberfläche reflektiert oder auch in jeder beliebigen Höhe gestreut worden sein, siehe Abbildung 1.1, unter Umständen kann auch Mehrfachstreuung an Wolken oder Aerosolen aufgetreten sein. Außerdem steht der Lichtweg in der Regel nicht senkrecht auf der Erdoberfläche, sondern hängt von der Beobachtungsgeometrie, dass heißt vom Sonnenzenithwinkel und vom Scanwinkel, ab.

Bei diesem Schritt wird von allen Gruppen noch eine empirische Korrektur vorgenommen, weil sich die Polarisationsabhängigkeit des Instruments mit der Zeit langsam ändert. Da täglich einmal das direkte Sonnenspektrum aufgenommen wird, könnte dieses im Prinzip als Hintergrundspektrum benutzt werden, um die Drift zu minimieren. Durch eine leichte Änderung des Einfallswinkels des Lichts auf der Streuplatte des Instruments im Laufe eines Jahres würde dies jedoch zu Residuen führen, die mit der Auswertung der Spektren interferieren. Deshalb wird zur Korrektur das extraterrestrische Sonnenspektrum vom 28. Februar 1997 benutzt, was die Residuen für das Jahr 1997 minimiert; aus Konsistenzgründen wird das Spektrum auch für die anderen Jahre verwendet.

Trennung von Troposphäre und Stratosphäre

Von den schiefen Säulen muss der stratosphärische Anteil subtrahiert werden. Informationen über den letzteren Teil kommen entweder aus Stratosphäre-Modellen oder aus den Messungen des Satelliten in Gebieten fern der vermuteten Quellen in Kombination mit Homogenitätsannahmen oder aus einer Kombination aus diesen Möglichkeiten.

Berechnung vertikaler Säulendichten

Schließlich müssen die schiefen Säulendichten noch in vertikale Säulendichten umgerechnet werden. Dies geschieht durch Anwendung des so genannten *Air Mass Factor* (AMF). Dieser ist definiert als das Verhältnis von schiefen zu vertikalen Säulen. Der AMF hängt zum einen von der sehr genau bekannten Beobachtungsgeometrie – also von Sonnenzenithwinkel und Scanwinkel – ab, zum anderen aber auch von der Wellenlänge, dem Höhenprofil der absorbierenden Spurengase, der Bodenalbedo, dem Wolkenbedeckungsgrad, der Höhe der Wolken, sowie der Art und dem Höhenprofil der vorhandenen Aerosole. Hier unterscheiden sich die Auswertungen in den verwendeten Algorithmen, sowie dem Hinzuziehen weiterer Satelliten- und Modellinformationen.

Bis auf einen höher aufgelösten Datensatz wurden alle senkrechten Säulen auf ein räumliches Gitter von $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ bzw. $0.4^\circ \times 0.5^\circ$ interpoliert, zeitlich als Monats- bzw. Jahresmittelwerte. Dazu wurde eine Überlagerung mehrerer Umläufe der schräg zu diesem Gitter liegenden ursprünglichen Bodenpixel gebildet. Da die Bodenpixel mit 320 km Länge länger sind als die endgültige Auflösung

(1° Breite ≈ 100 km), sind benachbarte Gitterpunkte der senkrechten Säulen in der Auflösung $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ nicht völlig unabhängig.

1.1.3 Auswertungen verschiedener Arbeitsgruppen

IUP Universität Heidelberg: Leue et al. (2001)

Die erste Veröffentlichung (2001) von GOME-Messungen troposphärischer NO_2 -Säulendichten stammt von der Satellitengruppe am Institut für Umweltphysik der Universität Heidelberg von Leue et al. [24], der Datensatz umfasst monatliche Mittelwerte der Jahre 1996 bis 2001.

Die Bestimmung des stratosphärischen Anteils der Säulen wurde im Leue-Datensatz mit Hilfe eines Bildverarbeitungsverfahrens durchgeführt. Hierbei werden folgende Punkte ausgenutzt, bzw. Annahmen gemacht:

- Die stratosphärische Säule variiert auf einer viel größeren räumlichen Skala als die troposphärische Säule, da in der Stratosphäre die Lebensdauer größer und die horizontale Durchmischung schneller ist, während die stärksten Quellen in der Troposphäre kleinskalig verteilt sind.
- Aufgrund des Zusammenwirkens von Windsystemen und Sonneneinstrahlung ist die Längenabhängigkeit in der Stratosphäre weniger stark ausgeprägt als die Breitenabhängigkeit.
- Da der Großteil der troposphärischen NO_x -Emissionen über Land stattfindet, werden die Säulen über den Ozeanen durch ihren stratosphärischen Anteil dominiert.
- Da Wolken den unter ihnen liegenden Anteil der Säulen abschirmen, werden auch die Säulen in bewölkten Pixeln durch ihren stratosphärischen Anteil dominiert.

Zur Abschätzung des stratosphärischen Hintergrunds wurden daher im Leue-Datensatz die Säulen über den Ozeanen mit einem Mindestabstand von 200 km von den Küsten und mit einem Wolkenbedeckungsgrad von mindestens 50% ausgewählt. Über die wolkenfreien Ozeanpixel und über die Kontinente wurde mit Hilfe eines Bildverarbeitungsverfahrens interpoliert. Dabei wurde ein Filter verwendet, der die unterschiedliche Längen- und Breitenabhängigkeit der stratosphärischen Säulen berücksichtigt (Normierte Faltung, [21]).

Das Höhenprofil von NO_2 zur Berechnung des AMS wurde im Leue-Datensatz als räumlich konstant angenommen; die Bodenalbedo wurde mit Hilfe der Messungen der integrierten Intensitäten von GOME bestimmt und auf Literaturwerte skaliert. Außer zur Abschätzung der Stratosphäre wurden Wolken nicht berücksichtigt, zur Kompensation ihres abschirmenden Effekts wurde jedoch global mit einem Faktor vier multipliziert; Aerosole wurden nicht berücksichtigt.

In dieser Auswertung wurden mit Hilfe der NO_2 -Säulendichten auch die NO_x -Emissionen abgeschätzt. Dazu wurde eine globale Lebensdauer von 27 Stunden

Datensatz	Zeitraum und zeitliche Auflösung	strato-sphärische Säule	Wolkenbedeckungsgrad	Strahlungs-Transport-Modell	Bodenalbedo	Aerosol	troposphärisches Höhenprofil
IUP Heidelberg Leue et al. [24]	1996 – 2001, Monatsmittelwerte	Bildverarbeitung	alle Pixel	—	GOME integrierte Intensitäten	—	räumlich konstant
RIVM Bilthoven Velders et al. [40]	1997, Monatsmittelwerte	Bildverarbeitung	alle Pixel	AMFTRAN GOME-TRAN	GOME + Algorithmus	maritim	räumlich konstant
IUP Bremen Version 1, Richter & Burrows [34]	1996 – 2001, Monatsmittelwerte	Referenzsektor	< 10%	GOMETRAN	GOME + Algorithmus	maritim	räumlich konstant
IUP Bremen Version 1b Nüß et al. [27]	1997, Monatsmittelwerte	Referenzsektor, SLIMCAT	< 10%	GOMETRAN	GOME + Algorithmus	maritim	MOZART 2 TOMCAT IMAGES
Harvard Martin et al. [26]	9/1996 – 8/1997, Monatsmittelwerte	Referenzsektor	< 40%	LIDORT	GOME + Algorithmus	GOCART	GEOS-CHEM
KNMI, De Bilt Boersma et al. [4]	1997, Monatsmittelwerte	Datenassimilation	< 15%	DAK	GOME + TOMS + Algorithmus	TM3	TM3
IUP Heidelberg schmale Pixel Beirle et al. [1]	7/1997 – 12/2001, Mittelwert	Referenzsektor, schräg	alle Pixel	—	—	—	räumlich konstant

Tabelle 1.1: Hauptunterschiede zwischen den verschiedenen GOME-Auswertungen

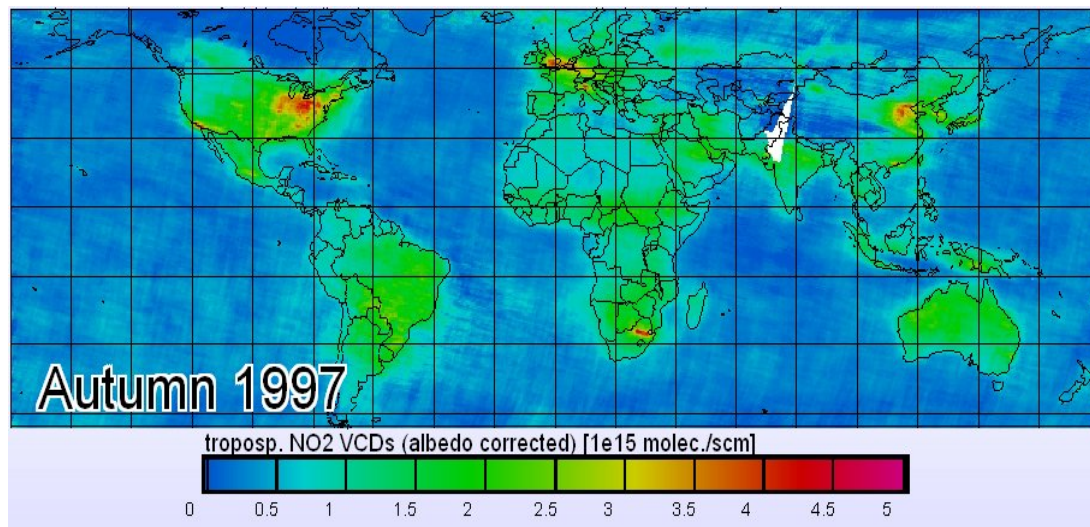


Abbildung 1.2: Troposphärische vertikale NO₂-Säulendichten, Herbst 1997 (IUP Heidelberg [44])

angenommen. Der NO-Anteil im NO_x wurde aus dem photochemischen Gleichgewichtszustand mit Ozon abgeschätzt.

RIVM, Bilthoven: Velders et al. (2001)

Velders et al. verglichen für das Jahr 1997 erstmals GOME-Messungen mit globalen 3-D Modellrechnungen. Dafür benutzten sie eine GOME-Auswertung von der Satellitengruppe am IUP Heidelberg, in der ähnliche Annahmen gemacht worden waren wie von Leue et al. [24]; die Bestimmung der Bodenalbedo wurde jedoch wie von der Satellitengruppe am IUP Bremen [34] durchgeführt.

IUP Universität Bremen: Version 1 (2002)

Diese Auswertung stammt von von Richter & Burrows vom Institut für Umweltphysik an der Universität Bremen [34]. Sie umfasst ebenfalls die Jahre 1996 bis 2001.

Die Trennung von troposphärischem und stratosphärischem Anteil der NO₂-Säulen wurde in diesem Fall mit der Referenzsektor-Methode durchgeführt. Dieser Methode liegen zwei Annahmen zugrunde:

- keine Längenabhängigkeit der stratosphärischen NO₂-Schicht,
- vernachlässigbare troposphärische NO₂-Säulen im Referenzsektor.

Der Referenzsektor wurde in dieser Auswertung über dem Pazifik zwischen 180° und 190° Länge gewählt in einer Region, deren extreme Sauberkeit durch Messkampagnen bestätigt ist. Die erste Annahme wurde in nicht ganz so strenger Form auch bei der Bildverarbeitungs-Methode der Satellitengruppe am IUP Heidelberg

getroffen, siehe oben. Am Rand des Polarwirbels wird sie verletzt, was dort zu Artefakten führen kann.

Die *Air Mass Factors* wurden mit dem Strahlungs-Transport-Modell GOMETRAN [35] berechnet. Dabei wurde für das NO₂-Höhenprofil ein konstantes Mischungsverhältnis in den unteren eineinhalb Kilometern angenommen.

Die Bodenalbedo-Korrektur wurde mit kalibrierten GOME-Strahlungsintensitäten im Wellenlängenfenster des NO₂-Fits durchgeführt. Das Minimum dieser Intensitäten über mehrere Monate liefert eine Näherung für die Reflektivität der Erde unter wolkenfreien Bedingungen. Von diesem Wert wird noch, wiederum unter Benutzung des Modells GOMETRAN, der Beitrag der Atmosphäre subtrahiert.

Da der Einfluss von Wolken auf die GOME-Messungen ziemlich komplex sein kann (im allgemeinen Abschwächung, aber je nach Wolkenparametern durch extreme Verlängerung des Lichtweges bei Mehrfachstreuung auch Verstärkung möglich), wurden in dieser Analyse nur Pixel mit einem Wolkenbedeckungsgrad von weniger als zehn Prozent berücksichtigt. Der Nachteil dieses Vorgehens ist, dass weniger Messwerte in die Mittelwertbildung eingehen, und unter Umständen für einige Pixel keine Messwerte vorliegen.

Die Aerosol-Abhängigkeit des AMF wurde ebenfalls mit GOMETRAN bestimmt, dabei wurde ein maritimes Aerosol angenommen.

IUP Universität Bremen: Version 1b (2003/2004)

Die Auswertung 1b [27] wurde für das Jahr 1997 durchgeführt, das Jahr, in dem die empirische Korrektur für die Streuplatte optimal ist, siehe oben. Im Unterschied zur Version 1 wurden in Version 1b die stratosphärischen Säulen mit Hilfe einer Kombination aus der Referenzsektor-Methode und dem Stratosphärenmodell SLIMCAT [7], das die stratosphärische Variabilität liefert, bestimmt. Außerdem wurden hier die NO₂-Höhenprofile zur Berechnung der AMF mit dem globalen Chemie-Transport-Modell MOZART [16] bestimmt. In weiteren Bremer Auswertungen [27], [36] wurden zu diesem Zweck auch die globalen Chemie-Transport-Modelle TOMCAT und IMAGES [19] verwendet.

Harvard-Smithsonian Center for Astrophysics (2003)

Anders als in den anderen Auswertungen wurde von Martin et al. [26] bereits die Berechnung der schiefen Säulen nicht mit der DOAS-Methode durchgeführt: Sie fitteten mittels einer an den Levenberg-Marquardt-Algorithmus angelehnten nichtlinearen χ^2 -Minimierung berechnete Spurengasspektren an die von GOME gemessenen Spektren an. Ausgewertet wurden die Monate September 1996 bis August 1997.

Die Bestimmung des stratosphärischen Anteils der Säulen wurde hier wie von der Satellitengruppe am IUP Bremen mit der Referenzsektor-Methode durchgeführt, der verwendete Sektor liegt über dem zentralen Pazifik.

Die *Air Mass Factors* wurden mit dem Strahlungs-Transport-Modell LIDORT [38] berechnet. Die dafür notwendigen NO₂-Profile stammen aus dem globalen

Chemie–Transport–Modell GEOS-CHEM [3], Albedo- und Wolkeninformation kommen von GOME. In dieser Auswertung wurden mehrkomponentige Aerosole berücksichtigt, die mit dem GOCART–Modell [6] berechnet wurden. Ein Ergebnis war, dass Aerosole je nach ihrer Art den AMF sowohl vergrößern wie auch verkleinern können.

Martin et al. schätzten auch NO_x –Emissionen ab. Lebensdauer und NO –Anteil am NO_x wurden mit Hilfe des Modells GEOS-CHEM bestimmt, indem zur Umrechnung der vom Satelliten gemessenen Säulen in satellitenbasierte Emissionen das lokale Verhältnis von modellierten Säulen zu Modellemissionen benutzt wurde. Dies setzt jedoch voraus, dass neben der Chemie auch der Transport im Modell gut repräsentiert ist.

Während Leue et al. [24] mit Hilfe von GOME ein von den bisherigen Schätzungen unabhängiges Emissionsfeld erzeugen wollten, war der Fokus von Martin et al. ein anderer: Sie wollten die Informationen aus den Modellemissionen und den Satelliten kombinieren. Deshalb bildeten sie an jedem Gitterpunkt einen mit den jeweiligen Fehlern gewichteten Mittelwert aus den satellitenbasierten Emissionen und denen des Standard–Emissionskatasters von GEOS-CHEM. Die Fehler des Satellitenfelds schätzten sie aus den Auswertungsunsicherheiten ab, die Fehler des Emissionskatasters aus den Unterschieden zum Emissionskataster EDGAR 3 [28].

KNMI, De Bilt (2004)

Ausgangspunkt für Boersma et al. [4] waren die schrägen Säulen des Jahres 1997 vom IUP Heidelberg [24], es wurde jedoch eine Temperaturkorrektur vorgenommen, da in jener Auswertung für die Spektren eine konstante Temperatur des NO_2 in der gesamten Atmosphäre angenommen worden war.

Die Bestimmung des stratosphärischen Säulenanteils wurde mittels Datenassimilation von GOME–Messungen in das Modell TM3 [8] vorgenommen. Dabei wird der Modell–Lauf bei angenommenen Modell- und Messfehlern so in Richtung der Beobachtungen gezwungen, dass die Fehler des Ergebnisses minimal sind. Die Vorteile dieses numerisch aufwändigen Verfahrens sind, dass die Stratosphärenmessungen von GOME auch in ihrer Dynamik berücksichtigt werden und dass als Nebenprodukt eine Fehlerschätzung für die stratosphärischen Säulen abfällt.

Die *Air Mass Factors* wurden mit dem Strahlungs–Transport–Modell DAK [13] berechnet. Das Höhenprofil des troposphärischen NO_2 wie auch die Aerosole wurden direkt aus dem TM3–Modell übernommen. Wolkenbedeckungsgrad und Wolkenhöhen wurden nach dem FRESCO–Algorithmus mittels des O_2 –A Bandes berechnet, die Bestimmung der Bodenalbedo basiert neben GOME– auch auf TOMS–Daten.

Im Strahlungs–Transport–Modell werden vier Aerosol–Typen mit ihren unterschiedlichen mikrophysikalischen Eigenschaften berücksichtigt: städtisches Aerosol aus Verbrennungsprozessen fossiler Brennstoffe, Aerosol aus Biomasseverbrennung, Wüstensand und maritime Aerosole; ebenfalls berücksichtigt wurde die Wechselwirkung der Aerosole mit den Wolken. Im Unterschied zu Martin et

al. [26] wurde in dieser Auswertung für alle Aerosoltypen eine Vergrößerung des AMF festgestellt.

Boersma et al. [4] lieferten auch eine detaillierte und räumlich aufgelöste Fehleranalyse aller Auswertungsschritte.

IUP Universität Heidelberg: Beirle et al. (2004)

Von Beirle et al. [1] wurde ein weiterer Modus des GOME-Instruments ausgenutzt. Seit Juli 1997 führt GOME an drei Tagen im Monat (am 4., 14. und 24. Tag jedes Monats) Messungen mit erhöhter räumlicher Auflösung durch. Die Größe der Bodenpixel beträgt in diesem Modus beim Vorwärts-Scan $80 \text{ km} \times 40 \text{ km}$ und beim Rückwärts-Scan $240 \text{ km} \times 40 \text{ km}$. Damit können einzelne Städte deutlich besser aufgelöst werden.

Die höhere räumliche Auflösung wird mit geringerer globaler Abdeckung erkauft (alle zwölf statt alle drei Tage). Da GOME diesen Modus nur alle zehn Tage ausgeführt, wird eine globale Abdeckung statistisch alle 120 Tage erreicht. Insbesondere in Gebieten, in denen die Quellen eine deutliche saisonale Abhängigkeit aufweisen (Biomasseverbrennung), führt dies zu Artefakten. Dieser Effekt wird mit Hilfe des normalen Modus korrigiert: Da der Rückwärts-Scan der schmalen Pixel etwa die Größe eines Vorwärts-Scans im normalen Modus hat, kann der jahreszeitliche Offset bestimmt und kompensiert werden.

Die Trennung von troposphärischen und stratosphärischen Säulendichten wurde in dieser Auswertung mit der Referenzsektor-Methode durchgeführt. Anders als von der Satellitengruppe am IUP Bremen [34] wurde der Referenzsektor hier nicht entlang eines Längengrades über den Pazifik gewählt, sondern schräg durch den Pazifik entlang einer Linie, auf der die Satelliteninstrumente LIS/OTD möglichst wenig Gewitter detektieren. Gewitter gelten als die einzige NO_x-Quelle über dem Pazifik.

Um keine externen Modellfehler in die Analyse zu bringen, wurden in dieser Auswertung das NO₂-Höhenprofil wie auch die Bodenalbedo als räumlich konstant angenommen und der Einfluss von Wolken wie von Aerosolen vernachlässigt. Der Beirle-Datensatz der schmalen Pixel liegt als Mittelwert des Zeitraums von Mitte 1997 bis 2001 vor.

Die Hauptunterschiede der GOME-Auswertungen sind in Tabelle 1.1 zusammengefasst.

1.1.4 Auswahl der verwendeten Datensätze

Unbestreitbar verbessert die Verwendung von Modellrechnungen zur Abschätzung der stratosphärischen Säule, des troposphärischen Höhenprofils sowie der vorhandenen Aerosole die GOME-Auswertungen. Es lässt sich jedoch nicht mehr klar nachvollziehen, wie hoch der Beobachtungs- und wie hoch der Modellanteil an den so gewonnenen Säulendichten ist. Die Daten enthalten zwar geringere Fehler, die aber zum Teil Modellfehler sein können.

Um der Gefahr zu entgehen, Modellemissionen mit gewissen Annahmen an Satellitendaten anzupassen, die unter Verwendung eben dieser Annahmen gewonnen worden sind (selbstkonsistent, aber nicht unbedingt realitätsnah), sollen in dieser Arbeit nur Datensätze verwendet werden, die ohne Verwendung von Modellen erstellt worden sind. Damit bleiben die Auswertungen von Leue et al., die von Velders et al. untersuchte, von Beirle et al. sowie die Version 1 vom IUP Bremen übrig.

Die Annahmen in dem von Velders et al. untersuchten Datensatz sind teilweise identisch mit denen von Leue et al. und teilweise mit denen von Richter & Burrows in der Version 1 vom IUP Bremen, daher ist zu erwarten, dass dieser Datensatz den anderen beiden sehr ähnlich ist. Da in dieser Arbeit eine möglichst große Unabhängigkeit der verwendeten Datensätze von Vorteil ist, wurde die Velders-Auswertung in diese Arbeit nicht mit einbezogen.

Der Hauptvorteil der Auswertung von Beirle et al. ist die höhere räumliche Auflösung, die fast so hoch ist wie die des SCIAMACHY-Instruments auf ENVISAT. Insbesondere der Vergleich mit Daten dieses Instruments wird, wenn sie in globaler Abdeckung vorliegen, hochinteressant sein. Da diese Arbeit jedoch auch Modellrechnungen des globalen Chemie-Transport-Modells MOZART 2 [16] in der Auflösung T63 ($\approx 1.88^\circ \times 1.88^\circ$, also deutlich niedriger als die GOME-Felder im Standard-Modus) beinhaltet, entfällt der Vorteil der schmalen Pixel. Es bleibt der Nachteil einer dünneren Datenbasis aufgrund der geringeren zeitlichen Abdeckung.

In dieser Arbeit werden daher die Auswertungen von Leue et al. vom IUP Heidelberg und von Richter & Burrows (Version 1) vom IUP Bremen verwendet. Sie decken den gleichen Beobachtungszeitraum ab und liegen in der gleichen räumlichen Auflösung vor. Die Datensätze aus Harvard und vom KNMI werden zum Zweck einer Plausibilitätsprüfung herangezogen werden.

1.2 OLS: Lichter der Welt bei Nacht

1.2.1 Das Instrument

Im Rahmen des Defense Meteorological Satellite Program (DMSP) der US Luftwaffe sind seit 1976 jeweils zwei Operational Linescan System (OLS) Sensoren [10] aktiv, ein Tag/Nacht- sowie ein Morgen/Abend-Satellit; digital archiviert werden die Daten jedoch erst seit 1992 (NOAA National Geophysical Data Center). Das OLS-Programm soll noch bis mindestens 2010 fortgesetzt werden.

Der ursprüngliche Zweck dieser Sensoren war die Wolkenerkennung; daher besteht OLS aus zwei breitbandigen Detektoren, einem im Bereich des thermischen Infrarots sowie einem im Sichtbaren und im nahen Infrarot. Zur Erkennung von vom Mondlicht bestrahlten Wolken wird das sichtbare Band nachts mit einem Photomultiplier verstärkt. Durch die Verstärkung können noch Strahlungsintensitäten gemessen werden, die fünf Größenordnungen kleiner sind als im OLS-Tagesmodus oder bei vergleichbaren Satelliten wie NOAA AVHRR oder Landsat.

Die Nachtüberflüge finden typischerweise zwischen 20:30 und 21:30 lokaler Zeit statt, bei 14 Orbits pro Tag wird eine globale Abdeckung durch Nachtflüge alle 24 Stunden erreicht. Gemessen werden kann in zwei räumlichen Auflösungen: Im feinen Modus beträgt die Größe eines Bodenpixels $0.5 \text{ km} \times 0.5 \text{ km}$, im geglätteten Modus $2.7 \text{ km} \times 2.7 \text{ km}$.

1.2.2 Auswertungsschritte

Elvidge et al. [12] waren nicht an Wolken, sondern an von der Erdoberfläche emittierten Lichtern interessiert. Zu deren Gewinnung benutzten sie 984 Orbits aus dem nordhemisphärischen Winterhalbjahr von Oktober 1994 bis April 1995 während der dunkleren Hälfte des Mondzyklus. Es wurde sichergestellt, dass für die große Mehrheit aller Pixel wenigstens 20 wolkenfreie Beobachtungen vorlagen. Die Auswertung umfasst folgende Schritte:

- Erkennung von Wolkenpixeln mittels der thermischen Infrarotdaten,
- Erkennung von beleuchteten Pixeln relativ zum lokalen Hintergrund (die 100×100 umgebenden Pixel dienen zur Bestimmung der lokalen Schwelle der Lichtdetektion),
- Geolokalisierung der Daten,
- Bestimmung der Gesamtzahl der wolkenfreien Beobachtungen an jedem Pixel,
- Bestimmung der Zahl der wolkenfreien Lichtbeobachtungen an jedem Pixel,
- Eliminierung aller weniger als dreimal aufgetretenen Lichtbeobachtungen als Rauschen (ionosphärisches Rauschen, Aurora, Spiegelungen von Sonnenlicht auf der Satellitenplattform, etc.),
- Editieren der verbleibenden Punkte am Bildschirm (manuell): Je nach Häufigkeit ihres Auftretens und geographischer Lage werden die Lichter in Feuer, Erdgasabfackelungen, Fischerboote und menschliche Siedlungen unterteilt.

Das Ergebnis dieser Auswertung von Elvidge et al. ist in Abbildung 1.3 zusammengefasst, die ursprüngliche Auflösung dieses Datensatzes beträgt $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$.

Der OLS-Detektor für den sichtbaren Bereich ist, wie oben erläutert, im Nachtmodus so eingestellt, dass auch sehr schwache Lichter noch detektiert werden können. Dies führt dazu, dass das sichtbare Band bei mittelgroßen Städten oder Erdgasabfackelungen bereits in Sättigung geht. Das Datenprodukt enthält daher keine Beleuchtungsstärken, sondern die Häufigkeit einer Lichtbeobachtung an einem bestimmten Ort.

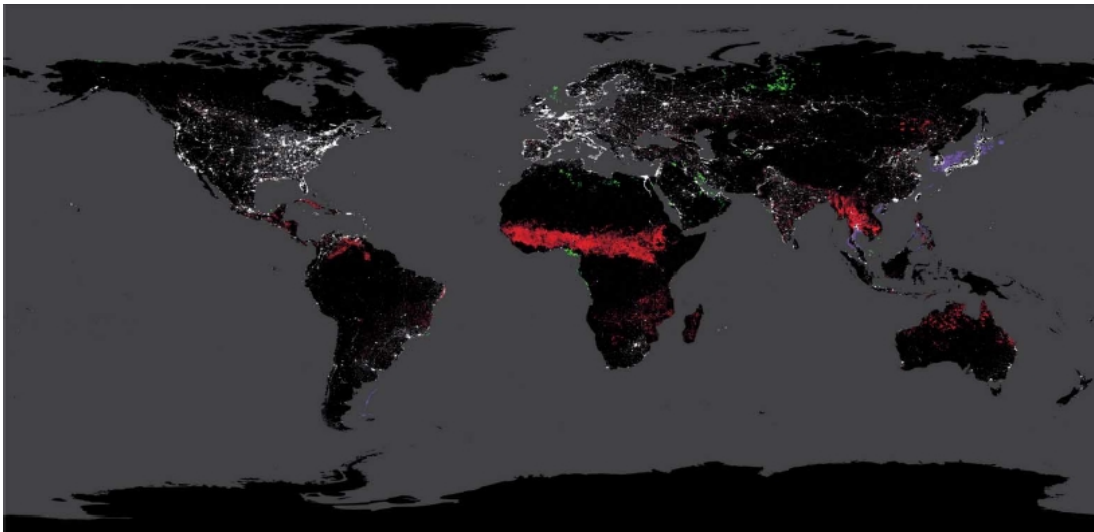


Abbildung 1.3: DMSP-OLS: Lichter der Welt bei Nacht, weiß: menschliche Siedlungen, rot: Feuer, grün: Erdgas-Abfackelungen, violett: beleuchtete Fischerboote (Elvidge et al.[12])

1.2.3 Datenprodukt: menschliche Siedlungen

Die meisten Städte werden in 90% – 100% aller Beobachtungen detektiert, einige sehr kleine Orte jedoch nur in 10% – 20% aller Fälle.

Für Colorado haben Elvidge et al. untersucht, wie groß ein Ort sein muss, um sicher entdeckt zu werden: Es wurden alle Orte mit mehr als 200 Einwohnern erkannt, und neun Dörfer mit einer Einwohnerzahl zwischen 100 und 200. Elvidge et al. vermuten, dass diese Grenze in weniger entwickelten Gegenden niedriger ist, da dort die Helligkeitsschwelle des Hintergrunds, relativ zu der ein Licht als solches erkannt wird, niedriger liegt.

Beleuchtete Flächen und menschliche Aktivitäten

Doll et al. [9] untersuchten Zusammenhänge zwischen den beleuchteten Flächen der menschlichen Siedlungen und sozioökonomischen Parametern wie Bevölkerungsdichte, Bruttoinlandprodukt, Verbrauch an elektrischer Energie und CO₂-Emissionen auf Länderbasis, und sie fanden jeweils hohe Korrelationen: Für den Zusammenhang zwischen beleuchteten Flächen und CO₂-Emissionen in 46 Länder beträgt der Korrelationskoeffizient $R = 0.89$.

In dieser Arbeit sollen die Lichter als Proxy für anthropogene NO_x-Emissionen verwendet werden. Dies wird in Abschnitt 2.3 genauer beschrieben.

Kapitel 2

Modell

2.1 MOZART

MOZART (*Model for OZone And Related chemical Tracers*) ist ein globales dreidimensionales Chemie-Transport-Modell, das gemeinsam am National Center of Atmospheric Research (NCAR) in Boulder, Colorado, am General Fluid Dynamics Laboratory (GFDL) in Princeton, New Jersey und am Max Planck Institut für Meteorologie in Hamburg entwickelt wird. Die aktuelle Version 2 ist veröffentlicht [16] und als Community-Modell für Produktionsläufe freigegeben.

2.1.1 Beschreibung

Das Modell MOZART-2 wurde mit einem Präprozessor entwickelt, der aus einer Reihe von Eingabeparametern Fortran-90 Quellcode generiert. Die horizontale und vertikale Auflösung, die berücksichtigten chemischen Spezies und die zugehörigen Reaktionsgleichungen, die verwendeten Emissionen und meteorologischen Parameter sowie die gewünschten Ausgabevariablen können so flexibel festgelegt werden.

Für diese Arbeit wurden Modellrechnungen in der horizontalen Auflösung T63 ($\approx 1.87^\circ\text{lon} \times 1.89^\circ\text{lat}$) mit 31 hybriden σ -Levels in der Vertikalen durchgeführt. Diese Vertikalkoordinate passt sich von der Erdoberfläche (*Level* 31) bis *Level* 5 (≈ 90 hPa) der Orographie des Bodens an (so wird vermieden, dass die Koordinate die Oberfläche schneidet), von *Level* 4 an aufwärts (Stratosphäre) ist es eine reine Druck-Koordinate.

Die Mischungsverhältnisse der Spurengase werden in der räumlichen Auflösung T63 mit einem Zeitschritt von 15 Minuten neu berechnet, was einer Anwendung der Operatoren für Advektion, Diffusion, Bodenemissionen und trockene Deposition, Konvektion sowie feuchte Deposition und Chemie entspricht.

Meteorologie

Die meteorologischen Parameter werden nicht vom MOZART-Modell selbst berechnet, sondern aus entsprechenden Eingabedateien eingelesen (*offline*-Modell,

eine *online*-Kopplung mit dem Allgemeinen Zirkulationsmodell ECHAM zum Chemie-Klima-Modell (*Coupled Global Chemistry Climate Model*, CCM) MOZECH befindet sich in Entwicklung).

In dieser Arbeit wurden als meteorologische Eingabedateien Analysen vom ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecast) für das Jahr 1995 verwendet. Für dieses Jahr liegen auch die EDGAR-Emissionen in Version 3 sowie die Satellitenaufnahmen der Lichter bei Nacht (OLS) vor. Die Satellitenmessungen von GOME beginnen erst ein Jahr später, aber eine wirkliche Konsistenz mit diesen Messungen könnte nur durch eine Modellrechnung über die vollen sechs Jahre erreicht werden. Abgesehen von der dafür erforderlichen Rechenzeit ist dies nicht möglich, da in den Jahren 1999 und 2000 aufgrund von Änderungen des Analyseschemas in den ECMWF-Dateien Sprünge auftreten.

Mit einem Zeitschritt von drei Stunden werden Parameter wie zonaler und meridionaler Wind, Temperatur, spezifische Feuchte, Oberflächendruck und Oberflächenflüsse von Wärme und Impuls aus meteorologische Eingabedateien eingelesen.

Das MOZART-Modell selbst enthält Parametrisierungen der vertikalen Diffusion sowie der hoch reichenden Konvektion. Die Advektion der Spurengase wird mit einem semi-Lagrange'schen Advektionsschema in Flussform durchgeführt, das die Masse der Spurengase erhält und das Aufstellen von Budgets für einzelne Spezies ermöglicht.

Die obere Randbedingung des Modells ist als fester Deckel realisiert, die Vertikalgeschwindigkeiten werden so angepasst, dass sie die Kontinuitätsgleichung erfüllen.

Chemie

MOZART-2 simuliert die Mischungsverhältnisse von 63 chemischen Spurengasen von der Erdoberfläche bis zur unteren Stratosphäre. Der Chemie-Mechanismus umfasst 167 chemische und photochemische Reaktionen; im Unterschied zu MOZART-1 beinhaltet er in Version 2 auch die Oxidation von folgenden nicht-Methan Kohlenwasserstoffen: Ethan, Propan, Ethen, Propen, Isopren, α -Pinene (als Ersatz für die Terpene) und n-Butan (als Ersatz für alle Kohlenwasserstoffe mit vier oder mehr C – Atomen mit Ausnahme von Isopren und den Terpenen).

Die stratosphärischen Konzentrationen langlebiger Spurengase (O_3 , NO_x , HNO_3 und N_2O) relaxieren gegen zonale und monatliche Mittelwerte. Für Ozon sind dies Klimatologien beobachteter Werte, für die anderen Spezies Modellergebnisse eines Stratosphärenmodells. Diese Relaxation findet von der lokal bestimmten thermischen Tropopause (Temperaturabnahme von weniger als 2K/km) bis zur oberen Modellgrenze zu jedem Zeitschritt mit einer Zeitkonstanten von 10 Tagen statt. Die Mischungsverhältnisse von CH_4 und CO sind in den obersten beiden Höhenlevels festgeschrieben.

Trockene und feuchte Deposition

Die Ratenparameter für trockene Deposition werden nicht *online* vom Modell berechnet, sondern es werden *offline* tabellierte Werte aus Dateien eingelesen.

Feuchte Deposition ist als Verlustprozess erster Ordnung im Chemie-Mechanismus repräsentiert, die Verlustraten werden aufgrund der großskaligen konvektiven Niederschlagsraten berechnet. Lösliche Substanzen werden in Wolkentröpfchen gelöst, extrem lösliche Substanzen auch unter Wolken ausgewaschen.

Emissionen

Bodenemissionen beinhalten anthropogene Emissionen aus der Verbrennung fossiler Energieträger und anderer Industrieprozesse, Biomasseverbrennung, biogene Emissionen der Vegetation und der Böden sowie Emissionen der Meere. Die anthropogenen Emissionen wurden mit kleinen Änderungen aus dem Emissionskataster EDGAR 3 [28] (siehe Abschnitt 2.2) übernommen, die biogenen Emissionen entsprechen denen von GEIA [43]. Die erwähnten Änderungen und Jahresgänge sind wie von Horowitz et al. [16] beschrieben.

Bei dem langlebigen Methan wird in den unteren beiden Schichten statt einer Quelle die Konzentration als Randbedingung vorgeschrieben. Für Flugzeugemissionen von NO_x und CO werden die Emissionen höhen- und zeitabhängig vorgegeben.

Blitze sind im MOZART-Modell wie die konvektiven Wolken aus den meteorologischen Eingabedateien verteilt, die Blitzhäufigkeit hängt nach Price et al. [33] von der Höhe der Wolkenobergrenze ab, das Verhältnis der Blitzanzahl von Wolke-zu-Wolke zu Wolke-zu-Boden von der Dicke der kalten Wolken (Strecke von der Höhe bei $T = 0^\circ\text{C}$ bis zur Wolkenobergrenze). Die zugehörige NO_x -Quelle wird mit einem vertikalen „C“-Profil parametrisiert. Die jährliche Gesamtmenge lässt sich vorgeben, Tages- und Jahresgang basieren auf den meteorologischen Eingabedateien.

2.1.2 Evaluierung

Die Modellergebnisse wurden, soweit vorhanden, mit Beobachtungen von Ozonsonden, Flugzeugmessungen und Bodenmessstationen verglichen ([16] und darin angegebene Referenzen).

Das Modell simuliert die beobachteten Ozon-Konzentrationen wie den Jahresgang an den meisten Stationen erfolgreich, in hohen Breiten neigt es an einigen Stellen jedoch dazu, das Ozon im Tropopausenbereich zu überschätzen.

Die NO_x -Werte werden an fast allen Beobachtungsstellen sehr gut getroffen. In Übereinstimmung mit den Beobachtungen weist das Vertikalprofil von PAN ein Maximum in der mittleren bis oberen Troposphäre auf, das jedoch vom Modell in einigen Regionen in den Tropen und Subtropen überschätzt wird.

Kohlenmonoxid stimmt insbesondere in den Tropen und Subtropen gut mit den Beobachtungen überein, an einigen Stellen in hohen Breiten werden die Konzentrationen vom Modell überschätzt. Die Konzentrationen der Kohlenwasser-

stoffe liegen an den meisten Beobachtungspunkten im Bereich von $\pm 25\%$ der gemessenen Werte.

Die OH-Konzentration stimmt gut überein mit der Schätzung der globalen OH-Verteilung von Spivakovsky et al. [37].

2.1.3 Rechenzeit und Speicherbedarf

In dieser Arbeit werden MOZART-Modellrechnungen mit drei verschiedenen anthropogenen NO_x -Quellen verwendet. Diese Modellrechnungen wurden von Olaf Stein (ICG-II, Forschungszentrum Jülich) auf dem Supercomputer JUMP am Forschungszentrum Jülich durchgeführt.

Das Modell wurde auf 3 Knoten mit jeweils 32 CPUs gerechnet, ein typischer Jahreslauf mit einem halben Jahr Vorlauf zur Vermeidung von *spin up*-Effekten dauerte etwa $11\frac{1}{2}$ Stunden, was insgesamt etwa 1100 CPU-Stunden Rechenzeit entspricht. Die Eingabedateien benötigten etwa 25 Gigabyte Festplattenplatz, der für die Ausgabedateien benötigte Platz hängt von den angeforderten Ausgaben ab, ein typischer Wert sind 30 Gigabyte.

2.2 EDGAR

Als Datenbank für die Emissionen von Spurengasen ist in der globalen Modellierung das EDGAR-Emissionskataster weit verbreitet [42], [28], [29]. Es beinhaltet jährliche Emissionen der wichtigsten Treibhausgase und ihrer Vorläufersubstanzen sowohl auf Regionen bezogen wie auch auf einem Gitter der Auflösung $1^\circ \times 1^\circ$.

2.2.1 Historie der Entwicklung von EDGAR

Im Rahmen von GEIA (Global Emissions Inventory Activity) [43] werden seit 1990 Emissionskataster verschiedener Spurengase zusammengestellt. Dieser Datenbestand enthielt zu Beginn nur einige Spurengase und bezog sich zunächst auf das Jahr 1985, wurde seitdem jedoch stetig erweitert mit dem langfristigen Ziel, alle für die atmosphärische Chemie relevanten Spurengase global in der Auflösung $1^\circ \times 1^\circ$ bereit zu stellen.

Das ursprüngliche Ziel des EDGAR-Projektes (Emission Database for Global Atmospheric Research) war der Aufbau einer Datenbank, die die wichtigsten anthropogenen und die meisten natürlichen Treibhausgasemissionen für das Jahr 1990 enthält und es ermöglicht, diese in begrenztem Umfang in die Vergangenheit zurück- bzw. in die Zukunft vorauszurechnen. Hauptbeteiligte sind das niederländische Institut für Gesundheit und Umwelt RIVM (*Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu*) sowie die niederländische Organisation für angewandte naturwissenschaftliche Forschung TNO (*Nederlandse Organisatie voor Toegepast Natuurwetenschappelijk Onderzoek*).

Um nicht die gleiche Arbeit doppelt zu erledigen, griffen RIVM und TNO zum Teil auf GEIA Datensätze zurück und sind auch an der Weiterentwicklung

von GEIA beteiligt. Es gibt jedoch zusätzlich zur Betrachtung verschiedener Basisjahre einige Unterschiede zu GEIA, die sich aus der Zielsetzung ergeben.

GEIA enthält die jeweils besten in globaler Auflösung verfügbaren Emissionskataster für jede Komponente. Diese sind zum Teil aus nationalen Katastern zusammengesetzt, die ursprünglich unterschiedliche geographische Auflösung besaßen und möglicherweise nicht alle die gleichen Quellkategorien berücksichtigen. Der Grad der Detaillierung ist auch nicht gleich für die verschiedenen Komponenten. EDGAR wurde mit weniger detaillierten nationalen Daten entwickelt; es wurde statt dessen versucht, für alle Komponenten so umfassend und konsistent wie möglich die gleiche Auflösung, das gleiche Bezugsjahr und global gleiche Quellkategorien zu benutzen.

Die EDGAR-Emissionsdaten sind in den Versionen 2.0 [29] und 3.2 [28] im Internet [42] abrufbar. EDGAR 2.0 liefert eine Abschätzung der globalen Emissionen der Treibhausgase CO_2 , CH_4 und N_2O , sowie der Vorläufersubstanzen CO , NO_x , Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe und SO_2 für das Jahr 1990.

Hauptziel für die Erweiterung auf EDGAR 3.2 war die Ausweitung auf das Jahr 1995, sowie für die direkten Treibhausgase auf das Jahr 1970. Version 3.2 beinhaltet auch eine mit den Schätzungen für 1995 und 1970 konsistente neue Version für 1990. Als neue Komponenten kamen fluoridierte und perfluorierte Kohlenwasserstoffe, SF_6 sowie NH_3 hinzu, für die alten Komponenten wurden die Quellkategorien angepasst. Darüberhinaus wurde die Abschätzung der Unsicherheiten verbessert, und für einige Substanzen wurden Jahresgänge angegeben.

2.2.2 Prinzip

Die Abschätzung der anthropogenen Quellen für das EDGAR-Emissionskataster erfolgt in drei Schritten:

- Zunächst werden für alle Regionen Daten über sämtliche wirtschaftlichen Aktivitäten (Aktivitätsdaten) zusammengestellt.
- Diese werden mit Hilfe von Emissionsfaktoren für jedes betrachtete Spurengas in Emissionen umgerechnet.
- Wenn die Aktivitätsdaten noch nicht in orts aufgelöster Form vorliegen, werden sie mit Hilfe von Karten der Bevölkerungsdichte auf ein Gitter von $1^\circ \times 1^\circ$ gebracht.

Die biogenen Emissionen werden gesondert abgeschätzt.

Aktivitätsdaten

Ein großer Teil der Aktivitätsdaten stammt aus Datenbanken der Internationalen Energieagentur, der Vereinten Nationen, der FAO (*Food and Agriculture Organisation*) sowie aus nationalen Statistiken.

Für einige Quellkategorien, wie z. B. Biokraftstoffe oder bestimmte Zwischenprodukte in der industriellen Produktion, liegen jedoch keine offiziellen Daten

vor. Bei Biokraftstoffen wurde auf Werte aus der Literatur zurückgegriffen. Liegen keine Informationen über industrielle Zwischenprodukte vor, so wurde aus den Endprodukten auf die zu ihrer Produktion benötigten Zwischenprodukte geschlossen.

Die obersten Kategorien für die Aktivitätsdaten sind Energieerzeugung und -Verbrauch, Industrieprozesse, Lösungsmittelproduktion und -Gebrauch, Landwirtschaft, Änderung der Landnutzung und Forstwirtschaft sowie der Umgang mit Müll. Diese Kategorien sind zum Teil sehr fein weiter unterteilt.

Insbesondere – aber nicht nur – für Länder, deren Wirtschaft sich in einer Umbruchsituation befindet (z. B. die Länder des ehemaligen Ostblocks), haben sich die angegebenen Aktivitätsdaten für das Jahr 1990 zwischen Erstellung der Version EDGAR 2.0 und 3.2 zum Teil deutlich geändert. Dies macht einen Großteil der Unterschiede zwischen den EDGAR-Versionen 2.0 und 3.2 für dieses Jahr aus.

Emissionsfaktoren

Die einzelnen wirtschaftlichen Aktivitäten werden mit substanzspezifischen Emissionsfaktoren in Quellstärken für die jeweiligen Spurengase umgerechnet. Die meisten Faktoren blieben beim Wechsel von der Version EDGAR 2.0 zu 3.2 unverändert.

Die Emissionsfaktoren für die direkten Treibhausgase wurden an die Richtlinien des IPCC-Berichts [17] für Treibhausgas-Kataster angepasst.

Weitere Änderungen betreffen den Kohleabbau (der Anteil der im Tagebau abgebauten Kohle nahm zu), Kraftwerksemissionen (hier griffen in einigen Ländern Maßnahmen zur Verringerung der Stickoxid- und Schwefeldioxidemissionen), den Verkehrssektor (Zunahme an Fahrzeugen mit geregelter Katalysator), die Reproduktion (andere Gewichtung der Kultivierungsarten) sowie Mülldeponien (Maßnahmen zum Auffangen des entweichenden Methans).

Populationsdichte

In Regionen, in denen die Aktivitätsdaten nicht in räumlicher Auflösung vorliegen, wurden die Emissionen mit Hilfe einer Karte der Bevölkerungsdichte auf das $1^\circ \times 1^\circ$ -Gitter verteilt. Dafür wurde dieselbe Karte wie bei GEIA verwendet.

Damit nicht scharf lokalisierte Emissionen z. B. industriellen Ursprungs auf große Flächen ländlicher Prägung verteilt werden, wurden aus dieser Karte zwei weitere Karten konstruiert, eine für die ländliche und eine für die städtische Bevölkerungsdichte. Entsprechend wurden die Emissionen land- bzw. forstwirtschaftlichen Ursprungs gemäß der ländlichen und die eher stadt-spezifischen Emissionen gemäß der städtischen Bevölkerungsdichte über die Regionen verteilt.

2.2.3 Unsicherheiten

Für die Unsicherheiten der Schätzungen wurde im RIVM-Report ([28], Seite 38) die folgende Klassifizierung verwendet: klein ($\approx 10\%$), mittel ($\approx 50\%$), groß ($\approx$

100%) und sehr groß ($> 100\%$).

Den meisten Aktivitätsdaten wurden kleine Unsicherheiten bescheinigt (Ausnahmen: Biokraftstoffe, Lösungsmittel und Müllbehandlung), die Unsicherheiten bei den Emissionsfaktoren sind größer, meist mittel oder groß. Entsprechend ergeben sich die Unsicherheiten für die daraus berechneten Emissionen.

Für anthropogen emittierte Stickoxide wird eine mittlere Unsicherheit (50%) angegeben, für biogene NO_x-Emissionen eine große Unsicherheit (100%).

2.3 Beleuchtete Flächen als Proxy für anthropogene NO_x-Emissionen

In dieser Arbeit sollen neben den anthropogenen EDGAR Emissionen und als davon unabhängige Schätzung die OLS-Satellitenaufnahmen der menschlichen Siedlungen bei Nacht (siehe Abschnitt 1.2.3, in Abbildung 1.3 weiß kodiert) als Proxy für anthropogene NO_x-Emissionen verwendet werden: Wo viel Licht ist, wohnen viele Menschen, die viel NO_x emittieren. Auch die von Doll et al. [9] gefundene hohe Korrelation zwischen Lichtern und CO₂-Emissionen (siehe Ende Abschnitt 1.2.3) lässt eine große Ähnlichkeit zu den NO_x-Emissionen erwarten.

Da eine auf den Lichtern basierende Quelle in eine MOZART-Modellrechnung mit der Auflösung T63 eingehen soll, muss die hohe Lichter-Auflösung auf T63 verringert werden. Weil erstere ein ganzzahliges Vielfaches von letzterer ist, lässt sich dies durch Aufsummieren der beleuchteten Flächen in einer T63-Box erreichen.

Im thermodynamischen Jargon sind Emissionen und Flächen extensive Größen, das heißt, sie sind proportional zur Systemgröße (verdoppelt sich die Einwohnerzahl einer Stadt, so verdoppeln sich in nullter Näherung die versiegelte Fläche, der Energieverbrauch sowie die Emissionen dieser Stadt). Die Emissionsdateien MOZART sind jedoch auf Flächen bezogene Emissionsraten mit der Einheit Teilchen/cm²/s, also im oben benutzten Jargon intensive Größen, die von der Systemgröße unabhängig sind. Die beleuchteten Flächen der menschlichen Siedlungen innerhalb einer Gitterbox der Auflösung T63 müssen also, gewichtet mit der Häufigkeit ihres Auftretens, aufsummiert und durch die Gesamtfläche dieser Gitterbox dividiert werden.

Schließlich wird die Annahme gemacht, dass die Gesamtemissionen im Emissionskataster EDGAR 3 für das Jahr 1995 gut getroffen worden sind. Das anthropogene Lichterfeld wird also so skaliert, dass das Integral über die Erdoberfläche gleich den gesamten anthropogenen Emissionen von EDGAR ist. Ein Jahresgang wird für die anthropogenen Emissionen nicht angenommen.

Durch die Summierung von über 35000 Pixeln pro Gitterbox wird aus einer ursprünglich diskreten Größe (es können nur Werte von 0 bis 100% angenommen werden, wobei der Maximalwert am häufigsten auftritt) eine quasi kontinuierliche Größe, wie es ein Emissionsfeld auch sein sollte.

Der Korrelationskoeffizient der so konstruierten lichterbasierten NO_x -Quelle mit den anthropogenen Emissionen aus EDGAR 3 1995 beträgt $R = 0.79$. Dies ist einerseits hoch genug, um Vertrauen in die neue Quelle zu gewinnen, und andererseits nicht so hoch, dass man an den Stellen, an denen EDGAR möglicherweise falsch liegt, nichts mehr daraus lernen könnte.

Kapitel 3

Direkter Vergleich der NO₂-Felder

In diesem Kapitel sollen die modellierten und die von GOME gemessenen Jahresmittelwerte der troposphärischen NO₂-Felder direkt miteinander verglichen werden. Vor diesem Vergleich werden sie in ein kompatibles Format gebracht. Schließlich werden andere Vergleiche aus der Literatur kurz vorgestellt.

3.1 NO₂-Felder

Um die NO₂-Felder der Satellitenmessungen und der Modellrechnung miteinander vergleichen zu können, muss die räumliche Auflösung der GOME-Säulen verkleinert werden. Die Ausgabe des MOZART-Modells muss erst in Säulendichten umgerechnet werden und für alle Felder muss ein Jahresmittelwert bestimmt werden.

3.1.1 GOME-Messungen

Die Ergebnisse der GOME-Satellitenauswertungen sind troposphärische NO₂-Säulendichten, der Zeitpunkt des Überflugs und damit der Messung beträgt am Äquator 10:30 Lokalzeit, bis zu den Polen verschiebt sich dieser Zeitpunkt um weniger als eine halbe Stunde.

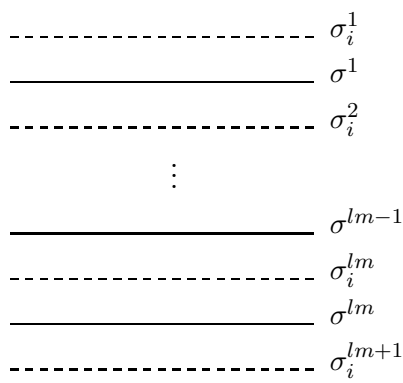
Die beiden in dieser Arbeit gewählten GOME-Auswertungen von Richter & Burrows und von Leue et al. liegen als Monatsmittelwerte über einen Zeitraum von sieben Jahren vor. Da die Auswertung von Richter et al. wegen des verwendeten Wolkenkriteriums Lücken enthält, wurde zunächst für jedes Jahr ein Jahresmittelwert gebildet. Um einen *bias* durch den Jahresgang zu vermeiden, wurde einem Gitterpunkt dabei nur dann ein Wert zugewiesen, wenn der Wert dort in allen Monaten dieses Jahres definiert war. Schließlich wurde ein Mittelwert über die sieben Jahre gebildet, wobei die Lücken zum Teil durch Werte in anderen Jahren gefüllt werden konnten. Dann wurden die GOME-Auswertungen auf die Modellauflösung T63 interpoliert, wobei einem Gitterpunkt wiederum nur

dann ein Wert zugeordnet wurde, wenn mindestens 50% der Fläche des Pixels von Pixeln mit definierten Werten in der ursprünglichen Auflösung bedeckt war.

3.1.2 Modellerte Säulendichten

Vom Modell werden die berechneten Spurengase X als Mischungsverhältnisse $[X]$ ausgegeben, das heißt, es wird das Verhältnis der Anzahl der Spurengasmoleküle zur Anzahl der Luftmoleküle in jeder Gitterbox ausgegeben. Die Mischungsverhältnisse müssen in jeder Schicht l in Säulendichten VCD_X^l (*vertical column densities*) umgewandelt werden, welche dann von der Erdoberfläche bis zur Tropopause summiert werden.

Mischungsverhältnisse – Säulendichten



Die Vertikalkoordinate des MOZART-Modells besteht aus $lm = 31$ hybriden σ -Levels (durchgezogene Linien in Abbildung 3.1), für die die gewünschten Spurengase und meteorologischen Parameter ausgegeben werden. Außerdem beinhaltet die Vertikalkoordinate Zwischenwerte σ_i^l jeweils an den Schnittflächen zweier Schichten (gestrichelte Linien). Für Höhenlevel und Schnittflächen werden jeweils mittlere Druckwerte angegeben.

Abbildung 3.1: Vertikalkoordinaten: Höhenlevel σ^l und Schnittflächen σ_i^l

Für eine Schicht l erfolgt die Umwandlung in Säulendichten VCD_X^l mit der Einheit Teilchen/cm² nach der Beziehung

$$VCD_X^l = [X]^l \Delta z^l \rho^l, \quad (3.1)$$

worin $[X]^l$ das Mischungsverhältnis der Substanz X und ρ^l die Teilchendichte der Luft in Schicht l und Δz^l die Dicke der Schicht l darstellen.

Die mittlere Teilchendichte der Schicht l lässt sich durch den mittleren Druck p^l des Höhenlevels und die vom Modell ausgegebene mittlere Temperatur T^l dieser Schicht ausdrücken:

$$\rho^l = \rho_0 \frac{p^l T_0}{p_0 T^l},$$

mit $p_0 = 1013.25 \text{ hPa}$, $T_0 = 273.15 \text{ K}$ und $\rho_0 = 2.73 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

Die Dicke der betrachteten Schicht wird mittels der hydrostatischen Approximation [15] über die Druckniveaus bestimmt:

$$dz = -\frac{dp}{p} \frac{RT}{Mg} \Rightarrow \Delta z = \frac{RT^l}{Mg} \ln \left(\frac{p_i^{l+1}}{p_i^l} \right),$$

worin $R = 8.3144 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ die allgemeine Gaskonstante, $g = 9.80665 \text{ ms}^{-2}$ die Erdbeschleunigung und $M = 28.9644 \text{ g mol}^{-1}$ die mittlere molare Masse von

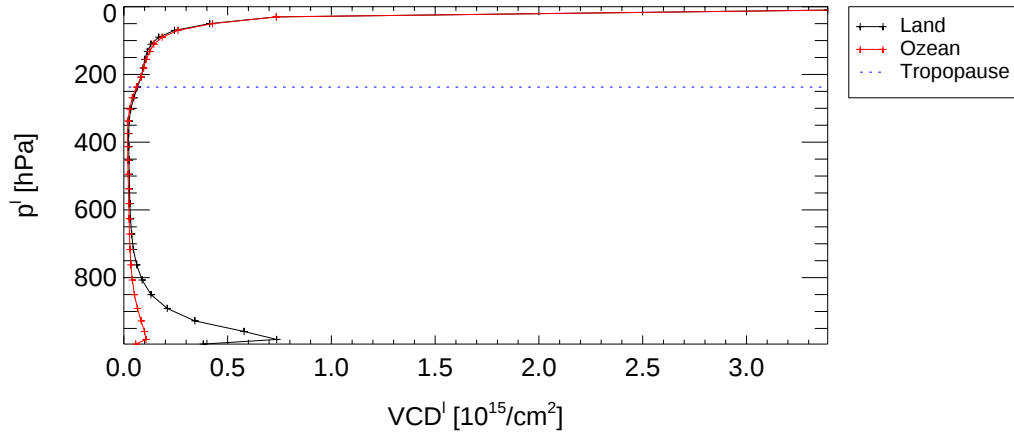


Abbildung 3.2: Beiträge der einzelnen Schichten zu den Säulendichten VCD^l in Abhängigkeit des Druckes, Jahresmittelwerte im Breitenbereich von 45°N bis 55°N , Mittelung getrennt für Land- und Ozeanpunkte über alle Längen- und Breitengrade im betrachteten Bereich

Luft darstellen. p_i^l und p_{i+1}^l sind die mittleren Druckwerte an den Rändern der Schicht l ; da die Höhenlevel von oben nach unten gezählt werden, ist das Verhältnis größer als Eins und der Logarithmus positiv. Damit sind alle Variablen bekannt, die nötig sind, um mit Gleichung 3.1 Säulendichten für jede Schicht zu berechnen.

Bestimmung der Tropopause

Die Tropopausenhöhe wurde nach dem Temperatorkriterium der Weltorganisation für Meteorologie (WMO, [41]) bestimmt: Die Schicht oberhalb eines Druckes von 500hPa, in der die Temperaturabnahme erstmalig weniger als 2K/km beträgt, wurde als Tropopause identifiziert. Wurde bis zu einer Höhe von 20km keine Tropopause gefunden, so wurde der Mittelwert aus den benachbarten Gitterpunkten übernommen.

Zur Bestimmung der troposphärischen Säulendichten wurden die Beiträge der Schichten von dem unterhalb der so bestimmten Tropopause liegenden Höhenlevel an bis zur Erdoberfläche summiert:

$$VCD_X^{trop} = \sum_{l_{trop}+1}^{l_m} VCD_X^l .$$

In Abbildung 3.2 sind die Jahresmittelwerte im Breitenbereich von 45°N bis 55°N der Beiträge der einzelnen Schichten zu den Säulendichten VCD^l in Abhängigkeit des Druckes dargestellt. Dabei wurde über alle Längen- und Breitengrade in diesem Bereich getrennt für Gitterpunkte über Land und über den Ozeanen gemittelt. Die mittlere thermische Tropopause ist in der Abbildung in Blau eingetragen.

In der Abbildung ist in der Stratosphäre (fast) kein Unterschied zwischen den Land- und den Ozeanpixeln zu erkennen, obwohl in dem betrachteten Breitenbereich über Land sehr große anthropogene Quellgebiete liegen: Die Homogenitätsannahme für die Stratosphäre bei der Auswertung der Satellitendaten in Abschnitt 1.1.3 wird durch das Modell hier bestätigt. Weiterhin ist in Abbildung 3.2 zu sehen, dass die obersten troposphärischen Schichten bereits von der Stratosphäre beeinflusst sind. Über Land ist dieser Einfluss auf die troposphärische Gesamtsäule klein, über den Ozeanen ist er jedoch mit dem Beitrag einzelner Höhenlevel der atmosphärischen Grenzschicht vergleichbar.

Referenzsektor-Methode

Neben der Berechnung der Modellsäulen durch Summation bis zur Tropopause (in Tabellen als Trop'krit. abgekürzt) wurde auch die Referenzsektor-Methode auf die Modellsäulen angewandt: Von den Gesamtsäulen (Summation bis zur Modellobergrenze) wurde für jeden Breitenwert des Gitters der Mittelwert der Säulen an diesem Breitenwert über den Längenbereich von -170° bis -180° Länge als stratosphärisch interpretiert und subtrahiert. Dies ist der Streifen über dem Pazifik, der auch in der GOME-Auswertung von Richter & Burrows als Referenzsektor subtrahiert wurde. Kleine Unterschiede sind durch die ungleiche Auflösung bedingt.

In der GOME-Auswertung von Leue et al. wurde der stratosphärische Anteil der Säulen mit Hilfe eines Bildverarbeitungs-Verfahrens eliminiert. In dieser Arbeit wurde nicht der Versuch unternommen, dieses Verfahren auf die Modellrechnung zu übertragen.

Instantanwerte: 10:30

Standardmäßig werden die angeforderten Spurengase vom MOZART-Modell als Tagesmittelwerte der Mischungsverhältnisse ausgegeben. Speziell für Vergleiche mit Satellitendaten gibt es jedoch auch die Möglichkeit, die Werte für 10:30 Lokalzeit ausgeben zu lassen. Aus beiden Ausgabevarianten wurden Säulendichten nach dem Tropopausenkriterium und nach der Referenzsektor-Methode bestimmt.

In Abbildung 3.3 sind die Jahresmittelwerte der troposphärischen Säulendichtefelder der mit dem Tropopausenkriterium bestimmten Modellsäulen (Tagesmittelwerte und 10:30) und der GOME-Auswertungen von Richter & Burrows sowie von Leue et al. (Mittelwert über sechs Jahre) in der Auflösung T63 dargestellt. Die Farbskala ist bis auf die Extremwerte gleich, damit die absoluten Werte leicht verglichen werden können. Die Spitzenwerte der Modellrechnung übertreffen die der Satellitenfelder weit, in den Gebieten mit hohen Emissionen ist bei dieser Skala bei den modellierten Tagesmittlwerten kaum mehr Struktur zu erkennen. Deshalb ist auch ein Farbverlauf linear vom Minimum zum Maximum interessant, der statt eines Vergleichs der Absolutwerte einen Vergleich der Muster erleichtert; die auf Tagesmittelwerten basierenden Modellsäulen und die beiden Satellitenfelder sind mit einer solchen Farbskala nochmals in Abbildung 5.1 in Kapitel 5 zu sehen.

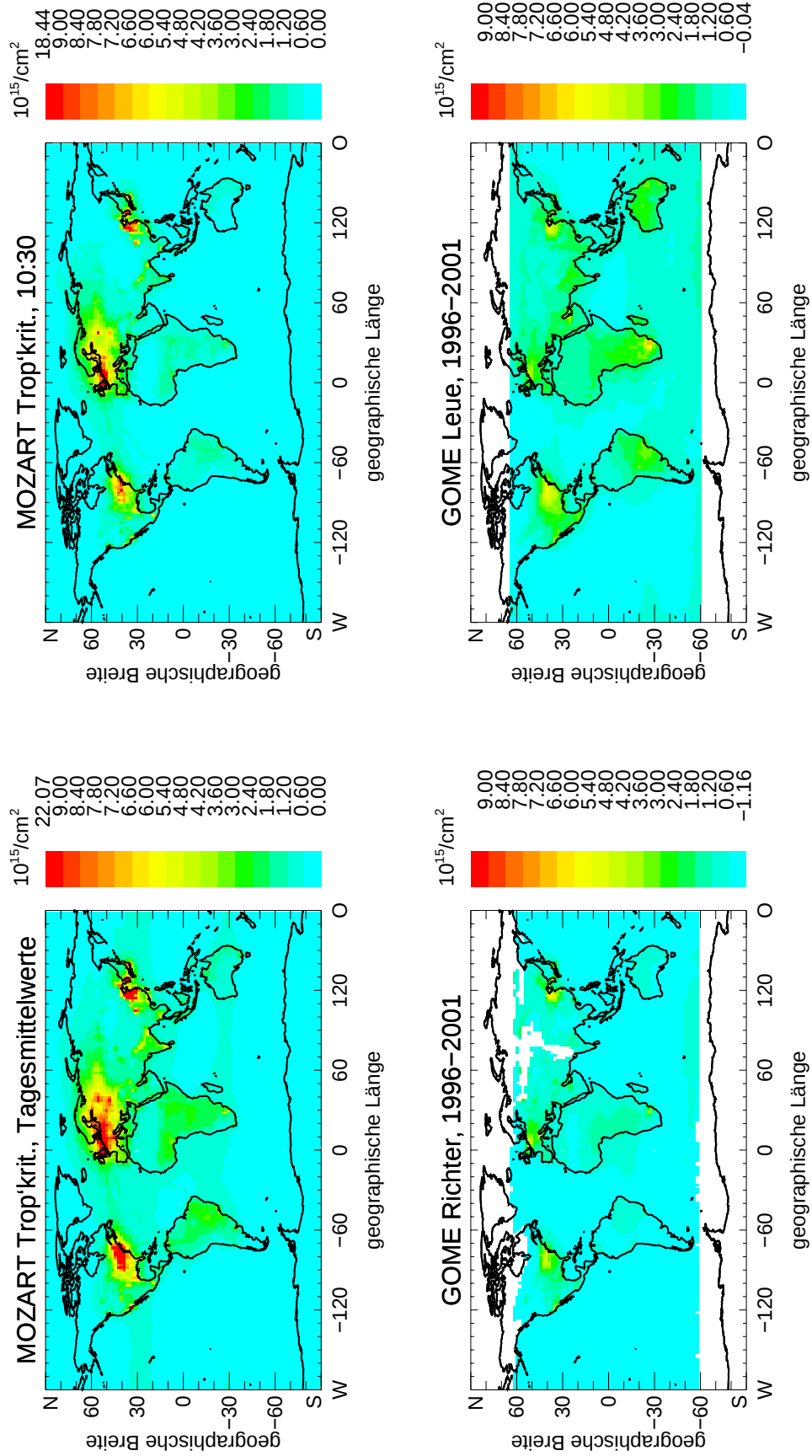


Abbildung 3.3: Jahresmittelwerte troposphärischer NO₂-Säulendichtefelder, Auflösung T63, Farbskala zur Erleichterung eines Vergleichs der Absolutwerte bis auf Extremwerte gleich; vergl. Abbildung 5.1 mit linearer Farbskala von Minimum bis Maximum für einen Vergleich der Muster

	NO ₂ -Gesamtinventar	NH	SH
MOZART EDGAR Trop'krit.	107 kt N	71%	29%
MOZART EDGAR Ref'sektor	73 kt N	75%	25%
MOZ EDGAR 10:30 Trop'krit.	65 kt N	75%	25%
MOZ EDGAR 10:30 Ref'sektor	51 kt N	76%	24%
GOME Richter	41 kt N	64%	36%
GOME Leue	95 kt N	52%	48%
	NO ₂ : 40°S–60°N	0°N–60°N	40°S–0°S
MOZART EDGAR Trop'krit.	104 kt N	72%	28%
MOZART EDGAR Ref'sektor	71 kt N	76%	24%
MOZ EDGAR 10:30 Trop'krit.	62 kt N	76%	24%
MOZ EDGAR 10:30 Ref'sektor	48 kt N	78%	22%
GOME Richter	37 kt N	70%	30%
GOME Leue	86 kt N	57%	43%

Tabelle 3.1: Gesamtinventar und Verteilung auf Nord- und Südhemisphäre bei Betrachtung der in allen Datensätzen definierten Gitterpunkte (oben) sowie im Breitenbereich von 40°S bis 60°N

3.2 Vergleich Satellitenmessung – Modellrechnung

Im Folgenden sollen die Jahresmittelwerte troposphärischer NO₂-Säulendichtefelder der Modellrechnung und der Satellitenauswertungen direkt miteinander verglichen werden. Da es in der Literatur bereits einige Vergleiche von GOME–NO₂-Messungen und Modellrechnungen gibt, fällt der direkte Vergleich in dieser Arbeit kurz aus und beschränkt sich auf globale Aspekte, ohne einzelne Regionen oder Messstationen im Detail zu betrachten. Die früheren Vergleiche werden kurz in Abschnitt 3.2.4 dargestellt.

3.2.1 Gesamtinventar

Das Gesamtinventar, das heißt die Gesamtmenge des im Jahresmittel in der Troposphäre vorhandenen NO₂, der verschiedenen Modellsäulenvarianten sowie der beiden GOME–Auswertungen ist in Tabelle 3.1 oben dargestellt. Dabei wurden nur die Gitterpunkte berücksichtigt, die in beiden GOME–Auswertungen definierte Werte annehmen (nicht definierte Werte sind in Abbildung 3.3 nicht eingefärbt; der Bereich beschränkt sich also im Wesentlichen auf den Breitenbereich von 60°S bis 60°N).

Beim Vergleich zunächst der Modellfelder fällt auf, dass jeweils das Inventar der Säulen nach dem Tropopausenkriterium größer ist als das der Säulen nach der Referenzsektor-Methode und das des Jahresmittelwertes der Tagesmittel (Standardausgabe) größer ist als das des Jahresmittelwertes der Instantanwerte um 10:30 Ortszeit. Beides entspricht der Erwartung:

- Über dem betrachteten Sektor im Pazifik sind noch kleine troposphärische NO_2 -Werte vorhanden, die bei der Referenzsektor-Methode global subtrahiert werden.
- In die Tagesmittelwerte gehen auch die Nachtwerte mit ein; im Dunkeln liegt fast das gesamte NO_x ($\text{NO} + \text{NO}_2$) als NO_2 vor, während sich um 10:30 Lokalzeit ein Teil des nächtlichen NO_2 in NO umgewandelt hat.

Das Inventar der Leue-Auswertung liegt deutlich über dem der modellierten instantanen 10:30 Säulen, das Inventar der Richter-Auswertung liegt unter den anderen Werten.

Rechts oben in Tabelle 3.1 ist dargestellt, wie sich das NO_2 auf die Nord- und die Südhemisphäre verteilt. Bei der Modellrechnung befinden sich in allen Varianten etwa drei Viertel des Inventars auf der Nordhalbkugel, bei den Satellitensäulen sieht dies anders aus: In der Richter-Auswertung liegt der Anteil des nordhemisphärischen NO_2 nur bei 64%, in der Leue-Auswertung sogar nur bei 52%.

Bei der Eliminierung des stratosphärischen Anteils der Satellitensäulen (egal nach welchem Kriterium) stellt der Rand des südlichen Polarwirbels ein Problem dar, da sich die Tropopausenhöhe hier sehr plötzlich ändert und die Annahme der Längenunabhängigkeit des stratosphärischen NO_2 nur schlecht erfüllt ist. In Abbildung 3.3 sind über den Ozeanen südlich von 50°S erhöhte Säulen zu erkennen, die in der Modellrechnung nicht auftreten. Dies ist nach mündlicher Auskunft von Andreas Richter ein Effekt des Randes des südlichen Polarwirbels. Da die Meere auf der Südhalbkugel einen großen Anteil an der Gesamtfläche haben, macht sich diese Erhöhung im Inventar deutlich bemerkbar.

Um diesen Effekt auszuschließen, sind in Tabelle 3.1 unten zum Vergleich Inventar und Verteilung auf Nord- und Südhemisphäre bei Einschränkung des Breitenbereichs auf 40°S bis 60°N dargestellt. Das Gesamtinventar der GOME-Säulen ändert sich dabei stärker als das der Modellsäulen. Die hemisphärische Verteilung nähert sich bei der GOME-Richter Auswertung der der Modellrechnungen an, bei der Leue-Auswertung bleibt der südhemisphärische Anteil höher als bei den anderen.

Bei diesem Vergleich können nur Unterschiede aufgezeigt werden; welche der Datensätze näher an den „wahren“ Säulendichten liegen, kann nicht entschieden werden. Ein Teil des Unterschieds im Gesamtinventar zwischen Modellrechnung und GOME Richter könnte darauf zurückzuführen sein, dass im Modell „zu wenig“, bei GOME Richter „zu viel“ stratosphärischer Anteil subtrahiert wurde. Auch die Unterschiede im Nord/Süd-Verhältnis können aus Modellfehlern wie aus Auswertungsfehlern bei GOME oder aus einer Kombination aus beiden resultieren:

- Im EDGAR-Kataster könnten die anthropogenen Emissionen zu hoch gegenüber den biogenen geschätzt sein.
- Im Modell könnte die Lebensdauer von NO_x auf der Südhemisphäre zu kurz gegenüber der auf der Nordhemisphäre sein. (Die Modell-Lebensdauer auf

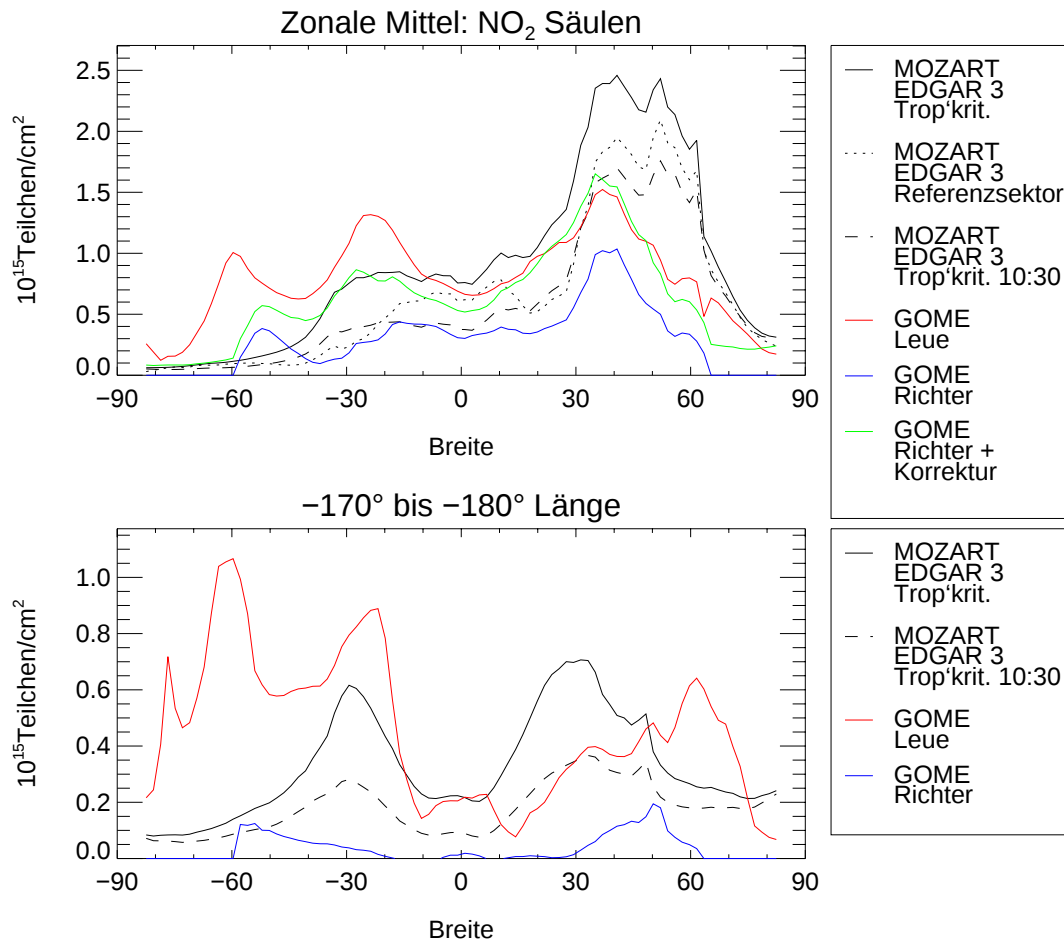


Abbildung 3.4: oben: Zonale Mittel (Mittelwerte über alle Längengrade an jedem Breitenwert des Gitters); die grüne Kurve ergibt sich aus den GOME Richter Säulen durch Addition der nach dem Tropopausenkriterium bestimmten modellierten Referenzsektor Säulen (schwarze Kurve unten); unten: Mittelwerte über die Längengrade des Referenzsektors von -170° bis -180° Länge

der Südhemisphäre ist länger als auf der Nordhemisphäre, aber eventuell nicht genug.)

- Bei den Satellitenauswertungen könnte ein eventueller systematischer Fehler durch Wolkenkorrektur, Bodenalbedo oder Höhenprofil vorliegen, da sich die Maxima der südlichen Säulen in eher biogen, die der nördlichen in eher anthropogen geprägten Gebieten befinden.

3.2.2 Zonale Mittelwerte

Nach der Betrachtung des Gesamtinventars soll jetzt die Breitenabhängigkeit der Säulendichten verglichen werden. In Abbildung 3.4 oben sind die zonalen Mittel, das heißt die Mittelwerte über alle Längengrade an jedem Breitenwert des Gitters,

der verschiedenen Datensätze dargestellt. Die bereits im vorherigen Abschnitt deutlich gewordenen Unterschiede hinsichtlich Gesamtinventar und Verteilung auf Nord- und Südhemisphäre sind hier nochmals zu erkennen. Die lokalen Maxima der GOME-Auswertungen südlich von 40°S sind Auswirkungen des südlichen Polarwirbels; da die Ozeane auf der Südhemisphäre einen Großteil der Fläche ausmachen, wirkt sich der Effekt im zonalen Mittel verstärkt aus.

In der Modellrechnung liegen die Maximalwerte der Säulendichten eindeutig auf der Nordhemisphäre zwischen 30°N und 60°N, nördlich davon fallen sie steil ab. Dieser Abfall setzt bei den Satellitensäulen schon bei etwa 40°N ein und ist dafür weniger steil. Der Abfall auf der Südhemisphäre beginnt bei den nach dem Tropopausenkriterium bestimmten Modellsäulen sowie bei GOME Leue bei etwa 25°S, bei den beiden mit Referenzsektor-Methode bestimmten Feldern (GOME Richter und die entsprechenden Modellsäulen) jedoch bereits bei 15°S.

Um den Einfluss des Referenzsektors genauer zu untersuchen, wurde die Breitenabhängigkeit der Säulen im Referenzsektor von -170° bis -180° Länge einzeln betrachtet (Abbildung 3.4 unten). Wie erwartet sind die Restsäulen von GOME Richter dort sehr gering (die Abweichung von Null ist eine Folge der ursprünglich unterschiedlichen räumlichen Auflösung), GOME Leue und die Modellrechnung nach Tropopausenkriterium weisen jedoch von Null verschiedene Werte im Referenzsektor auf. Addiert man die Modellsäulen über dem Referenzsektor auf die Säulen der GOME Auswertung von Richter & Burrows, so ergibt sich die grüne Kurve oben in Abbildung 3.4. Die südliche Flanke der so korrigierten GOME Richter Säulen liegt jetzt im gleichen Breitenbereich wie die von GOME Leue.

Beim Vergleich der MOZART-Säulen der Standard-Ausgabe (Tagesmittelwerte) und der Säulen jeweils um 10:30 Ortszeit fällt auf, dass die Gesamtmenge NO_2 bei den Instantansäulen geringer ist, deren Spitzenwerte (zwischen 30°N und 60°N) aber weniger stark verkleinert sind als die übrigen Werte (auch schon in Abbildung 3.3 zu erkennen). Dies kann mit dem photostationären Gleichgewichtszustand erklärt werden:

$$k_{\text{NO}+\text{O}_3}[\text{NO}][\text{O}_3] \approx j_{\text{NO}_2}[\text{NO}_2] .$$

Nachts ist die Photolysefrequenz j_{NO_2} sehr klein und folglich der NO_2 -Anteil am NO_x sehr groß. Deshalb ist das jährliche NO_2 -Gesamtinventar der auf Tagesmittelwerten basierenden Säulen, in die auch die Nachtwerte eingehen, größer als das der instantanen Säulen. Über den Gebieten mit sehr hohen Säulendichten scheint tagsüber das Ozon-Mischungsverhältnis groß zu sein, was das Gleichgewicht ebenfalls in Richtung NO_2 verschiebt. In diesen Gebieten scheint das im Jahresmittelwert zu relativ zum Mittelwert gesehen stärker ausgeprägten Spitzen zu führen als bei den Standard-Säulen.

3.2.3 Räumliche Korrelationskoeffizienten

Nach dem „0-dimensionalen“ Vergleich des Gesamtinventars und der „1-dimensionalen“ Betrachtung der zonalen Mittel sollen jetzt die vollen 2-dimensionalen

Korrelation	GOME Richter		GOME Leue	
MOZ EDGAR Trop'krit.	0.75 ± 0.01		0.67 ± 0.01	
MOZ EDGAR Ref'sektor	0.74 ± 0.01		0.65 ± 0.01	
MOZ ED 10:30 Trop'krit.	0.72 ± 0.01		0.60 ± 0.01	
MOZ ED 10:30 Ref'sektor	0.71 ± 0.01		0.58 ± 0.01	

Regression	GOME Richter		GOME Leue	
	b	$a[10^{14} \text{ cm}^{-2}]$	b	$a[10^{14} \text{ cm}^{-2}]$
MOZ EDGAR Trop'krit.	2.75 ± 0.06	-0.2 ± 0.2	2.14 ± 0.06	-09.3 ± 0.5
MOZ EDGAR Ref'sektor	2.62 ± 0.06	-3.0 ± 0.2	2.03 ± 0.06	-11.7 ± 0.5
MOZ ED 10:30 Trop'krit.	2.03 ± 0.06	-1.5 ± 0.3	1.57 ± 0.06	-8.2 ± 0.6
MOZ ED 10:30 Ref'sektor	1.90 ± 0.06	-2.3 ± 0.3	1.48 ± 0.06	-8.6 ± 0.6

Tabelle 3.2: oben: Räumliche Korrelationskoeffizienten an den in allen Feldern definierten Gitterpunkten; **unten:** Regressionskoeffizienten: a : Offset, b : Steigung der Regression mit x: GOME, y: Modell

Felder durch Bildung der räumlichen Korrelationskoeffizienten an den in allen Feldern definierten Gitterpunkten verglichen werden. Die Korrelationen der Jahresmittelwerte der beiden GOME-Auswertungen mit den verschiedenen Varianten der Modellsäulen sind in Tabelle 3.2 aufgelistet. Die räumliche Korrelation der GOME-Auswertungen untereinander beträgt $R = 0.85 \pm 0.01$. Die Fehlerangaben entsprechen einer Standardabweichung und wurden mit dem in Anhang A beschriebenen *Bootstrap*-Verfahren bestimmt.

Alle Modellsäulen korrelieren stärker mit GOME Richter als mit GOME Leue. Erstaunlich ist, dass der Jahresmittelwert der modellierten Tagesmittelwerte jeweils besser mit den Satellitenauswertungen übereinstimmt als der auf den modellierten Instantanwerten um 10:30 Ortszeit beruhende Mittelwert. Die nach der Referenzsektor-Methode bestimmten Modellsäulen korrelieren tendenziell schlechter mit den GOME Säulen als die nach dem Tropopausenkriterium bestimmten, auch wenn in der GOME Auswertung von Richter & Burrows genau dieses Kriterium verwendet wurde. Dies könnte daran liegen, dass der Nord-Süd-Gradient in den modellierten tagesgemittelten Säulen nach Tropopausenkriterium am besten mit dem der GOME Säulen übereinstimmt (siehe Tabelle 3.1). Die Spitzenwerte über den nordhemisphärischen Industriezentren, die in der Modellrechnung stärker als in den Satellitenmessungen ausgeprägt sind, treten in den für 10:30 Lokalzeit modellierten Säulen noch deutlicher heraus, was die Korrelation insgesamt verschlechtert.

Die Ausgabe der Instantanwerte 10:30 Ortszeit muss für jeden Modelltag erfolgen, während die Tagesmittelwerte modellintern über die gewünschten Ausgabeintervalle (z.B. Wochen- oder Monatswerte) gemittelt werden; deshalb benötigen die Lokalzeit-Dateien weitaus mehr Festplattenplatz als die Standard-Ausgabe. Da im weiteren Verlauf dieser Arbeit eher Korrelationskoeffizienten als absolute Mengenangaben im Vordergrund stehen werden und die Korrelationen der Felder um 10:30 Ortszeit mit den Satellitensäulen niedriger sind als die der

Standard-Ausgabe, wird von weiteren Modellrechnungen in dieser Arbeit lediglich die Standard-Ausgabe verwendet; die Bestimmung der Modell-Säulen erfolgt nach dem Tropopausenkriterium (Standardsäulen).

Die Regressionskoeffizienten (Steigung b und Offset a) unten in Tabelle 3.2 wurden mit einer IDL-Routine erstellt, die einen in den *Numerical Recipes* [32] beschriebenen Algorithmus zum Fitten bei Fehlern in beiden Koordinaten verwendet (fitxy). Als x-Koordinate wurde jeweils die GOME-Auswertung, als y-Koordinate die Modellrechnung angesetzt. Für beide Koordinaten wurde jeweils konstant für alle Punkte eine Standardabweichung des Datensatzes als reziprokes Gewicht für den Fit angegeben. Bei dieser Wahl der Gewichtung folgen die angegebenen Unsicherheiten aus dem in Anhang A beschriebenen *Bootstrap*-Verfahren und entsprechen einer Standardabweichung. Die Regressionskoeffizienten hängen jedoch empfindlich von der Wahl der Gewichte ab und sind daher mit Vorsicht zu interpretieren. Es fällt jedoch auf, dass die Offsets der Modellrechnungen stets negativ sind.

In Abbildung 3.5 links sind Scatterplots der modellierten Standardsäulen gegen die GOME-Messungen dargestellt. In Schwarz ist ein linearer Fit dazugeplotet, der einer Regressionsgeraden mit den Parametern aus Tabelle 3.2 entspricht. Der Zusammenhang MOZART – GOME Richter sieht erwartungsgemäß zigarrenförmig aus, während der Zusammenhang MOZART – GOME fast fächerförmig wirkt, was die niedrigere Korrelation erklärt.

Eingefärbt sind die Punkte nach dem Winkel, der sie bei einer Drehung um den Ursprung auf die Fitgerade abbildet. Zur Orientierung sind in den mittleren Teilabbildungen exemplarisch die Gitterpunkte über den Kontinenten Europa und Australien schwarz eingefärbt. Hier macht sich wieder der insbesondere bei GOME Leue weniger stark ausgeprägte Nord/Süd Gradient bemerkbar (siehe Tabelle 3.1): Die Steigung der Regressionsgeraden nur für Australien wäre deutlich kleiner, die nur für Europa deutlich größer als die bei Betrachtung aller Gitterpunkte. Bei einer Regression Modell / GOME Richter würden sich eher die Offsets als die Steigungen für die Kontinente unterscheiden.

Rechts in Abbildung 3.5 wurden die Einfärbungen aus dem Scatterplot wieder auf die Karte übertragen. Da die Winkel nahe am Ursprung nicht sehr aussagekräftig sind und die Regressionsgerade auch nicht exakt durch den Ursprung verläuft, wurden nur die Punkte in die Karte zurückübertragen, die in beiden Koordinaten größer als 50% des Mittelwertes sind. (Der Mittelwert liegt wegen der großen Anzahl an Ozeanpixeln sehr niedrig.) An der Steigung der Regressionsgeraden ist wieder zu erkennen, dass global gesehen die Säulen beider Satellitenauswertungen kleiner sind als die der Modellrechnung. An der Karte wird jedoch deutlich, dass relativ gesehen GOME Leue in den nördlichen Industriezentren (Osten Nordamerikas, Europa, Ostasien) weniger NO_2 sieht als das Modell berechnet und auf der Südhemisphäre mehr. Für GOME Richter lässt sich kein eindeutiger Zusammenhang feststellen.

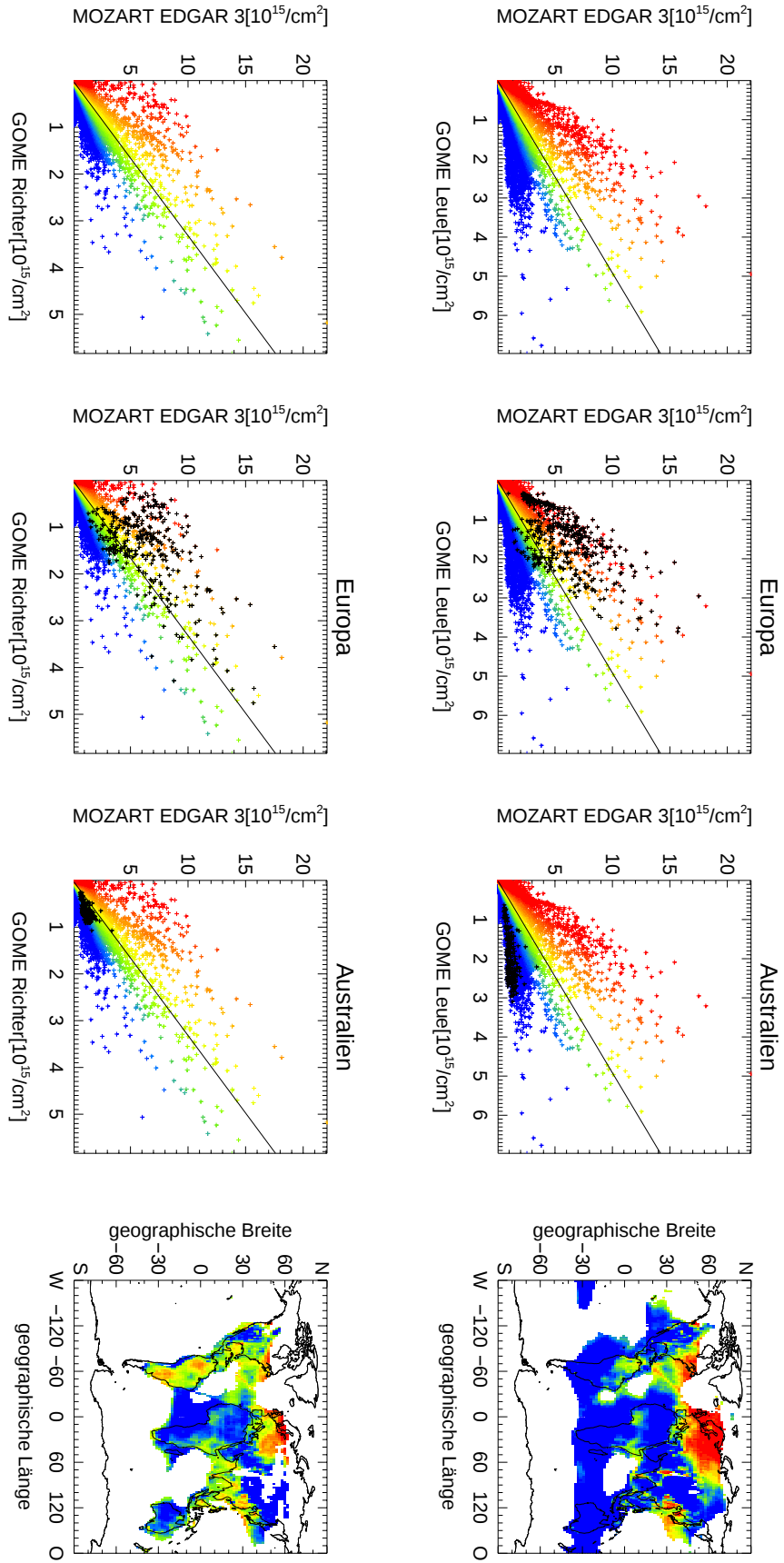


Abbildung 3.5: links: Scatterplots der modellierten Standardsäulen gegen die GOME-Messungen, Punkte eingefärbt nach dem Winkel, der sie bei einer Drehung um den Ursprung auf die Fitgerade abbildet; **mitte:** Gitterpunkte über den Kontinenten Europa und Australien schwarz eingefärbt; **rechts:** Rückübertragung der Punkte, die in beiden Datensätzen größer als 50% des Mittelwertes sind, in die Karte

3.2.4 Literatur: Weitere Vergleiche

Nun sollen kurz die Ergebnisse anderer Arbeitsgruppen vorgestellt werden, die troposphärische NO_2 -Säulendichten von GOME mit Modellrechnungen verglichen haben. Dies soll jedoch auf die Aspekte beschränkt bleiben, die oben in diesem Kapitel untersucht wurden. Auf Untersuchungen der Jahresgänge oder auf detaillierte Betrachtungen einzelner Regionen wird hier nicht eingegangen.

IMAGES / MOZART – GOME

Velders et al. [40] verglichen ein Jahr GOME-Messungen, bei deren Auswertung eine Kombination der Methoden der in dieser Arbeit verwendeten GOME-Auswertungen angewandt wurde (siehe Kapitel 1) mit Modellrechnungen der Modelle IMAGES und MOZART, Vergleichsgröße waren die Absolutwerte der Monatsmittel. Von den Modellen wurden jeweils Tagesmittelwerte ausgegeben. Um den NO_2 -Anteil am NO_x mit dem um 10:30 Ortszeit vergleichen zu können, wurden während der ersten drei Tage eines jeden Monats bei der Modellrechnung mit IMAGES stündliche Ausgaben angefordert und daraus das Verhältnis von Tagesmittel- zu Instantanwert 10:30 Lokalzeit bestimmt. Mit diesem Faktor wurden die restlichen Tageswerte und auch die MOZART-Ausgaben umgerechnet. Die zugrundeliegenden Emissionen beziehen sich auf das Jahr 1990 (EDGAR 2).

Insgesamt stimmt die MOZART-Rechnung bei Velders et al. besser mit den GOME-Säulen überein als die Rechnung mit IMAGES. Über Nordamerika liegen die Maximalwerte der MOZART-Säulen um Faktoren von 0.8 bis 1.5 unter denen von GOME; für Europa liegt dieser Faktor bei 0.7 bis 2 und für Asien bei 1.5 bis 3.5. In den Gebieten mit hohem Anteil von Biomasseverbrennung ist die Übereinstimmung weniger gut.

ECHAM4.L39(DLR)/CHEM – GOME

Lauer et al. [23] stellten die auch in dieser Arbeit verwendete GOME Auswertung von Richter & Burrows als Mittelwert über sechs Jahre einer 20 Jahre umfassenden Modellklimatologie des voll gekoppelten Chemie-Klima-Modells ECHAM4.L39 (DLR)/CHEM (Auflösung: T20, 39 Höhenlevel) gegenüber. Grundlage der verwendeten anthropogenen NO_x -Emissionen war das GEIA-Kataster für das Jahr 1985. Sie bestimmten die Modellsäulen sowohl durch Integration bis zur thermischen Tropopause wie auch nach der Referenzsektor-Methode. Zwischen diesen Modellvarianten fanden sie einen Unterschied von etwa 30% im Gesamtinventar, aber keine signifikanten Auswirkungen auf die Verteilung über den Kontinenten oder den Jahresgang.

Beim Vergleich mit GOME fanden Lauer et al. höhere Maximalwerte in den Industriezentren, die auch räumlich weiter ausgedehnt waren. Weiterhin bestimmten sie Jahresmittelwerte für einzelne Regionen. Über Europa liegt ECHAM4.L39 (DLR)/CHEM um einen Faktor 2.65 über GOME, über den USA liegt dieser Faktor bei 1.7, in Südamerika bei 1.4. In Gegensatz dazu sind über Afrika und Australien die GOME-Säulen höher, die Faktoren liegen bei 1.2 bzw. 1.7. Über

Südostasien stimmen die Werte hier in etwa überein. Dies stimmt qualitativ mit den Folgerungen aus dem Scatterplot in Abbildung 3.5 aus dieser Arbeit überein.

TOMCAT – GOME

Savage et al. [36] führten einen Vergleich zwischen GOME und dem globalen CTM TOMCAT für das Jahr 1997 durch. Die Modellemissionen waren dieselben wie die in dieser Arbeit für MOZART verwendeten. Die GOME-Auswertung wurde für diesen sogenannten „selbstkonsistenten“ Vergleich stark an das Modell angelehnt: Die zur Bestimmung des *Air Mass Factors* benötigten NO₂-Profile wurden mit TOMCAT berechnet, in beiden Fällen wurde der stratosphärische Teil der Säulen durch eine Kombination aus der Referenzsektor-Methode mit dem Stratosphärenmodell SLIMCAT subtrahiert. (Eine solches Vorgehen wird in dieser Arbeit bewusst vermieden, da nicht entschieden werden kann, ob eine bessere Übereinstimmung von Satellitenmessung und Modellrechnung auf einen hohen Anteil gemeinsamer Wahrheit oder lediglich auf gemeinsame Fehler zurückzuführen ist.) Die Modellsäulen wurden einerseits als Tagesmittelwerte, andererseits als Instantanwerte um 10:30 Ortszeit ausgegeben.

Als Vergleichsgrößen dienten bei Savage et al. Korrelations- und Regressionskoeffizienten (Steigung der Fitgeraden) zwischen GOME und Modell, und zwar sowohl global wie auch für einzelne Kontinente. Tendenziell sind die Korrelationen in den stark verschmutzten Gebieten höher als in den schwächer belasteten und die Modellwerte dort höher als die GOME-Messungen. Die Regressionskoeffizienten sind bei Savage et al. tendenziell kleiner als die Faktoren bei Lauer et al..

Der globale Korrelationskoeffizient zwischen der von Savage et al. untersuchten GOME Auswertung und TOMCAT liegt mit $R = 0.79$ etwas höher als der Korrelationskoeffizient zwischen GOME und MOZART in dieser Arbeit ($R = 0.75$, bzw. $R = 0.67$), was an der selbstkonsistenten Auswertung liegt. Savage et al. fanden keinen Unterschied für die Modell-Satelliten-Korrelation zwischen den Instantan- und den Tagesmittelwerten. Die Regressionskoeffizient betrug bei den Instantanwerten $b = 1.47$ und bei den Tagesmittelwerten $b = 1.89$ (vergleiche Werte in Tabelle 3.2 für die Ergebnisse dieses Kapitels).

Bei allen Vergleichen wurden jeweils andere Kombinationen aus Modell, Emissionsdaten und Satellitenauswertung in unterschiedlicher räumlicher Auflösung und in verschiedenen Zeiträumen betrachtet. Dafür stimmen die Ergebnisse in der Tendenz gut überein.

Kapitel 4

Korrelations–Fehleranalyse: Methode

In diesem Kapitel wird eine über einen bloßen Vergleich hinausgehende Methode entwickelt, die es ermöglicht, Fehler in den Verteilungsmustern konkreten Feldern zuzuordnen und auch zu quantifizieren. Die Voraussetzung dafür ist, dass mindestens drei Felder mit unabhängigen Fehlern vorliegen.

Die Methode wird anschließend auf ein mit Zufallszahlen konstruiertes Beispiel, bei dem die Fehler der Felder aus der Konstruktion bekannt sind, angewandt und veranschaulicht.

4.1 Korrelationskoeffizienten und Fehlervarianzen

Im Folgenden soll für die Erwartungswertbildung die Notation der eckigen Klammern $\langle \cdot \rangle$ verwendet werden. Der Mittelwert einer Größe X schreibt sich dann als $\bar{X} = \langle X \rangle$, die Varianz $\text{var}(X) = \langle X^2 \rangle - \langle X \rangle^2$, und die Kovarianz zweier Größen X_i und X_j als $\text{covar}(X_i, X_j) = \langle X_i X_j \rangle - \langle X_i \rangle \langle X_j \rangle$.

Ist ein linearer Zusammenhang zwischen zwei Größen X_i und X_j zu vermuten, so bietet sich der lineare Korrelationskoeffizient

$$R_{ij} = \frac{\langle X_i X_j \rangle - \langle X_i \rangle \langle X_j \rangle}{\sqrt{(\langle X_i^2 \rangle - \langle X_i \rangle^2) (\langle X_j^2 \rangle - \langle X_j \rangle^2)}} , \quad (4.1)$$

siehe z. B. Hartung [14], als Maß für diesen Zusammenhang an. Sein Quadrat ergibt den Anteil an gemeinsamer Varianz der Größen. Vermutet man einen anderen funktionalen Zusammenhang, bieten sich entweder entsprechende Transformationen oder z. B. die Rangkorrelation an.

Da die hier betrachteten Größen (Satellitenmessungen bzw. Modellrechnungen) Proxys für jeweils dieselben „wahren“ Felder (Säulendichten bzw. Emissionen) sein werden, ist ein linearer Ansatz gerechtfertigt; es wird daher angenommen, dass sich die Felder jeweils aus einem möglicherweise unterschiedlich großen

Anteil am wahren Feld X_{true} und einem Fehlerfeld η zusammensetzen:

$$\begin{aligned} X_i &= a_i X_{true} + \eta_i \\ X_j &= a_j X_{true} + \eta_j . \end{aligned} \quad (4.2)$$

Dabei wird angenommen, dass das jeweilige Fehlerfeld unkorreliert zum wahren Feld ist:

$$\langle X_{true} \eta_i \rangle - \langle X_{true} \rangle \langle \eta_i \rangle = 0 . \quad (4.3)$$

Dies ist keine Einschränkung, da das Fehlerfeld η immer aufgeteilt werden kann in einen Teil $\eta_{\parallel}$, der mit dem wahren Feld mit $R = 1$ korreliert, und in einen Teil $\eta_{\perp}$, der zu diesem Feld unkorreliert ist: $\eta = \eta_{\parallel} + \eta_{\perp}$, mit $\eta_{\parallel} = \langle \eta X_{true} \rangle / \langle X_{true}^2 \rangle X_{true}$ und $\eta_{\perp} = \eta - \eta_{\parallel}$. In Gleichung 4.2 kann $\eta_{\parallel}$ in den ersten Summanden gezogen werden, was den Vorfaktor von X_{true} ändert; im zweiten Summanden verbleibt $\eta_{\perp}$ und Gleichung 4.3 ist erfüllt.

Wird der Ansatz 4.2 in die Formel für den linearen Korrelationskoeffizienten 4.1 eingesetzt, so kann diese mit Gleichung 4.3 umgeformt werden zum Ausdruck

$$\begin{aligned} R_{ij} &= a_i a_j \frac{\langle X_{true}^2 \rangle - \langle X_{true} \rangle^2}{\sqrt{(\langle X_i^2 \rangle - \langle X_i \rangle^2) (\langle X_j^2 \rangle - \langle X_j \rangle^2)}} \\ &+ \frac{\langle \eta_i \eta_j \rangle - \langle \eta_i \rangle \langle \eta_j \rangle}{\sqrt{(\langle X_i^2 \rangle - \langle X_i \rangle^2) (\langle X_j^2 \rangle - \langle X_j \rangle^2)}} ; \end{aligned}$$

der zweite Term wird mit der Definition

$$e_{ij} := \frac{\langle \eta_i \eta_j \rangle - \langle \eta_i \rangle \langle \eta_j \rangle}{\langle X_i X_j \rangle - \langle X_i \rangle \langle X_j \rangle} = \frac{\text{covar}(\eta_i, \eta_j)}{\text{covar}(X_i, X_j)} \quad (4.4)$$

zu $e_{ij} R_{ij}$. Bringt man dies auf die andere Seite der Gleichung, so ergibt sich nach Quadrieren der Ausdruck

$$R_{ij}^2 (1 - e_{ij})^2 = a_i^2 a_j^2 \frac{(\langle X_{true}^2 \rangle - \langle X_{true} \rangle^2)^2}{(\langle X_i^2 \rangle - \langle X_i \rangle^2) (\langle X_j^2 \rangle - \langle X_j \rangle^2)} .$$

Die Varianz des unbekannten wahren Feldes in diesem Ausdruck kann wiederum mit Gleichung 4.3 eliminiert werden, denn mit ihr folgt aus dem Ansatz 4.2:

$$\langle X_{true}^2 \rangle - \langle X_{true} \rangle^2 = \frac{1}{a_i^2} (\langle X_i^2 \rangle - \langle X_i \rangle^2 - \langle \eta_i^2 \rangle + \langle \eta_i \rangle^2) .$$

Ersetzt man dies einmal für i und einmal für j im Quadrat im Zähler des zuletzt gewonnenen Ausdrucks, so folgt schließlich mit der weiteren Definition

$$e_{ii} := \frac{\langle \eta_i^2 \rangle - \langle \eta_i \rangle^2}{\langle X_i^2 \rangle - \langle X_i \rangle^2} = \frac{\text{var}(\eta_i)}{\text{var}(X_i)} \quad (4.5)$$

der endgültige Zusammenhang

$$\boxed{R_{ij}^2(1 - e_{ij})^2 = (1 - e_{ii})(1 - e_{jj})} . \quad (4.6)$$

In den Definitionen 4.5 und 4.4 wurden e_{ii} bzw. e_{ij} als der Fehleranteil an der Varianz des Feldes X_i bzw. als der Fehleranteil an der Kovarianz der Felder X_i und X_j definiert. Gleichung 4.6 verknüpft diese mit den Korrelationskoeffizienten der Felder. Wie die R_{ij} ändern sich die Varianzfehler nicht, wenn die Felder mit einem konstanten Faktor multipliziert werden oder wenn auf die Felder ein konstanter Offset addiert wird; die Varianzfehler ändern sich also etwa beim Standardisieren der Felder nicht. Die Fehleranteile an den Varianzen der Felder werden im Weiteren auch als relative Fehlervarianzen oder, wenn räumliche Korrelationen zwischen Feldern betrachtet werden, als Musterfehler der Felder bezeichnet.

Bei N Feldern bildet Gleichung 4.6 ein System aus

$$\binom{N}{2} \text{ Gleichungen mit } \binom{N}{2} + N \text{ Unbekannten :}$$

Die Anzahl der Gleichungen ist gleich der Anzahl der möglichen Paarbildungen, die Anzahl der Unbekannten ist die Summe aus den relativen Fehlerkovarianzen (in jeder Gleichung eine) und der relativen Fehlervarianzen (für jedes Feld eine).

Dieses Gleichungssystem ist also im Allgemeinen nicht lösbar. Wenn jedoch aus physikalischen Gründen einige der gesuchten Größen bereits bekannt sind, etwa weil die Fehler zweier Felder unabhängig sind, können mit Gleichung 4.6 mittels der Korrelationskoeffizienten der Felder deren Varianzfehler berechnet werden. Für mindestens drei Felder mit unabhängigen Fehlern ist das System lösbar!

Anteil des gemeinsamen Fehlers am Gesamtfehler eines Feldes

Da in die Kovarianz zweier Felder diese immer als Produkt eingehen, kann die relative Fehlerkovarianz keinem dieser Felder direkt zugeordnet werden und ist damit eine sehr unanschauliche Größe. Anschaulicher wäre es, wenn man für ein Feld sagen könnte, wie groß der Anteil des mit einem anderen Feld gemeinsamen Fehlers am Gesamtfehler dieses Feldes ist. Dies ist nicht möglich, wie im Folgenden gezeigt wird. Für zwei Felder

$$\begin{aligned} X_1 &= a_1 X_{true} + b_1 \eta_1 + c_1 \eta_{12} \\ X_2 &= a_2 X_{true} + b_2 \eta_2 + c_2 \eta_{12} \end{aligned}$$

möge ohne Beschränkung der Allgemeinheit gelten:

$$\text{covar}(\eta_i, \eta_j) = \delta_{ij}, \text{ covar}(\eta_{ij}, \eta_i) = 0 \text{ und } \text{var}(X_{true}) = \text{var}(\eta_i) = \text{var}(\eta_{ij}) = 1,$$

$$\delta_{ij} = \begin{cases} 1 & i = j \\ 0 & i \neq j \end{cases} \quad \text{Kronecker - Symbol.}$$

Die Fehler der Felder sind hier aufgeteilt worden in einen unkorrelierten Anteil η_i und einen gemeinsamen Anteil η_{ij} , die Varianzen aller Größen stecken in den jeweiligen Vorfaktoren. Die a_i lassen sich leicht mit Hilfe der Varianzen und Fehlervarianzen bestimmen:

$$\text{var}(X_i) = a_i^2 + b_i^2 + c_i^2, \quad e_{ii} = \frac{b_i^2 + c_i^2}{a_i^2 + b_i^2 + c_i^2} \quad \rightarrow \quad a_i = \sqrt{\text{var}(X_i)(1 - e_{ii})}.$$

Da es auf einen konstanten Faktor nicht ankommt, werden sie im Weiteren gleich Eins gesetzt. Die Kenntnis der Größe

$$ce := \frac{c_i^2}{b_i^2 + c_i^2}, \quad (4.7)$$

also des Anteils der Varianz des gemeinsamen Fehlers an der Varianz des Gesamtfehlers des Feldes X_i , wäre sehr aufschlussreich. Aus den drei Beziehungen

$$e_{11} = \frac{b_1^2 + c_1^2}{1 + b_1^2 + c_1^2}, \quad e_{22} = \frac{b_2^2 + c_2^2}{1 + b_2^2 + c_2^2} \quad \text{und} \quad e_{12} = \frac{c_1 c_2}{1 + c_1 c_2}$$

lassen sich die vier Faktoren b_1, b_2, c_1, c_2 jedoch leider nicht berechnen, nur das Produkt $c_1 c_2$ ist festgelegt. Die Grenzfälle ergeben sich dadurch, dass jeweils der nicht gemeinsame Fehler verschwindet:

$$\begin{aligned} b_1 = 0 : c_1 &= \sqrt{\frac{e_{11}}{1-e_{11}}}, \quad c_2 = \frac{e_{12}}{1-e_{12}} \sqrt{\frac{1-e_{11}}{e_{11}}} \quad \text{und} \quad b_2 = \sqrt{\frac{e_{22}}{1-e_{22}} - \frac{1-e_{11}}{e_{11}} \frac{e_{12}^2}{(1-e_{12})^2}} \\ b_2 = 0 : c_2 &= \sqrt{\frac{e_{22}}{1-e_{22}}}, \quad c_1 = \frac{e_{12}}{1-e_{12}} \sqrt{\frac{1-e_{22}}{e_{22}}} \quad \text{und} \quad b_1 = \sqrt{\frac{e_{11}}{1-e_{11}} - \frac{1-e_{22}}{e_{22}} \frac{e_{12}^2}{(1-e_{12})^2}}. \end{aligned}$$

Damit könnte der Anteil des gemeinsamen Fehlers am Gesamtfehler eines Feldes immer auch 100% betragen:

$$1 \geq ce_i \geq \frac{e_{12}^2}{(1-e_{12})^2} \frac{1-e_{11}}{e_{11}} \frac{1-e_{22}}{e_{22}} \quad i = 1, 2. \quad (4.8)$$

Wenn beide Felder jedoch nur gemeinsame Fehler enthalten, dann fallen die Grenzfälle zusammen: Aus $b_1 = 0$ folgt $b_2 = 0$ und umgekehrt. Die Relation, in der dann das Maximum auch das Minimum ist, wird zu einer eindeutigen Gleichung: $ce_i = 1$.

4.2 Konstruktion eines kombinierten Feldes

In diesem Abschnitt soll beschrieben werden, wie N Felder mit bekannten Fehlervarianzen und -Kovarianzen so kombiniert werden können, dass die relative Fehlervarianz des resultierenden Feldes minimal wird.

4.2.1 Transformation auf Felder mit unkorrelierten Fehlern

Bei der Kombination muss berücksichtigt werden, dass die Felder gemeinsame Fehler haben können, die nicht doppelt eingehen sollen. Dies wird durch eine Transformation auf Felder mit unkorrelierten Fehlern vermieden.

Dazu werden die N Felder zunächst in einen Vektor geschrieben:

$$(X_1, X_2, \dots, X_N)^\top = \vec{X}.$$

Die relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen werden durch Multiplikation mit den Varianzen und Kovarianzen der Felder in absolute Größen umgerechnet und bilden die Fehlerkovarianzmatrix E . Diese $N \times N$ -Matrix ist symmetrisch (die gemeinsamen Fehler eines Felderpaars X_i und X_j sind gleich denen der Felder X_j und X_i) und positiv definit (es gibt keine negativen Fehler). Damit sind die Eigenwerte λ_k , $k = 1, \dots, N$, von E positiv und reell, siehe z. B. Jänich [20]. Mit den zugehörigen normierten Eigenvektoren $\vec{v}_k$ lässt sich die Transformationsmatrix

$$P = (\vec{v}_1 | \vec{v}_2 | \dots | \vec{v}_N)$$

aufstellen. P ist orthonormal ($P^{-1} = P^\top$) und transformiert die Fehlerkovarianzmatrix E auf Diagonalenform, die Felder in $\vec{X}$ werden entsprechend mit transformiert:

$$D = P^\top E P, \quad D = \begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & \lambda_2 & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \dots & 0 & \lambda_N \end{pmatrix}, \quad \vec{Y} = P^\top \vec{X}$$

Dieses Vorgehen entspricht dem einer Hauptkomponentenanalyse (siehe von Storch & Zwiers [39]), aber nicht für die Felder selbst, sondern für die Fehlerkomponenten der Felder.

4.2.2 Berechnung der Wichtungsfaktoren

Im nächsten Schritt sollen die transformierten Felder so kombiniert werden, dass der Musterfehler der Kombination minimiert wird.

Die Y_k sind Linearkombinationen der X_k und lassen sich genau wie jene als Linearkombination aus wahren Feld und Fehler darstellen:

$$Y_k = a_k X_{true} + b_k \xi_k \quad \text{mit}$$

$$\langle \xi_k \rangle = 0, \quad \langle \xi_k X_{true} \rangle = 0, \quad \langle \xi_i \xi_j \rangle = \delta_{ij}. \quad (4.9)$$

Diese Eigenschaften ergeben sich wie folgt: Wie in Abschnitt 4.1 gilt ohne Beschränkung der Allgemeinheit, dass die Fehler der Felder unkorreliert zum wahren Feld sind (Gleichung 4.3); jetzt sind auch die Fehler der Felder untereinander unkorreliert. Das Aufspüren eines systematischen Fehlers in Form eines konstanten

Offsets ist nicht Ziel dieser Analyse: Er würde von ihr nicht gesehen werden. Deshalb kann der Mittelwert des Fehlers o. B. d. A. auf Null gesetzt werden. Die Varianzen der Fehler stecken in den Vorfaktoren b_k .

Die Faktoren a_k und b_k können explizit angegeben werden, da die Fehlervarianzen gleich den Diagonalelementen der Fehlerkovarianzmatrix – also gleich den λ_k – sind, und die Gesamtvarianzen der Felder Y_k ebenfalls bekannt sind (die Kovarianzmatrix der Felder transformiert sich wie die Fehlerkovarianzmatrix):

$$b_k = \pm\sqrt{\lambda_k} \quad \text{und} \quad a_k = \pm\sqrt{\text{var}(Y_k) - \lambda_k} .$$

Bei dem Vorzeichen von a_k ist einige Vorsicht geboten: Die Eigenvektoren einer Matrix sind nur bis auf einen konstanten Faktor definiert, auch nach der Normierung sind sie nur bis auf ein Vorzeichen eindeutig. Daher ist bei den Y_k nicht mehr sichergestellt, dass sie positiv mit dem wahren Feld korrelieren. Weil die ξ_k unkorreliert sind, kommen die Korrelationen zwischen den Y_k nur durch das gemeinsam enthaltene X_{true} zustande; die Vorzeichen der a_k können also so gewählt werden, dass die Korrelationskoeffizienten zwischen den Y_k alle positiv sind und entsprechend die Y_k das wahre Feld alle mit gleichem Vorzeichen enthalten. Ein eventuell falsches Vorzeichen des Kombinationsfelds kann am Ende der Analyse noch gedreht werden. Beim Rauschen spielt das Vorzeichen keine Rolle.

Nun wird eine Linearkombination der Y_k gebildet:

$$Y_{comb} = \sum_{i=1}^N c_i Y_i = a_{comb} X_{true} + \eta_{comb} \quad \text{mit}$$

$$a_{comb} = \sum_{i=1}^N c_i a_i \quad \text{und} \quad \eta_{comb} = \sum_{i=1}^N c_i \eta_i = \sum_{i=1}^N c_i b_i \xi_i$$

Der Musterfehler des Kombinationsfelds $e_{comb} = \text{var}(\eta_{comb})/\text{var}(Y_{comb})$ soll als Funktion der Wichtungsfaktoren minimiert werden. Unter Benutzung der Eigenschaften aus Gleichung 4.9 wird dieser Ausdruck zu

$$e_{comb} = f(c_1, \dots, c_N) = \frac{\sum_{i=1}^N c_i^2 b_i^2}{\left(\sum_{i=1}^N c_i a_i\right)^2 + \sum_{i=1}^N c_i^2 b_i^2} \stackrel{!}{=} \min .$$

Diese Extremwertaufgabe liefert als Ergebnis

$$c_k \propto \frac{a_k}{b_k^2} = \frac{\sqrt{\text{var}(Y_k) - \lambda_k}}{\lambda_k} = \frac{\text{stddev}(\text{enthaltene Wahrheit})}{\text{var}(\text{enthaltener Fehler})} . \quad (4.10)$$

Bis auf einen gemeinsamen Vorfaktor, der sich aus der Nebenbedingung

$$\sum_{i=1}^N c_i = 1$$

ergibt, sind die Wichtungsfaktoren also gegeben durch das Verhältnis der Wurzel der Varianz der im Feld enthaltenen Wahrheit zur Varianz des im Feld enthaltenen Fehlers.

Das Fehlerfeld der Kombination η_{comb} ist eine Linearkombination der Fehlerfelder der Y_i , entsprechend setzt sich der Musterfehler gemäß der Linearkombination zusammen:

$$e_{comb} = \frac{\sum_{i=1}^N c_i^2 \lambda_i}{\text{var}(Y_{comb})} .$$

Um nachzuvollziehen, wie sich die ursprünglichen Felder zur bestmöglichen Kombination zusammensetzen, müssen die Wichtungsfaktoren c_k für die transformierten Y_k noch zurücktransformiert werden in Wichtungsfaktoren w_k für die X_k . Dies geschieht wieder mit der Matrix P :

$$\vec{w} = P\vec{c} . \quad (4.11)$$

Fehlermaß

Ein weit verbreitetes Fehlermaß ist das Verhältnis aus Standardabweichung des Fehlers zum Mittelwerts des Feldes $\text{stddev}(\eta_{comb})/\bar{Y}_{comb}$. Alternativ zum Musterfehler könnte auch diese Größe minimiert werden:

$$\frac{\text{stddev}(\eta_{comb})}{\bar{Y}_{comb}} = \tilde{f}(c_1, \dots, c_N) = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^N c_i^2 b_i^2}}{\bar{X}_{true} \sum_{i=1}^N c_i a_i} \stackrel{!}{=} \min .$$

Der Verlauf von $\tilde{f}$ ist etwas anders als der von f , das ein weiteres Extremum (ein endliches lokales Maximum bei vollständigem Eliminieren des wahren Feldes) aufweist. Die Lage (nicht der Wert) des Minimums hinsichtlich der c_k ist aber bei f und $\tilde{f}$ gleich. Es spielt also zur Berechnung der Wichtungsfaktoren keine Rolle, ob die relative Fehlervarianz oder $\text{var}(\eta_{comb})/\bar{Y}_{comb}^2$ als Fehlermaß gewählt wird. Da erstere nicht vom Mittelwert abhängt, dessen Fehler hier prinzipiell nicht bestimmt werden kann, wird in dieser Arbeit weiterhin die relative Fehlervarianz als Maß verwendet.

4.2.3 Behandlung von Ausreißern

Generell sollten statistische Größen wie z. B. der Mittelwert oder die hier betrachteten Musterfehler möglichst nicht von einzelnen falschen Werten, so genannten Ausreißern, abhängen. Diese Eigenschaft wird als Robustheit bezeichnet. Die exakte Identifizierung von Ausreißern ist jedoch nicht immer möglich. Im einfachsten Fall werden der jeweils größte und kleinste Wert einer Stichprobe vor der Berechnung der gewünschten Größe herausgenommen; darüber hinaus gehende Verfahren sind stets auf Annahmen über die der Stichprobe zugrunde liegende Verteilung angewiesen. Eine robuste Alternative für den Mittelwert ist der Median.

Die hier zur Kombination der Felder benutzten Musterfehler e_{ii} sind Eigenschaften der Gesamtfelder X_i , sie lassen sich nicht einzelnen Gitterpunkten zuordnen. Schon einzelne Ausreißer können, wenn sie groß genug sind, die Korrelationen deutlich verschlechtern und den Musterfehler deutlich erhöhen. Um solche Punkte zu identifizieren, können die Fehler zunächst für den gesamten Datensatz und dann unter Auslassung jeweils eines Punktes bestimmt werden. Dieses Vorgehen zur Bestimmung des Einflusses einzelner Punkte auf den Musterfehler entspricht dem *Jackknife*-Verfahren [11].

Das Herausnehmen eines Punktes kann sowohl die Varianz des Gesamtfeldes wie auch die des Fehlerfeldes verändern. Um diese Effekte sauber zu trennen, soll nicht die Änderung der relativen Fehlervarianz bei Herausnahme eines Punktes als Kriterium dienen, sondern die Änderung der absoluten Fehlervarianz, die sich als Produkt der relativen Fehlervarianz mit der Varianz der Größe ergibt. Es wird für jedes Feld X_i an jedem Punkt l ein

$$\Delta e_{ii}^l := \frac{E_{ii}^{(l)} - E_{ii}}{E_{ii}} = \frac{e_{ii}^{(l)} \text{var}(X_i^{(l)}) - e_{ii} \text{var}(X_i)}{e_{ii} \text{var}(X_i)}$$

bestimmt; die Notation $y^{(l)}$ meint die Größe y unter Auslassung des Punktes l . Die Normierung auf den Gesamtfehler des Feldes dient der besseren Vergleichbarkeit von Änderungen der Fehler mehrerer Felder. Falsche Werte in den Feldern X_i führen zu Ausreißern in den Feldern Δe_{ii} und sollen dort detektiert werden.

Wie oben bereits erwähnt muss für statistische Verfahren zur Erkennung von Ausreißern die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Grundgesamtheit bekannt sein, aus der die betrachtete Stichprobe realisiert ist. Hat diese Verteilung extrem weite Ausläufer zu großen oder kleinen Werten, dann gehören auch in der realisierten Häufigkeitsverteilung weit außerhalb liegende Werte zu den regulären Werten. Bei einer kompakten Wahrscheinlichkeitsverteilung der Grundgesamtheit müßten solche Werte hingegen als Ausreißer bezeichnet werden.

Unter der Annahme, dass die Δe_{ii}^l normalverteilt sind, können Ausreißer z. B. mit dem Grubbs-Test identifiziert werden [14]. Dabei wird die Nullhypothese H_0 : „ Δe_{ii}^l ist kein Ausreißer“ zum Signifikanzniveau α verworfen, wenn gilt:

$$\frac{\overline{\Delta e_{ii}} - \Delta e_{ii}^l}{\text{stddev}(\Delta e_{ii})} > \frac{M-1}{\sqrt{M}} \sqrt{\frac{t_{(\frac{\alpha}{2M}, M-2)}^2}{M-2 + t_{(\frac{\alpha}{2M}, M-2)}^2}}, \quad (4.12)$$

M : Stichprobengröße, $t_{(\alpha, M)}$: Student-Verteilung.

Das Signifikanzniveau α gibt die Irrtumswahrscheinlichkeit an: In $\alpha \cdot 100\%$ aller Fälle wird die Nullhypothese fälschlich verworfen, das heißt, wird ein Punkt fälschlich als Ausreißer identifiziert. Der Test wird hier als einseitiger Test für Punkte verwendet, deren Herausnahme den Musterfehler verringert ($\Delta e_{ii}^l < 0$).

Sind die Ausreißer einmal als solche identifiziert, können sie gesondert behandelt werden. Zunächst werden alle Gitterpunkte betrachtet, an denen in keinem der Teilfelder ein Ausreißer gefunden wurde. An diesen Punkten werden die Fehlervarianzen und -Kovarianzen der Einzelfelder berechnet, die zur Kombination

verwendet werden. Dabei wird die Annahme gemacht, dass diese Werte robuste Schätzer für die Gesamtfelder sind. Für diesen Teil der Punkte wird auch das Kombinationsfeld aus allen N Feldern bestimmt, das nun allerdings Lücken enthält.

An den Stellen, an denen jeweils ein Feld X_i Ausreißer enthält, werden – mit der ohne Ausreißer berechneten Fehlerkovarianzmatrix – Wichtungsfaktoren zur Kombination der restlichen $N - 1$ Felder X_j , $j \neq i$ und die zugehörigen Kombinationsfehler bestimmt. Je nach Anzahl der Felder N könnten an Gitterpunkten, an denen in bis zu $n \leq (N - 2)$ Feldern Ausreißer gefunden werden, Kombinationsfelder aus den $N - n$ anderen Feldern gebildet werden. Falls tatsächlich solche Mengen an Ausreißern auftreten sollten, muss man sich natürlich fragen, ob das Signifikanz-Kriterium passend gewählt ist.

Das neue Feld wird schließlich aus den einzelnen Teilgebieten zusammengesetzt; für den Musterfehler des neuen Feldes wird der mit der jeweiligen Anzahl Gitterpunkte gewichtete Mittelwert der Musterfehler der Teilfelder gebildet.

4.3 Zusammenfassung der Methode

Die einzelnen Teilschritte bei der Kombination von N Feldern X_i zu einem neuen Feld X_{comb} mit minimalem Musterfehler e_{comb} werden hier noch einmal zusammengefasst:

1. Berechnung der Korrelationskoeffizienten der Felder,
2. Berechnung der relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen der Felder,
3. Bestimmung des Einflusses jedes einzelnen Gitterpunktes auf die Musterfehler der Felder,
4. Identifizierung der Gitterpunkte, an denen kein Feld Ausreißer aufweist, dort:
 - (I) Berechnung der *robusten* relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen der Felder,
 - (II) Transformation auf Felder mit unkorrelierten Fehlern,
 - (III) Berechnung der Wichtungsfaktoren,
 - (IV) Berechnung des Musterfehlers der Kombination,
 - (V) Rücktransformation der Wichtungsfaktoren,
5. Falls Ausreißer vorkommen:
 - (i) Durchführen der Punkte (II) – (V) jeweils ohne das Feld, das dort Ausreißer aufweist,
 - (ii) Zusammensetzen der verschiedenen Kombinationsfelder,
 - (iii) Berechnen des Gesamt-Musterfehlers,
6. Eventuell manuell: Multiplikation des Kombinationsfeldes mit (-1) .

4.4 Beispiel

Die in diesem Kapitel entwickelte Methode soll nun anhand eines Beispiels mit Zufallszahlen veranschaulicht werden.

Erzeugung der Einzelfelder

Die im Beispiel betrachteten Größen sollen Felder der Dimension 70×20 sein, sie bestehen also aus $N = 1400$ Gitterpunkten. Da die in späteren Kapiteln betrachteten Größen globale Säulendichte- oder Emissionsfelder sein werden, wurden die Beispielfelder auf die den Bereich $[-180, 180]$, $[-90, 90]$ projiziert. Das wahre Feld $X_{true} \propto \sin(2y)$ wurde so skaliert, dass es eine Standardabweichung von Eins hat (Abbildung 4.1 a). Weiterhin wurden drei unabhängige Fehlerfelder η_1 , η_2 , η_3 aus normalverteilten Zufallszahlen mit Mittelwert Null und Standardabweichung Eins (Verteilung $N(0; 1)$) generiert; zur visuellen Unterscheidbarkeit wurde Feld η_3 durch Faltung mit dem Kern

$$K = \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \end{pmatrix}$$

geglättet (siehe Anhang B) und entsprechend neuskaliert (Abbildung 4.1 b) – d)). Aus wahren Feld und Fehlerfeldern wurden vier Felder generiert:

$$\begin{aligned} X_1 &= X_{true} + 0.5\eta_1 \\ X_2 &= X_{true} + 0.4\eta_2 \\ X_3 &= X_{true} + 0.6\eta_3 \\ X_4 &= X_{true} + 0.8\eta_3 , \end{aligned} \tag{4.13}$$

in Feld X_3 wurden zusätzlich sieben Ausreißer eingebaut, indem der Wert 4 addiert wurde (Abbildung 4.1 e) – h)). Der Vorfaktor vor dem wahren Feld wurde der Übersicht halber für alle Felder gleich Eins gesetzt. Die Fehler der Felder X_1 , X_2 , X_3 sowie X_1 , X_2 , X_4 sind jeweils unabhängig, Felder X_3 und X_4 weisen gemeinsame Fehler auf.

Bestimmung der Musterfehler

In diesem konstruierten Beispiel lassen sich die tatsächlichen relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen ohne die Ausreißer aus den Vorfaktoren b_i der Fehlerfelder η_i durch Einsetzen der Konstruktionsgleichungen 4.13 in die Fehlerdefinitionen 4.5 und 4.4 berechnen:

$$e_{ii} = \frac{b_i^2}{1 + b_i^2} , \quad e_{ij} = \frac{b_i b_j}{1 + b_i b_j} .$$

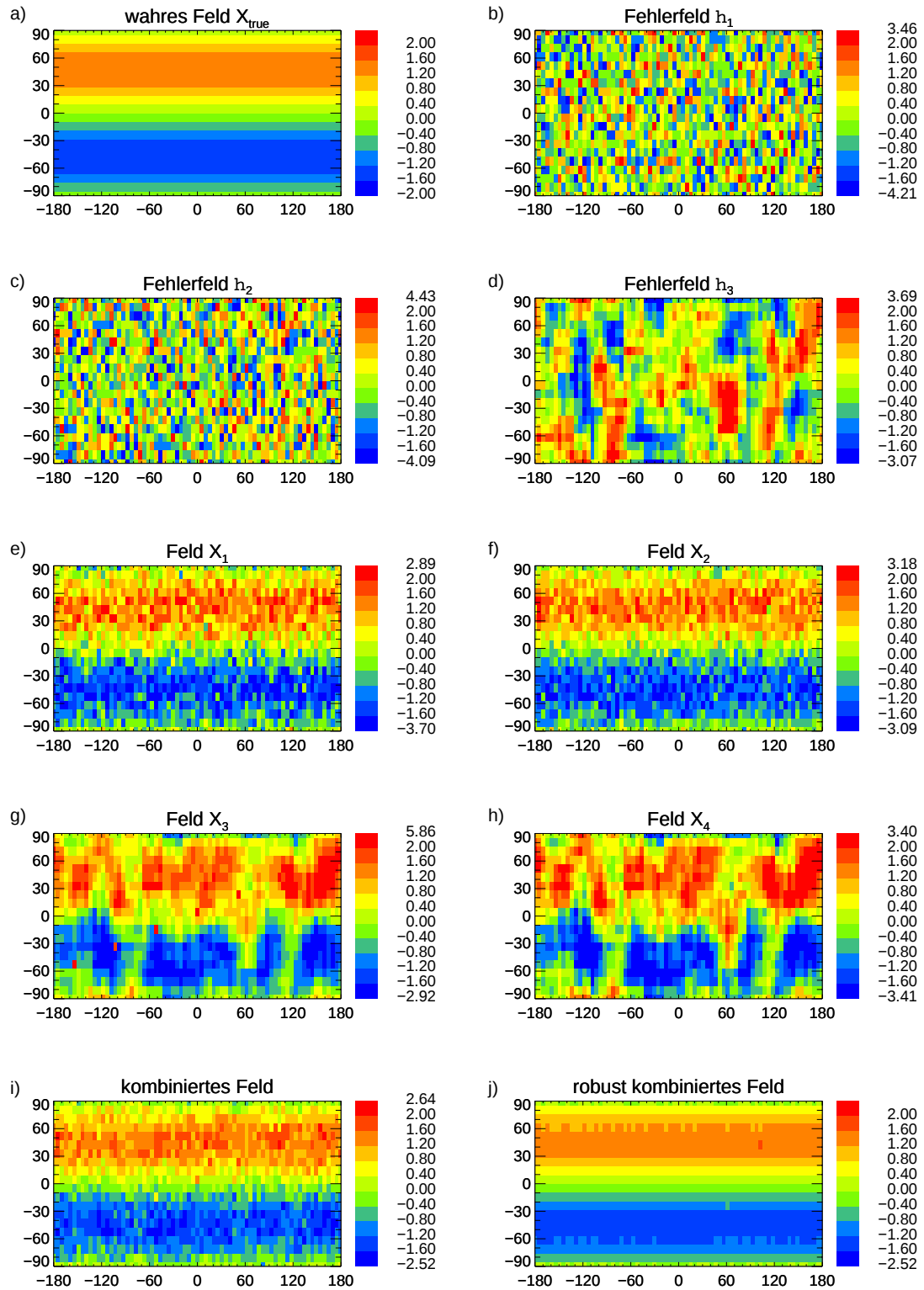


Abbildung 4.1: a) wahres Feld, b) – d) Fehlerfelder (siehe Text); e) – h) Linear-kombinationen aus wahrem Feld und Fehlerfeldern, Feld X_3 mit zusätzlich eingebauten Ausreißern; i) Kombination mit minimalem Musterfehler, j) Kombination mit minimalem Musterfehler unter Berücksichtigung von Ausreißern

	e_{11}	e_{22}	e_{33}	e_{44}	e_{24}	e_{34}
tatsächlich	0.20	0.14	0.27	0.39	0.00	0.32
berechnet	0.20 ± 0.02	0.13 ± 0.02	0.34 ± 0.04	0.42 ± 0.03	0.00 ± 0.00	0.35 ± 0.02
robust berechnet	0.19 ± 0.02	0.14 ± 0.02	0.27 ± 0.02	0.40 ± 0.02	0.00 ± 0.00	0.33 ± 0.02

Tabelle 4.1: Musterfehler für die Beispielfelder: relative Fehlervarianzen und -Kovarianzen (die restlichen e_{ij} waren auf 0 gesetzt); die Fehlerangaben für alle Werte wurden mit dem *Bootstrap*-Verfahren bestimmt und entsprechen einer Standardabweichung

Die Werte befinden sich auf zwei Nachkommastellen gerundet in Tabelle 4.1.

Nun sollen die Fehlerwerte mit Gleichung 4.6 berechnet werden. Sie lautet für vier Felder:

$$\begin{aligned}
 R_{12}^2(1 - e_{12})^2 &= (1 - e_{11})(1 - e_{22}) \\
 R_{13}^2(1 - e_{13})^2 &= (1 - e_{11})(1 - e_{33}) \\
 R_{23}^2(1 - e_{23})^2 &= (1 - e_{22})(1 - e_{33}) \\
 R_{14}^2(1 - e_{14})^2 &= (1 - e_{11})(1 - e_{44}) \\
 R_{24}^2(1 - e_{24})^2 &= (1 - e_{22})(1 - e_{44}) \\
 R_{34}^2(1 - e_{34})^2 &= (1 - e_{33})(1 - e_{44}) .
 \end{aligned}$$

Die benötigten Korrelationskoeffizienten lassen sich für die Realisierungen der Felder einfach berechnen und sind in Tabelle 4.2 dargestellt. Bei Vorgabe von $e_{12} = 0$, $e_{13} = 0$, $e_{14} = 0$ sowie $e_{23} = 0$ lässt sich dieses System aus sechs Gleichungen und zehn Unbekannten lösen. Es kann nicht zusätzlich $e_{24} = 0$ vorgegeben werden, da das Gleichungssystem dann überbestimmt wäre. Dies führt aber nicht zu einem Widerspruch, da auch die Rechnung den Wert $e_{24} = 0.000 \pm 0.002 \approx 0$ sehr exakt liefert.

Die Werte der berechneten Musterfehler befinden sich in Tabelle 4.1 in der Zeile unter den tatsächlichen Werten. Die angegebenen Fehler wurden mit dem *Bootstrap*-Verfahren bestimmt, siehe Anhang A, und entsprechen einer Standardabweichung. Der Vergleich mit den tatsächlichen Fehlerwerten für die Felder ohne Ausreißer zeigt, dass der Musterfehler von Feld X_3 durch die Ausreißer vergrößert wird, die anderen Fehlervarianzen und -Kovarianzen stimmen sehr gut überein.

R	X_2	X_3	X_4
X_1	0.83	0.74	0.68
X_2		0.77	0.71
X_3			0.96

Tabelle 4.2: Korrelationskoeffizienten R_{ij} der Beispielfelder

w_1	w_2	w_3	w_4
0.32 ± 0.06	0.51 ± 0.08	0.24 ± 0.60	-0.07 ± 0.51

Tabelle 4.3: Wichtungsfaktoren w_i zur Kombination der Beispielfelder, basierend auf den ohne Berücksichtigung von Ausreißern berechneten Fehlervarianzen in Tabelle 4.1; daraus resultierender Musterfehler des Kombinationsfelds: $e_{comb} = 0.07 \pm 0.01$; Fehlerangaben: *Bootstrap*-Verfahren, eine Standardabweichung

Bestimmung der Wichtungsfaktoren und des kombinierten Feldes

Mit diesen Fehlervarianzen und -Kovarianzen können, wie in Abschnitt 4.2.2 beschrieben, Wichtungsfaktoren bestimmt werden, die den Musterfehler des kombinierten Feldes minimieren. Diese Werte sind in Tabelle 4.3 zusammengestellt. Wie erwartet geht das Feld X_2 , da es den geringsten Fehler hat, mit einem Gewicht von $w_2 = 0.51$ am stärksten ein, gefolgt von Feld X_1 mit einem Gewicht von $w_1 = 0.32$ und Feld X_3 mit $w_3 = 0.24$. Das Feld mit dem größten Fehler, X_4 , geht in die Kombination sogar leicht negativ ein: $w_4 = -0.07$; durch die hohe Fehlerkovarianz mit Feld X_3 lässt sich durch Subtraktion von Feld X_4 der Fehler von X_3 zum Teil ausgleichen. Dieser Effekt wird nach der Berücksichtigung von Ausreißern noch weitaus deutlicher auftreten, siehe unten.

Auffällig bei den Fehlerangaben für die Wichtungsfaktoren sind die extrem großen Fehler von w_3 und w_4 . Dies ist wiederum bedingt durch die hohe Fehlerkovarianz der zugehörigen Felder. Wie in Anhang A beschrieben, wird bei der Fehlerberechnung mittels des *Bootstrap*-Verfahrens in vielen Wiederholungsschleifen jeweils ein Teil der Gitterpunkte herausgenommen und durch andere ersetzt. Über diese Schleifen werden Mittelwert und Standardabweichung bestimmt. Wenn nun die herausgenommenen Punkte alle Ausreißer beinhalten, dann haben die Felder X_3 und X_4 nur gemeinsame Fehler, was zu deutlich anderen Wichtungsfaktoren führt (siehe Tabelle 4.4 und Beschreibung in den folgenden Absätzen). Daher ist hier die Streuung besonders hoch.

Das Kombinationsfeld ist in Abbildung 4.1 i) dargestellt. Schon beim Hinschauen sieht man, dass die zonale Struktur des wahren Feldes X_{true} im Kombinationsfeld X_{comb} stärker ausgeprägt ist als in den vier Einzelfeldern X_i . Einige der Ausreißer sind noch zu erkennen, aber schwächer ausgeprägt als in Feld X_3 .

Der Musterfehler des kombinierten Feldes X_{comb} liegt bei $e_{comb} = 0.07 \pm 0.01$ und ist damit deutlich kleiner als der kleinste Fehler unter den Einzelfeldern, $e_{22} = 0.13 \pm 0.02$; durch die Kombination ist also eine Verbesserung zu erzielen.

Da das wahre Feld in diesem Beispiel aus der Konstruktion bekannt ist, kann der tatsächliche Fehler der Kombination aus der Korrelation mit dem wahren Feld X_{true} berechnet werden: $e_{comb,true} = 1 - R_{X_{true},X_{comb}}^2 = 0.08$. Die Werte stimmen gut überein.

Die Fehler für die Wichtungsfaktoren und die relative Fehlervarianz des neuen Feldes wurden, wie schon die für die Fehler der Einzelfelder, mit dem in Anhang A vorgestellten *Bootstrap*-Verfahren bestimmt und entsprechen einer Standardabweichung. Auffällig ist, dass der Fehler des Kombinationsfelds viel genauer

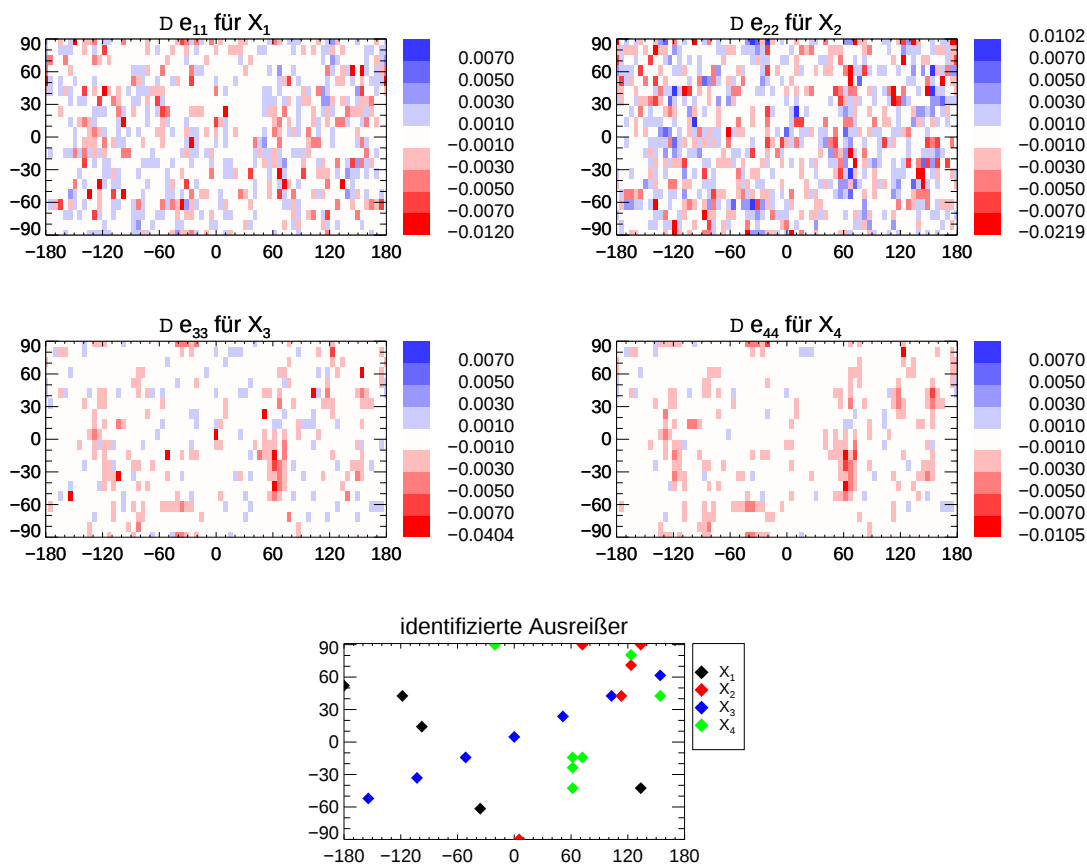


Abbildung 4.2: oben: Einfluss der einzelnen Gitterpunkte auf die Musterfehler der vier Beispielfelder, rot: Herausnehmen dieses Gitterpunkts verkleinert den Fehler des Feldes, blau: Herausnehmen vergrößert den Fehler des Feldes; **unten:** in den Feldern identifizierte Ausreißer, farblich nach Feldern kodiert

bestimmbar ist als die Wichtungsfaktoren und die Fehler der Einzelfelder. Das liegt daran, dass das Minimum des Musterfehlers des kombinierten Feldes e_{comb} hinsichtlich der Wichtungsfaktoren w_i relativ flach ist.

Einfluss einzelner Gitterpunkte auf den Gesamtfehler

Der Einfluss jedes einzelnen Gitterpunktes auf die Fehler der vier Felder wurde durch Berechnen der absoluten Fehler mit und ohne diesen Punkt (siehe Abschnitt 4.2.3) bestimmt; die Differenz ist in Abbildung 4.2 in den oberen vier Teilabbildungen dargestellt. Für die Punkte, deren Herausnehmen den Musterfehler verkleinert, wird die Differenz negativ, und sie sind in der verwendeten Farbskala rot eingefärbt. In Feld Δe_{33} springen die Ausreißer sofort in Auge, ihr Einfluss auf den Fehler von Feld X_3 ist höher als bei allen anderen Punkten. Weiterhin ist zu erahnen, dass einige der Ausreißer in Feld X_3 auch die Musterfehler der anderen Felder beeinflussen, wenn auch in deutlich geringerem Ausmaß.

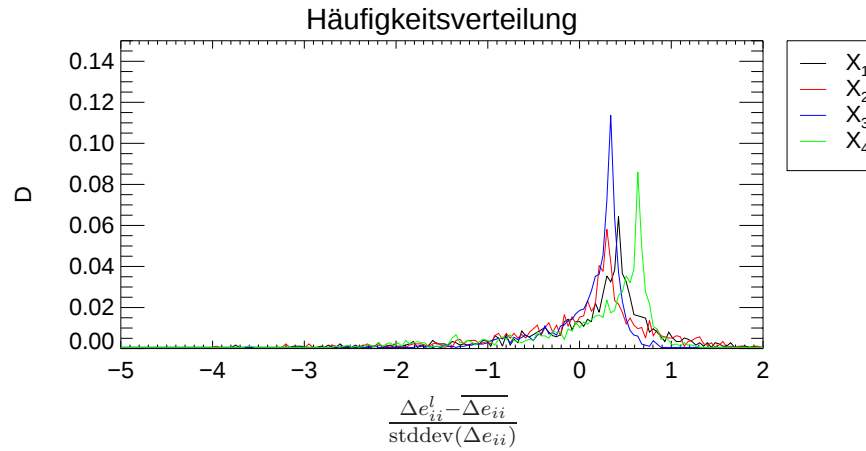


Abbildung 4.3: Häufigkeitsverteilung D der standardisierten Δe_{ii} der Beispieldatensätze bei Herausnehmen jeweils eines Punktes

Identifizierung von Ausreißern

Die Ausreißer in den vier Feldern Δe_{ii} oben in Abbildung 4.2 sollen zum Signifikanzniveau $\alpha = 0.005$ bestimmt werden. Dieses Signifikanzniveau bedeutet, dass in 0.5% aller Fälle Ausreißer fälschlich als solche erkannt werden. Bei 1400 Datenpunkten ergibt das im Mittel sieben fälschlich erkannte Ausreißer, was der Zahl der tatsächlichen Ausreißer entspricht.

Zur besseren optischen Vergleichbarkeit wurden die Δe_{ii} standardisiert (Subtraktion des Mittelwerts, Division durch die Standardabweichung), dann wurde ihre Häufigkeitsverteilung in Abbildung 4.3 dargestellt.

Da einzelne stark verrauschte Punkte den Fehler stärker vergrößern als einzelne richtige Punkte den Fehler verkleinern, ist die Verteilung schief: Die Beträge der maximal negativen Werte sind deutlich größer als die der maximal positiven Werte. Da weiterhin die Summe über alle Fehleränderungen verschwindet (der Mittelwert der absoluten Fehler unter Auslassung jeweils eines Punktes ist gleich dem absoluten Fehler bei Berücksichtigung aller Punkte):

$$\sum_l \Delta e_{ii}^l = 0 ,$$

liegt das Maximum der Verteilung nicht bei Null, sondern ist zu positiven Werten verschoben. Je stärker X_i verrauscht wurde, desto asymmetrischer ist die Verteilung und desto weiter im Bereich positiver x-Werte liegt das Maximum der Verteilung der Δe_{ii} .

Leider sind die Δe_{ii} nicht normalverteilt, deshalb kann der Grubbs-Test (Gleichung 4.12) nicht direkt angewandt werden. Aber auch hier soll geprüft werden, ob die mit der Standardabweichung normierte Differenz des potentiellen Ausreißers vom Mittelwert größer als eine Testgröße $T_{\alpha,M}$ ist, die von der Stichprobengröße

M und vom Signifikanzniveau α abhängen soll:

$$\frac{\overline{\Delta e_{ii}} - \Delta e_{ii}^l}{\text{stddev}(\Delta e_{ii})} > T_{\alpha, M} . \quad (4.14)$$

Beim Grubbs-Test liefert die rechte Seite der Relation für $\alpha = 0.005$ und $M = 1400$ den Wert $T_{\alpha, M} = 4.48$.

Da die Verteilung der X_i und der η_i in diesem Beispiel bekannt ist (sie sind normalverteilt), kann das gesuchte $T_{\alpha, M}$ zu $\alpha = 0.005$ und $M = 1400$ empirisch per Monte-Carlo-Simulation ermittelt werden. Die Frage ist, bei welcher Wahl von T in vier Datensätzen der Größe $M = 1400$ nach Gleichung 4.13 ohne zusätzlich eingebaute Ausreißer im Mittel 0.5% fälschliche Ausreißer gefunden werden. Dazu wurden für verschiedene T jeweils 10000 Realisierungen per Zufallszahlengenerator erzeugt und jeweils die mittlere Zahl der gefundenen Ausreißer bestimmt. Die mittlere Anzahl der dabei gefundenen Ausreißer hängt noch vom Fehler der einzelnen Datensätze ab, da dieser, wie oben gesehen, auch die Lage des Maximums der Verteilung beeinflusst. Die Unterschiede in der mittleren Zahl gefundener Ausreißer sind jedoch kleiner als die statistische Schwankung bei einer Stichprobengröße von 1400 Datenpunkten: Für die vier Größen aus Gleichung 4.13 wurden bei Wahl von $T = 4.58$ im Mittel folgende Zahlen gefunden:

$$\begin{aligned} X_1 &: 7.0 \pm 2.1 \text{ Ausreißer} \\ X_2 &: 5.8 \pm 2.0 \text{ Ausreißer} \\ X_3 &: 7.9 \pm 2.1 \text{ Ausreißer} \\ X_4 &: 8.4 \pm 2.2 \text{ Ausreißer} . \end{aligned}$$

In Abbildung 4.4 sind die zweidimensionalen Schnitte durch den vierdimensionalen Raum dargestellt, der durch die Δe_{ii} aufgespannt wird. In den Scatterplots sind jeweils die als Ausreißer identifizieren Punkte des auf der y-Achse aufgetragenen Feldes blau und die des auf der x-Achse aufgetragenen Feldes rot eingefärbt. Die in Feld X_3 eingebauten Ausreißer sind deutlich von den anderen Punkten abgesetzt, die fälschlich gefundenen Ausreißer in den anderen Feldern bilden die Ränder der Punktwolken in den Scatterplots. Dadurch dass die Varianz der Δe_{33} durch die eingebauten Ausreißer signifikant vergrößert wird, werden in X_3 keine falschen Ausreißer gefunden. Die identifizierten Ausreißer sind unten in Abbildung 4.2 farblich nach Feldern kodiert dargestellt.

Berücksichtigung der Ausreißer bei der Kombination

Das Kombinationsfeld X_{comb} wurde mit einem Musterfehler von $e_{33} = 0.34$ für Feld X_3 gerechnet, auch wenn dieser hohe Wert nur aufgrund einiger weniger Ausreißer zustandekommt. Jetzt soll versucht werden, durch die gesonderte Behandlung von Ausreißern eine weitere Verbesserung zu erzielen.

Wie in Abschnitt 4.2.3 beschrieben, werden die relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen für alle vier Felder an den Gitterpunkten bestimmt, an denen in keinem der Felder ein Ausreißer gefunden wurde. Die Werte der damit robust

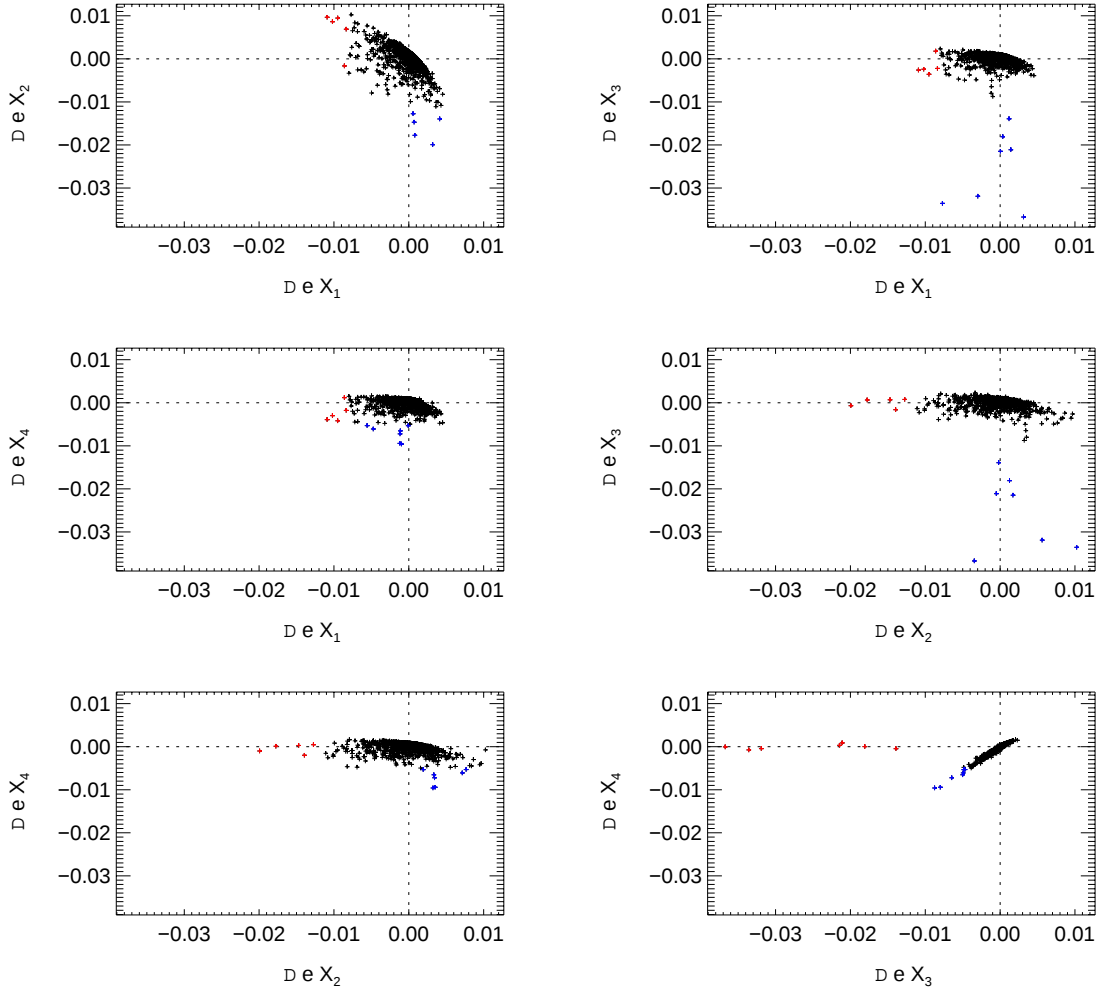


Abbildung 4.4: Zweidimensionale Schnitte durch den von den Δe_{ii} aufgespannten Raum; rot: im Feld entlang der x-Achse identifizierte Ausreißer, blau: im Feld entlang der y-Achse identifizierte Ausreißer

berechneten Musterfehler sind in Tabelle 4.1 in der untersten Zeile dargestellt. Jetzt stimmt auch der Fehler für Feld X_3 gut mit dem aus der Konstruktion bekannten tatsächlichen Wert (oberste Zeile der Tabelle) überein.

An den Gitterpunkten ohne Ausreißer (diese bilden fast das gesamte Feld) können alle vier Felder kombiniert werden. Die optimalen Wichtungsfaktoren sind auf zwei Nachkommastellen genau in der obersten Zeile von Tabelle 4.4 aufgelistet. Es fällt auf, dass in die robuste Kombination die Felder X_1 und X_2 fast nicht mehr eingehen, obwohl ihre individuellen Musterfehler immer noch kleiner sind als die der Felder X_3 und X_4 . Weiterhin fällt der jetzt sehr stark negative Wichtungsfaktor w_4 für Feld X_4 auf. Beides liegt daran, dass ohne Ausreißer der gesamte Fehler der Felder X_3 und X_4 gemeinsamer Fehler ist. Aus der Konstruktion für die Beispielfelder X_3 und X_4 in Gleichung 4.13 ergibt sich:

$$4X_3 - 3X_4 = X_{true}$$

Aus- reißer	w_1	w_2	w_3	w_4	M	e_{comb}
keine	0.03 ± 0.06	0.04 ± 0.08	3.69 ± 0.44	-2.76 ± 0.37	1376	0.01 ± 0.01
X_1	—	0.04 ± 0.08	3.83 ± 0.43	-2.86 ± 0.35	5	0.01 ± 0.01
X_2	0.03 ± 0.06	—	3.83 ± 0.45	-2.86 ± 0.34	5	0.01 ± 0.01
X_3	0.35 ± 0.06	0.52 ± 0.09	—	0.13 ± 0.03	7	0.07 ± 0.03
X_4	0.32 ± 0.06	0.47 ± 0.09	0.21 ± 0.05	—	7	0.07 ± 0.02

Tabelle 4.4: Wichtungsfaktoren w_i zur Kombination der Beispielfelder, basierend auf den robust berechneten Fehlervarianzen in Tabelle 4.1; keine Ausreißer: Kombination aller vier Felder; Gitterpunkte, an denen jeweils ein Feld ausreißt: Kombination aus den restlichen drei Feldern; außerdem: Anzahl M der Gitterpunkte im jeweiligen Gebiet und Musterfehler des Kombinationsfelds e_{comb} ; Fehlerangabe: *Bootstrap*-Verfahren, eine Standardabweichung

Der Anteil des gemeinsamen Fehlers am Gesamtfehler ce_i , $i = 3, 4$ (siehe Gleichung 4.7) lässt sich in diesem Fall auch aus den relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen berechnen, die Relation für ce_i in Gleichung 4.8 reduziert sich bei Einsetzen der robust berechneten e_{33} , e_{44} und e_{34} zum eindeutigen $1 \geq ce \geq 1$. Zum Vergleich: bei Einsetzen der nicht robust berechneten Werte lautet die Relation $1 \geq ce \geq 0.78$.

Ohne Ausreißer und bei unendlicher Länge der Datensätze ließe sich das gemeinsame Fehlerfeld exakt eliminieren und damit das wahre Feld exakt und ohne Fehler rekonstruieren. Da die Felder X_i aber nur Realisierungen endlicher Länge der zugrundeliegenden stochastischen Variablen sind, und da eine weitere Unschärfe durch die fälschlich gefundenen Ausreißer hinzukommt, wird dies nur näherungsweise erreicht. Obwohl die Felder X_1 und X_2 in die Konstruktion fast nicht eingehen, sind sie für die Analyse unerlässlich: Nur die Unabhängigkeit der Fehler dieser Felder untereinander und von den Fehlern der anderen beiden Felder ermöglicht es, die anderen beiden Felder optimal zu kombinieren.

Wie in Abschnitt 4.2.3 beschrieben, werden an Gitterpunkten, an denen in jeweils einem Feld Ausreißer gefunden wurden, die bestmöglichen Kombinationen aus den drei anderen Feldern gebildet (siehe Tabelle 4.4). An den Gitterpunkten, an denen die Felder X_1 oder X_2 (fälschlich gefundene) Ausreißer aufweisen, ist die Kombination ähnlich wie die aller vier Felder durch die Differenz der Felder X_3 und X_4 dominiert. An den Gitterpunkten, an denen eines dieser Felder wegen Ausreißern nicht in die Kombination eingehen kann, bekommt Feld X_2 wieder das größte Gewicht, gefolgt von Feld X_1 .

Aus den fünf Kombinationen (eine aus vier Feldern und vier Kombinationen aus jeweils drei Feldern bei Wegfall eines Ausreißerfeldes) wird schließlich das robuste Kombinationsfeld X_{robust} zusammengesetzt und ist in Abbildung 4.1 j) dargestellt. Schon beim Hinsehen sieht die zonale Struktur des wahren Felds hier deutlich weniger verrauscht aus als beim Kombinationsfeld ohne Berücksichtigung der Ausreißer. Der aus den Musterfehlern der fünf Kombinationen mit der jeweiligen Anzahl Gitterpunkte gewichtete Mittelwert ergibt den Fehler

des neuen Feldes, das Ergebnis lautet: $e_{robust} = 0.007 \pm 0.006$, die Fehlerfelder lassen sich tatsächlich fast ganz eliminieren. Dies wird wiederum durch Korrelation mit dem in diesem Beispiel bekannten wahren Feld sehr gut bestätigt: $1 - R_{X_{true}, X_{robust}}^2 = 0.002$. Die Berücksichtigung von Ausreißern bei der Kombination bewirkt in diesem – natürlich zu diesem Zweck konstruierten – Beispiel also nochmal eine deutliche Verbesserung.

Zum Abschluss dieses Beispiels sei noch ein *caveat* angeführt: Zu viele fälschlich identifizierte Ausreißer in einem Feld können zu einer systematischen Unterschätzung des Fehlers dieses Feldes führen, was sich in den Fehler für das kombinierte Feld fortpflanzen kann. Dies lässt sich wie folgt verstehen: Der Musterfehler eines Feldes wird zunächst aus allen Gitterpunkten berechnet. Der Ausreißertest wird einseitig durchgeführt, es werden nur Punkte herausgenommen, deren Wegfall den Musterfehler erniedrigt. Bei jedem gefundenen Ausreißer wird der resultierende Fehler damit kleiner, was eine systematische Unterschätzung bedeutet, wenn die gefundenen Punkte tatsächlich keine Ausreißer sind. Dies muss bei der Wahl des Signifikanzniveaus α berücksichtigt werden. In diesem Beispiel ist die Wahl von $\alpha = 0.005$ ungefährlich, wie der Vergleich mit dem bekannten wahren Feld zeigt.

Kapitel 5

Anthropogen dominierte NO₂–Säulendichtefelder

Die in Kapitel 4 entwickelte Methode zur Bestimmung von Musterfehlern und zur Kombination von Feldern soll nun auf die Jahresmittelwerte der NO₂–Säulendichten in durch anthropogene Emissionen dominierten Gebieten angewandt werden. Das Ziel dabei ist die Optimierung des globalen Verteilungsmusters der Säulen. Dazu werden vier Felder betrachtet, zwei Modellrechnungen und zwei Satellitenauswertungen.

5.1 Datenfelder

Als Satellitenfelder werden, ebenfalls wie in Kapitel 3, die GOME Auswertungen aus dem IUP Heidelberg von Leue et al. [24] (im folgenden GOME Leue genannt) sowie aus dem IUP Bremen von Richter & Burrows [34] (im folgenden GOME Richter genannt) verwendet. Wie dort wurde die Auflösung der GOME–Felder durch Interpolation in die der MOZART–Rechnungen überführt.

Die erste in die Analyse eingehende Modellrechnung ist der schon aus Kapitel 3 bekannte MOZART–Lauf auf Basis der EDGAR–Emissionen in Version 3.

Da für die Korrelations–Fehleranalyse möglichst viele Felder mit möglichst unabhängigen Fehlern benötigt werden, wurde – wiederum von Olaf Stein (ICG-II, FZ-Jülich) – eine weitere MOZART–Modellrechnung durchgeführt, in der die anthropogenen Emissionen ersetzt wurden durch eine auf den Satellitenaufnahmen der Lichter Welt bei Nacht (OLS/DMSP) basierende Quelle, siehe Absatz 2.3 in Kapitel 3. Durch die Unabhängigkeit der Muster der anthropogenen Quellen in beiden Modellrechnungen werden deren gemeinsame Fehler reduziert.

In Abschnitt 2.3 wurde argumentiert, dass die Korrelation der auf den Lichtern basierenden anthropogenen NO_x–Quelle mit den entsprechenden EDGAR–Emissionen mit $R = 0.79$ einerseits hoch genug ist, um gemeinsame richtige Muster mit der EDGAR–Quelle zu enthalten, und andererseits niedrig genug ist, um an Stellen, an denen EDGAR möglicherweise falsch liegt, neue Informationen liefern zu können. In Tabelle 5.1 sind die räumlichen Korrelationskoeffizienten beider

R_{ij} , global	MOZART Lichter	GOME Richter	GOME Leue
MOZART EDGAR	0.91 ± 0.01	0.75 ± 0.01	0.66 ± 0.01
MOZART Lichter		0.75 ± 0.01	0.68 ± 0.01
GOME Richter			0.85 ± 0.01
R_{ij} , anthropogen	MOZART Lichter	GOME Richter	GOME Leue
MOZART EDGAR	0.82 ± 0.02	0.74 ± 0.02	0.61 ± 0.03
MOZART Lichter		0.70 ± 0.03	0.63 ± 0.03
GOME Richter			0.86 ± 0.01

Tabelle 5.1: Räumliche Korrelationskoeffizienten R_{ij} der vier Säulendichtefelder an den in allen Datensätzen definierten Gitterpunkten (oben) sowie im durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet (unten)

Modellrechnungen mit den Satellitenauswertungen dargestellt, oben global unter Berücksichtigung aller in allen Datensätzen definierten Gitterpunkte, und unten in dem durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet (siehe unten). Hier zeigt sich, dass das Muster der Lichter neben den Gemeinsamkeiten mit EDGAR nicht nur Fehler enthalten kann: Die Korrelation der Modellrechnung auf Basis der Lichterquelle mit GOME Leue ist tendenziell besser, die Korrelation mit GOME Richter zumindest nicht signifikant schlechter als die jeweils entsprechende Korrelation der Modellrechnung mit der EDGAR-Quelle. Die Verwendung der skalierten Lichterkarte als anthropogene NO_x -Quelle ist damit gut begründet.

Betrachtetes Gebiet

Die hier versuchte auch quantitative Analyse der Musterfehler der Felder kann, anders als der direkte Vergleich in Kapitel 3, nur in Gebieten durchgeführt werden, die durch anthropogene Emissionen dominiert werden: Für diese liegen mit EDGAR und den Lichtern zwei unabhängige Schätzungen vor. Außerdem weisen die anthropogenen Quellen nur einen gering ausgeprägten Jahresgang auf, die Betrachtung von Jahresmittelwerten ist dort gerechtfertigt. Eine Analyse, die auch biogene NO_x -Emissionen einschließt, müsste der hohen sowohl intra- wie interannuellen Variabilität insbesondere der Wildfeuer Rechnung tragen und liegt außerhalb des Rahmens dieser Arbeit. Ein Gitterpunkt wird daher nicht berücksichtigt, wenn dort der Mittelwert aus der anthropogenen EDGAR 3 Quelle und der lichterbasierten Quelle kleiner ist als die biogenen Emissionen aus EDGAR.

Auch die über den Ozeanen liegenden Pixel werden vor der Analyse eliminiert, da anzunehmen ist, dass die NO_2 -Säulen dort stärker durch Transport als durch Emissionen beeinflusst werden. Damit nicht viele an der Küste liegende Städte durch dieses Kriterium ausgeschlossen werden, werden alle diejenigen Gitterpunkte beibehalten, bei denen der Landanteil an ihrer Gesamtfläche mindestens 10% beträgt. Ferner sollen die betrachteten Gitterpunkte in allen vier Datensätzen definierte Werte haben. (Da bei GOME Richter Pixel mit einem

Wolkenbedeckungsgrad $> 10\%$ nicht in die Auswertung eingehen, weist der Datensatz an einigen Punkten Lücken auf, siehe Abschnitt 3.1.1.)

Zusammenfassend werden zur Fehleranalyse in diesem Kapitel alle die Punkte betrachtet, an denen gilt:

- alle vier Felder sind definiert,
- $(\text{anthro Lichter} + \text{anthro EDGAR})/2 > \text{bio EDGAR}$,
- Landanteil der Fläche $> 10\%$.

Damit bleiben für die Analyse 1463 Gitterpunkte übrig. Das Beispiel in Absatz 4.4 war mit 1400 Datenpunkten also so gewählt, dass die Datensatzgröße dort in etwa der auch für die Analyse der Säulendichten verwendeten Anzahl Punkte entspricht.

Die Jahresmittelwerte der vier untersuchten Felder sind in Abbildung 5.1 in der Auflösung T63 dargestellt; in Abbildung 5.4 sind die Felder in standardisierter Form (Subtraktion des Mittelwertes, dann Division durch die Standardabweichung) nochmals dargestellt, dort sind die nicht berücksichtigten Gitterpunkte grau maskiert.

5.2 Korrelations–Fehleranalyse

Die Korrelations–Fehleranalyse soll jetzt also an den oben definierten Gitterpunkten für die Jahresmittel der troposphärischen NO_2 –Säulendichten folgender vier Felder durchgeführt werden:

X_1 : MOZART EDGAR

X_2 : MOZART Lichter

X_3 : GOME Richter

X_4 : GOME Leue.

5.2.1 Musterfehler: Wertebereiche

Wie schematisch in Abbildung 5.2 dargestellt, wird Gleichung 4.6 für vier Felder zu einem System aus sechs Gleichungen mit zehn Unbekannten:

$$\begin{aligned}
 \text{(i)} \quad R_{12}^2(1 - e_{12})^2 &= (1 - e_{11})(1 - e_{22}) \\
 \text{(ii)} \quad R_{13}^2(1 - e_{13})^2 &= (1 - e_{11})(1 - e_{33}) \\
 \text{(ii)} \quad R_{23}^2(1 - e_{23})^2 &= (1 - e_{22})(1 - e_{33}) \\
 \text{(iv)} \quad R_{14}^2(1 - e_{14})^2 &= (1 - e_{11})(1 - e_{44}) \\
 \text{(v)} \quad R_{24}^2(1 - e_{24})^2 &= (1 - e_{22})(1 - e_{44}) \\
 \text{(vi)} \quad R_{34}^2(1 - e_{34})^2 &= (1 - e_{33})(1 - e_{44}) .
 \end{aligned}$$

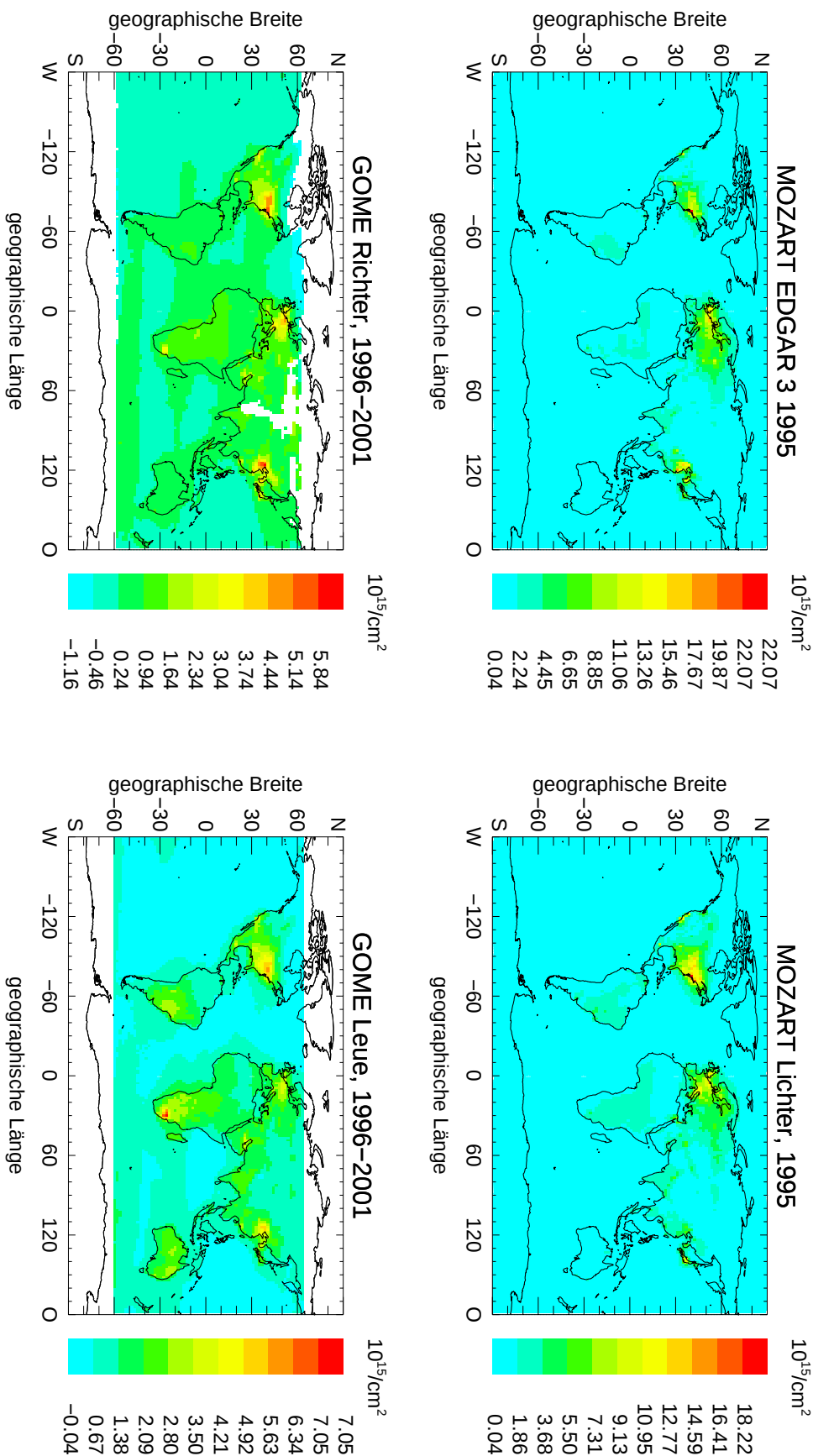


Abbildung 5.1: Jahresmittelwerte troposphärischer NO₂-Säulendichtefelder, Auflösung T63

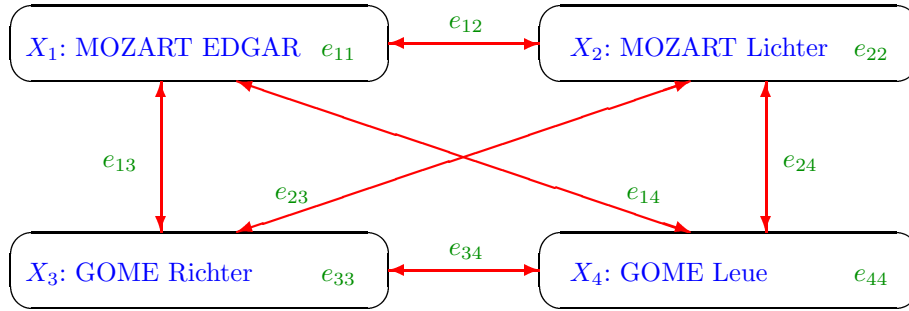


Abbildung 5.2: Bei vier Feldern (blau) wird Gleichung 4.6 zu einem System aus sechs Gleichungen (rot) mit zehn Unbekannten (grün)

Zur Lösung müssen zunächst die räumlichen Korrelationskoeffizienten zwischen den betrachteten Feldern berechnet werden, sie sind in Tabelle 5.1 unten aufgelistet.

Nun wird es sicherlich gemeinsame Fehler zwischen den beiden Modellrechnungen geben, da Fehler des MOZART-Modells in beiden gleichermaßen auftreten. Ebenso werden die beiden Satellitenauswertungen gemeinsame Fehler haben, da die Messungen von demselben Instrument stammen und auch die Auswertungsalgorithmen nicht unabhängig sind.

Die Annahme, dass es keine gemeinsamen Fehler zwischen den Modellrechnungen einerseits und den Satellitenfeldern andererseits gibt, erscheint jedoch nicht unplausibel, da in die hier verwendeten GOME Auswertungen keine Modellrechnungen eingegangen sind. Das entspräche dem Ansatz $e_{13} = e_{14} = e_{23} = e_{24} = 0$.

Leider ist es nicht möglich, die sechs Gleichungen für die verbleibenden sechs Unbekannten zu lösen, da durch diesen Ansatz die Determinante des Gleichungssystems gleich Null wird und es also entweder unendlich viele Lösungen oder gar keine Lösung gibt. Anschaulich wird dies nach Elimination der vier relativen Fehlervarianzen e_{ii} : Durch Bildung von $\frac{(i) \times (vi)}{(ii) \times (v)}$ sowie $\frac{(iii) \times (iv)}{(ii) \times (v)}$ und anschließendes Wurzelziehen bleiben zwei Gleichungen für die sechs relativen Fehlerkovarianzen:

$$\frac{R_{12}R_{34}}{R_{13}R_{24}} = \frac{(1 - e_{13})(1 - e_{24})}{(1 - e_{12})(1 - e_{34})} \quad \text{und} \quad \frac{R_{23}R_{14}}{R_{13}R_{24}} = \frac{(1 - e_{13})(1 - e_{24})}{(1 - e_{23})(1 - e_{14})}.$$

Auf der rechten Seite der zweiten Beziehung tauchen genau die Variablen auf, die oben auf Null gesetzt werden sollten. In diesem Fall müsste das Verhältnis der Korrelationskoeffizienten auf der linken Seite gleich Eins sein. Ist dies erfüllt, so gibt es unendlich viele Lösungen, da immer noch ein Freiheitsgrad übrig ist. Ist es nicht erfüllt, so gibt es überhaupt keine Lösung, das heißt, der Ansatz der Unabhängigkeit der Fehler ist nicht mit den Daten kompatibel.

Nach Einsetzen der Korrelationskoeffizienten ergibt sich für das Verhältnis

$$\frac{R_{23}R_{14}}{R_{13}R_{24}} = 0.92 \pm 0.02$$

Dieser Wert ist signifikant von Eins verschieden (der Fehler wurde mit dem *Bootstrap*-Verfahren berechnet, siehe Anhang, und entspricht einer Standardab-

weichung). Deshalb wird die Annahme „die Fehler sind unabhängig“ modifiziert zu „die Fehler sind *möglichst* unabhängig“, die e_{ij} sollen also möglichst klein sein. Weiterhin wird angenommen, dass die Fehlerkovarianzen gleichmäßig auf die beiden Satellitenauswertungen verteilt sind. Da das Verhältnis der Korrelationskoeffizienten kleiner als Eins ist, bedeutet die erste Annahme, dass die im Nenner auftretenden Fehlerkovarianzen gleich Null gesetzt werden können, der Fehler dann gemäß der zweiten Annahme symmetrisch auf die beiden im Zähler stehenden Fehlerkovarianzen verteilt:

$$e_{23} = e_{14} = 0 \quad \text{und} \quad e_{13} = e_{24} = 1 - \sqrt{\frac{R_{23}R_{14}}{R_{13}R_{24}}} \approx 0.04 .$$

Das bedeutet, dass hier keine gemeinsamen Fehler jeweils zwischen MOZART Lichter und GOME Richter sowie MOZART EDGAR und GOME Leue angenommen werden, aber ein kleiner gemeinsamer Fehleranteil jeweils zwischen MOZART EDGAR und GOME Richter sowie MOZART Lichter und GOME Leue angenommen wird. Dies folgt aus den Korrelationskoeffizienten und den Annahmen der weitest möglichen Unabhängigkeit und der Symmetrie, eine physikalische Interpretation ist leider nicht möglich.

Diese Annahmen sind mit den Daten kompatibel, jedoch liegt nun der Fall unendlich vieler Lösungen vor, da noch ein Freiheitsgrad übrig ist. Bei festen e_{13} , e_{14} , e_{23} und e_{24} lauten die Lösungen von Gleichung 4.6 in Abhängigkeit von e_{12}

$$\begin{aligned} e_{11} &= 1 - \frac{R_{12}R_{14}}{R_{24}} \frac{(1 - e_{12})(1 - e_{14})}{1 - e_{24}} \\ e_{22} &= 1 - \frac{R_{12}R_{24}}{R_{14}} \frac{(1 - e_{12})(1 - e_{24})}{1 - e_{14}} \\ e_{33} &= 1 - \frac{R_{13}R_{23}}{R_{12}} \frac{(1 - e_{13})(1 - e_{23})}{1 - e_{12}} \\ e_{44} &= 1 - \frac{R_{14}R_{24}}{R_{12}} \frac{(1 - e_{14})(1 - e_{24})}{1 - e_{12}} \\ e_{34} &= 1 - \frac{R_{13}R_{24}}{R_{12}R_{34}} \frac{(1 - e_{13})(1 - e_{24})}{1 - e_{12}} . \end{aligned} \quad (5.1)$$

Die Werte der Musterfehler in Abhängigkeit von e_{12} sind in Abbildung 5.3 dargestellt. Es fällt auf, dass die Kurven von e_{11} und e_{22} (rote und blaue Kurve) sowie von e_{33} und e_{34} (grüne und schwarze Kurve) jeweils übereinanderliegen. Da die Größen in Gleichung 5.1 nur noch von e_{12} abhängen (alle anderen Größen sind konstant), sind Verläufe zweier Kurven gleich, wenn sie sich an einem Punkt schneiden. Dass die Fehler von MOZART Lichter auf zwei Nachkommastellen mit denen von MOZART EDGAR übereinstimmen, ist Zufall: Die Fehlerbereiche der Größen sind deutlich größer. Es zeigt aber, dass die Lichter als NO_x-Quelle sehr gut verwendbar sind. Dass die Kurven der relativen Fehlervarianz von GOME Richter (e_{33} , grün) und der relativen Fehlerkovarianz von GOME Richter und GOME Leue (e_{34} , schwarz) übereinander liegen, lässt sich wie folgt verstehen: Der relative Fehler von GOME Richter e_{33} ist stets kleiner als der von GOME Leue

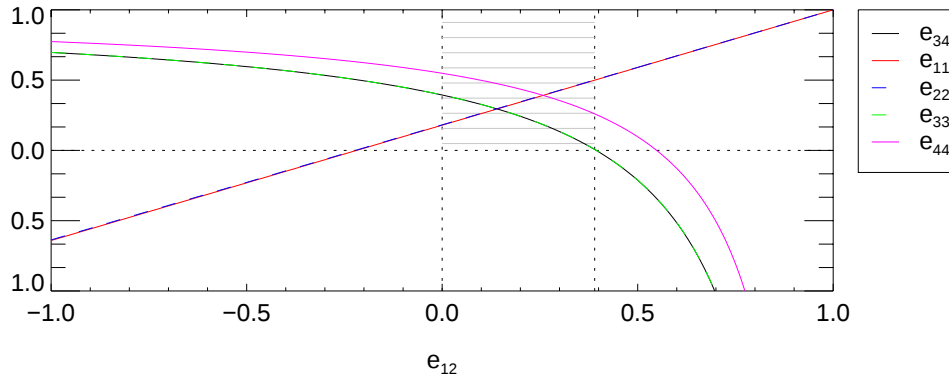


Abbildung 5.3: Werte der nicht festgelegten relativen Fehlerkovarianz e_{34} und der relativen Fehlervarianzen in Abhängigkeit von e_{12} ; grau schraffiert: Physikalisch sinnvoller Lösungsbereich nach Relation 5.2

e_{44} , am Schnittpunkt der grünen Kurve mit der x-Achse ist die pinkfarbene Kurve noch größer als Null. Der endliche Musterfehler von GOME Leue an diesem Punkt kann nicht gemeinsamer Fehler mit GOME Richter sein, da die Fehlervarianz des letzteren Datensatzes an diesem Punkt verschwindet. Also muss auch die Fehlerkovarianz von GOME Richter und GOME Leue spätestens an diesem Punkt verschwinden: Die Nullstelle der schwarzen Kurve muss kleiner oder gleich der Nullstelle der grünen Kurve sein. In diesem Fall sind die Nullstellen gleich, und da bei einem gemeinsamen Punkt auch die Kurven gleich sind (siehe oben), fallen die Kurven für die relative Fehlervarianz von GOME Richter und die relative Fehlerkovarianz von GOME Richter und GOME Leue zusammen.

Für die Musterfehler der Säulendichtfelder können also nur Wertebereiche angegeben werden. Diese ergeben sich daraus, dass alle gesuchten Variablen relative Fehler sind und damit zwischen Null und Eins liegen müssen:

$$0 \leq e_{ij} \leq 1 \quad \forall \quad i, j. \quad (5.2)$$

Die Relation schränkt die physikalisch sinnvollen Lösungen auf den grau schraffierten Bereich in Abbildung 5.3 ein. Die Grenzen der Fehlerbereiche sind durch die vertikalen schwarz gepunkteten Linien gegeben und in Tabelle 5.2 dargestellt. Der Bereich für den Musterfehler der GOME Richter Auswertung beinhaltet als einziger die Null: Nur bei diesem Datensatz ist nicht auszuschließen, dass er keine Fehlervarianz enthält.

Wird eine der Größen e_{ii} oder e_{ij} im Rahmen dieses erlaubten Bereichs gewählt, dann ist der letzte Freiheitsgrad eliminiert und alle anderen Größen sind festgelegt. Setzt man z. B. die relative Fehlerkovarianz der beiden Modellrechnungen auf ihren Minimalwert, nämlich $e_{12} = 0$, so nehmen automatisch die relativen Fehlervarianzen der Modellrechnungen ihre Minimalwerte $e_{11} = 0.18$ und $e_{22} = 0.18$ an, während die relative Fehlerkovarianz der beiden GOME Auswertungen ihren Maximalwert $e_{34} = 0.39$ annimmt, ebenso wie die einzelnen relativen Fehlervarianzen $e_{33} = 0.39$ und $e_{44} = 0.55$. Verändert man e_{12} auf seinen Maximalwert hin,

Feld X_i	rel. Fehlervarianz e_{ii}		$\tilde{e}_{ii} = \text{stddev}(\eta_i)/\bar{X}_i$	
	Min	Max	Min	Max
MOZART EDGAR	0.18	0.50	0.38	0.63
MOZART Lichter	0.18	0.50	0.34	0.56
GOME Richter	0.00	0.39	0.00	0.50
GOME Leue	0.26	0.55	0.25	0.37

Felder X_i, X_j	rel. Fehlerkovarianz e_{ij}	
	Min	Max
MOZART EDGAR, MOZART Lichter	0.00	0.39
MOZART EDGAR, GOME Richter	0.04	0.04
MOZART EDGAR, GOME Leue	0.00	0.00
MOZART Lichter, GOME Richter	0.00	0.00
MOZART Lichter, GOME Leue	0.04	0.04
GOME Richter, GOME Leue	0.00	0.39

Tabelle 5.2: Grenzen der möglichen Bereiche für die relativen Fehlervarianzen (oben) und relativen Fehlerkovarianzen (unten), oben zum Vergleich: Standardabweichung des im Feld enthaltenen Fehlerfeldes durch Mittelwert des Feldes als weiteres Fehlermaß

Feld X_i	$X_i[\text{cm}^{-2}]$	$\text{stddev}(X_i)[\text{cm}^{-2}]$	$\text{stddev}(X_i)/\bar{X}_i$
MOZART EDGAR	3.40×10^{15}	3.04×10^{15}	0.89
MOZART Lichter	3.39×10^{15}	2.69×10^{15}	0.79
GOME Richter	1.16×10^{15}	0.92×10^{15}	0.79
GOME Leue	1.88×10^{15}	0.93×10^{15}	0.49

Tabelle 5.3: Mittelwert, Standardabweichung und Verhältnis von Mittelwert zu Standardabweichung der Säulendichtefelder im betrachteten Bereich

so wachsen e_{11} und e_{22} entsprechend an, während e_{34} , e_{33} und e_{44} sich auf ihre Minimalwerte zubewegen.

Musterfehler versus relativer Fehler

Das Verhältnis aus der Standardabweichung des Fehlers η_i zum Mittelwert des Feldes X_i , $\tilde{e}_{ii} = \text{stddev}(\eta_i)/\bar{X}_i$ (relativer Fehler), ist als Fehlermaß gebräuchlicher als der hier verwendete Musterfehler. Wie Tabelle 5.3 zeigt, unterscheiden sich sowohl die Mittelwerte wie auch Standardabweichungen der vier betrachteten Felder. Daher ist zu erwarten, dass sich auch die $\tilde{e}_{ii}$ von den Musterfehlern e_{ii} unterscheiden. In Tabelle 5.2 sind zum Vergleich die entsprechenden Werte des so definierten Fehlers neben den Bereichen für die Musterfehler aufgelistet.

Aus zwei Gründen wird in dieser Arbeit weiterhin der Musterfehler als Fehlermaß verwendet. Zum einen lassen sich die e_{ii} allein aus den Korrelationskoeffizienten bestimmen, während die $\tilde{e}_{ii}$ zusätzlich vom Mittelwert abhängen, der einen hier prinzipiell nicht bestimmbar Offset-Fehler haben kann. Zum anderen

führt, wie am Ende von Abschnitt 4.2.2 gezeigt wurde, die Minimierung der $\tilde{e}_{ii}$ zu denselben Wichtungsfaktoren wie die der e_{ii} , an der Kombination der Felder würde sich also bei anderer Wahl des Fehlermaßes nichts ändern.

5.2.2 Wichtungsfaktoren: Wertebereiche

Für die Grenzen des Bereichs der Musterfehler wurden jeweils Wichtungsfaktoren w_i bestimmt, die die vier Felder so kombinieren, dass der Musterfehler des neuen Feldes minimiert wird; das Vorgehen für jede Grenze einzeln ist analog zu dem in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen. Die sich daraus ergebenden Grenzen für die Wichtungsfaktoren sind in Tabelle 5.4 aufgelistet.

Im ersten Grenzfall einer verschwindenden Fehlerkovarianz der Satellitenfelder besteht das Feld GOME Richter nur aus Wahrheit (wie oben beschrieben ist das nur bei diesem Feld möglich). Jedes Einmischen der anderen Felder würde den Fehler vergrößern. Deshalb ist der Faktor für das Feld X_3 gleich Eins, alle anderen sind gleich Null. Dieser Fall entspricht der rechten vertikalen schwarz gepunkteten Linie in Abbildung 5.3.

Im zweiten Grenzfall maximaler Fehlerkovarianz der Satellitenfelder verschwinden die gemeinsamen Fehler der Modellrechnungen (linke vertikale schwarz gepunktete Linie in Abbildung 5.3). Hier sieht es zunächst so als, als gingen die drei Felder MOZART EDGAR, MOZART Lichter und GOME Richter in etwa gleich stark in die optimale Kombination ein. Dies ist jedoch nicht der Fall, bei der Interpretation müssen die Varianzen der Datensätze berücksichtigt werden. Die Musterfehler der Felder sind unabhängig von konstanten Faktoren, ebenso die Anteile der Varianzen der Felder im Kombinationsfeld. Dies gilt jedoch nicht für die Wichtungsfaktoren: Sie sind umgekehrt proportional zu möglichen Vorfaktoren der Felder. Wird ein Feld z. B. mit einem Faktor 10 multipliziert, verringert das den Wichtungsfaktor dieses Feldes entsprechend um den Faktor 10. Für den zweiten Fall wurden daher die Felder standardisiert, bevor nochmals Wichtungsfaktoren $\tilde{w}_i$ bestimmt wurden. Diese sind zum Vergleich ebenfalls in Tabelle 5.4 aufgelistet. Bei maximaler Fehlerkovarianz zwischen den Satellitenfeldern gehen die beiden Modellrechnungen demnach etwa gleich stark in die Kombination ein,

	Grenze 1		Grenze 2		
Feld X_i	e_i	w_i	e_i	w_i	$\tilde{w}_i$
MOZART EDGAR	0.50	0.00	0.18	0.31	0.42
MOZART Lichter	0.50	0.00	0.18	0.36	0.44
GOME Richter	0.00	1.00	0.39	0.34	0.14
GOME Leue	0.26	0.00	0.55	0.00	0.00

Tabelle 5.4: Wichtungsfaktoren w_i für nicht skalierte und $\tilde{w}_i$ für standardisierte Felder zur optimalen Kombination an den beiden Grenzfällen der möglichen Fehlerbereiche; Grenze 1: keine Fehlerkovarianz, Grenze 2: maximale Fehlerkovarianz jeweils zwischen den Satellitenfeldern

die GOME Auswertung von Richter & Burrows deutlich schwächer und die von Leue et al. geht nicht ein.

5.3 Beispiel für ein kombiniertes Säulendichtefeld

Um zur Veranschaulichung ein Beispiel aus dem Wertebereich für die Musterfehler herauszugreifen, wird hier der Versuch einer groben Abschätzung der gemeinsamen Fehler der beiden MOZART Modellrechnungen unternommen. Die im folgenden Abschnitt angegebenen Fehlerangaben sind Annahmen und nur als eine der möglichen Wertekombinationen zu verstehen.

5.3.1 Versuch einer Abschätzung der Fehlerkovarianz der Modellrechnungen

In Kapitel 6 wird gezeigt, dass sich der Korrelationskoeffizient zwischen Modell-Quellen und Modell-Säulen durch eine leichte Glättung der Quellen deutlich erhöht, da die Glättung einen Teil des ungerichteten Modelltransports simuliert. Hier wird angenommen, dass jener Glättungsoperator ein Teil des wahren Operators ist, der Quellen in Säulen überführt. Zur Abschätzung des Modellfehlers wird ferner angenommen, dass die Größenordnung des Fehlers des entsprechenden Modelloperators etwa seiner Abweichung vom Glättungsoperator entspricht; das heißt, es wird angenommen, dass die Varianz, die vom Modell über die Glättung hinaus erzeugt wird, Fehlervarianz ist.

Wie oben sind X_1 und X_2 die Jahresmittelwerte der MOZART Rechnungen mit EDGAR und der Lichterquelle, Q_1 und Q_2 seien die zugehörigen geglätteten Quellen. ξ_i seien die Abweichungen der Säulendichten von den geglätteten Quellen, also die vom Modell erzeugten Auswirkungen von gerichtetem Transport, ortsabhängiger Lebensdauer, NO-Anteil am NO_x und biogenen Quellen. Nach der oben gemachten Annahme sollen die ξ_i Abschätzungen für die Fehlerfelder sein. Analog zu Abschnitt 4.1 wird der lineare Ansatz

$$\begin{aligned} X_1 &= b_1 Q_1 + \xi_1 \\ X_2 &= b_2 Q_2 + \xi_2 \end{aligned}$$

gemacht, wie dort ist die Forderung $\text{covar}(Q_i, \xi_i) = 0$, $i = 1, 2$ keine Einschränkung. Daher folgen

$$\begin{aligned} \text{covar}(X_i, Q_i) &= b_i \text{var}(Q_i) \\ \text{covar}(X_1, X_2) &= b_1 b_2 \text{covar}(Q_1, Q_2) + \text{covar}(\xi_1, \xi_2) . \end{aligned}$$

Eliminierung der b_i und Division durch die linke Seite liefert

$$1 = \frac{\text{covar}(X_1, Q_1) \text{covar}(X_2, Q_2) \text{covar}(Q_1, Q_2)}{\text{covar}(X_1, X_2) \text{var}(Q_1) \text{var}(Q_2)} + \frac{\text{covar}(\xi_1, \xi_2)}{\text{covar}(X_1, X_2)} .$$

Feld X_i	e_{ii}	w_i	$\tilde{w}_i$
MOZART EDGAR	0.35 ± 0.02	0.08 ± 0.03	0.18 ± 0.05
MOZART Lichter	0.35 ± 0.03	0.14 ± 0.03	0.28 ± 0.05
GOME Richter	0.24 ± 0.04	0.80 ± 0.08	0.55 ± 0.08
GOME Leue	0.43 ± 0.05	-0.01 ± 0.07	-0.01 ± 0.05

Tabelle 5.5: Relative Fehlerkovarianzen e_{ii} und Wichtungsfaktoren w_i für unskalierte Felder und $\tilde{w}_i$ für standardisierte Felder bei Wahl von $e_{12} = 0.20$; für die nicht gesetzte relative Fehlerkovarianz folgt $e_{34} = 0.24 \pm 0.05$

Der erste Term auf der rechten Seite kann durch Einsetzen der Formel für die Korrelationskoeffizienten (Gleichung 4.1) deutlich vereinfacht werden, der zweite Term soll zur Abschätzung der relativen Fehlerkovarianz der Felder X_1 und X_2 dienen:

$$e_{12} \approx \frac{\text{covar}(\xi_1, \xi_2)}{\text{covar}(X_1, X_2)} = 1 - \frac{R_{X_1 Q_1} R_{X_2 Q_2} R_{Q_1 Q_2}}{R_{X_1 X_2}}. \quad (5.3)$$

Die Annahme, dass die gesamte über eine Glättung hinausgehenden Wirkung des Modells zum Fehler beiträgt, ist wahrscheinlich konservativ: Das MOZART-Modell bildet die Wirklichkeit besser ab als eine simple Glättung der Quellen. Es ist jedoch nicht auszuschließen, dass etwa die „wahre“ Advektion deutlich stärker ausgeprägt ist als im Modell. In dem Fall läge die Modell-Rechnung zwar näher an der Wahrheit als die geglättete Quelle, die überhaupt keine Advektion enthält. Die Abweichung des Modells von der Wahrheit wäre aber größer als die Abweichung des Modells von der geglätteten Quelle. Gleichung 5.3 kann daher keine obere Grenze für die Fehlerkovarianz der Modellrechnungen liefern, sondern soll lediglich für einen Wert aus dem möglichen Bereich eine anschauliche Interpretation liefern.

5.3.2 Musterfehler und Wichtungsfaktoren für den Beispielfall

Gleichung 5.3 ergibt für die relative Fehlerkovarianz der beiden Modellrechnungen den Wert $e_{12} \approx 0.20$, er liegt in der Mitte des Intervalls der möglichen Werte. Damit können die anderen Fehlervarianzen und -Kovarianzen bestimmt werden. Für die relative Fehlerkovarianz der beiden GOME Auswertungen folgt damit $e_{34} = 0.24 \pm 0.05$, hier liegt der Wert also nicht ganz in der Mitte des Intervalls. Die aus diesem Ansatz für e_{12} folgenden relativen Fehlervarianzen der Größen sind in Tabelle 5.5 mit Fehlerangaben (*Bootstrap*-Verfahren, eine Standardabweichung) aufgelistet. Der GOME Richter Datensatz hat mit $e_{33} = 0.24 \pm 0.04$ den kleinsten Musterfehler, gefolgt von den beiden Modellrechnungen mit $e_{11} = e_{22} = 0.35 \pm 0.03$ und dem GOME Leue Datensatz mit $e_{44} = 0.43 \pm 0.05$. Die Wichtungsfaktoren w_i zur optimalen Kombination der Felder sind ebenfalls in Tabelle 5.5 aufgelistet, ebenso die Wichtungsfaktoren für standardisierte Felder $\tilde{w}_i$.

R_{ij}	MOZ EDGAR	MOZ Lichter	GOME Richter	GOME Leue
Kombination	0.88 ± 0.02	0.88 ± 0.02	0.95 ± 0.01	0.82 ± 0.02

Tabelle 5.6: Beispielfall: Korrelationskoeffizienten zwischen dem kombinierten Feld und den vier Einzelfeldern

Die $\tilde{w}_i$ stellen, wie oben erläutert, die tatsächlichen Verhältnisse der Varianzen dar und sind damit leichter interpretierbar als die w_i . Das Ziel der Analyse in diesem Kapitel ist eine verbesserte Kenntnis des globalen Verteilungsmusters der NO_2 -Säulendichten, Offsets oder Skalierungsfaktoren können nicht bestimmt werden, siehe Kapitel 4. Da eine Standardisierung die Muster nicht ändert, werden die Felder X_i im folgenden standardisiert. In Abbildung 5.5 sind die in diesem Kapitel analysierten Felder standardisiert dargestellt, die nicht betrachteten Punkte sind grau maskiert. Die Farbskala geht linear vom Minimum zum Maximum, der optische Eindruck entspricht also dem Muster.

Dass trotz gleichen Musterfehlers der Wichtungsfaktor für die lichterbasierte Modellrechnung deutlich größer ist als für MOZART EDGAR, liegt an den Fehlerkovarianzen mit den Satellitenfeldern: Für MOZART Lichter wurden gemeinsame Fehler mit GOME Leue angenommen; dieses Feld geht aber nicht in die Kombination ein. Die für MOZART EDGAR angenommenen gemeinsamen Fehler mit GOME Richter sollen nicht doppelt in die Kombination eingehen, und da die Richter Auswertung mit einem sehr großen Faktor gewichtet wird, geht MOZART EDGAR entsprechend weniger stark ein.

Der Fehler eines so kombinierten Feldes ist mit $e_{comb} = 0.16 \pm 0.02$ deutlich kleiner als der von GOME Richter, das mit $e_{33} = 0.24 \pm 0.04$ den kleinsten Musterfehler der Einzelfelder aufweist.

In Tabelle 5.6 sind die Korrelationskoeffizienten der ursprünglichen Felder mit dem Kombinationsfeld aufgelistet. Wie zu erwarten war, korreliert das Einzelfeld mit dem kleinsten Musterfehler (GOME Richter) am besten und das mit dem größten Musterfehler (GOME Leue) am schlechtesten mit der Kombination.

5.4 Robuste Betrachtung des Beispielfalles

Analog zum Vorgehen bei dem auf Zufallszahlen basierenden Beispiel in Abschnitt 4.4 in Kapitel 4 sollen nun Ausreißer der Felder bei der Kombination berücksichtigt werden. Dazu muss zunächst der Einfluss der einzelnen Gitterpunkte jedes Feldes auf dessen Musterfehler bestimmt werden. Dann werden einzelne Ausreißer identifiziert und für eine neue, robuste Kombination eliminiert. Schließlich werden die gefundenen Ausreißer geographisch dargestellt.

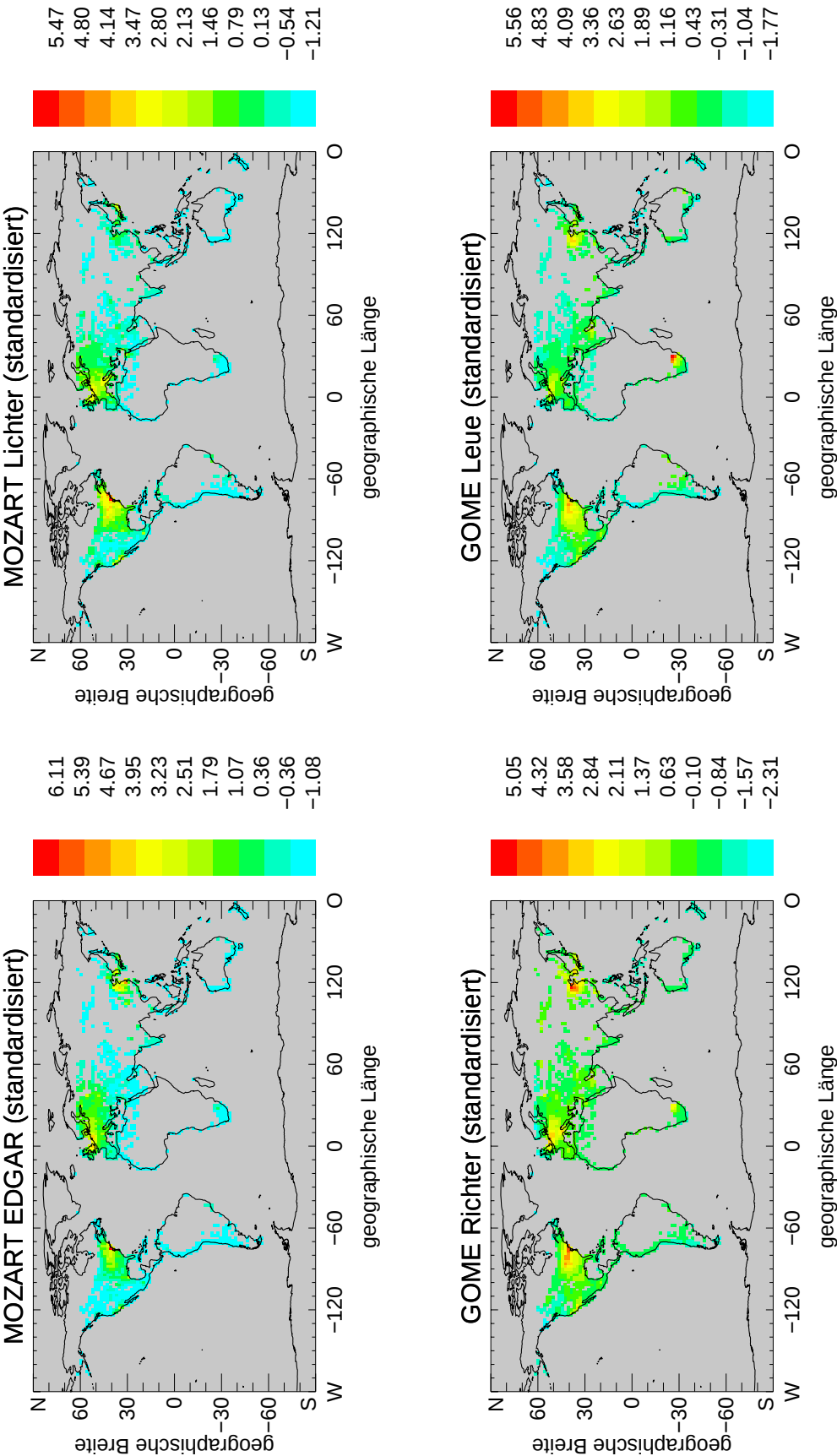


Abbildung 5.4: Darstellung der vier in diesem Kapitel analysierten Felder aus Abbildung 5.1 in standardisierter Form, die nicht betrachteten Gitterpunkte sind grau maskiert

5.4.1 Einfluss einzelner Gitterpunkte auf den Musterfehler

Zu jedem der Felder X_i wurde ein Feld Δe_{ii}^l berechnet, das an jedem Punkt l die auf den Gesamtfehler normierte Differenz enthält zwischen dem absoluten Varianzfehler des gesamten Feldes X_i und dem Fehler dieses Feldes unter Auslassung des betrachteten Punktes l .

Die Felder Δe_{ii} sind in Abbildung 5.5 dargestellt. Der Wert eines Punktes ist negativ, wenn sein Herausnehmen den Musterfehler verkleinert: Je kleiner der Wert ist, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass es sich um einen Ausreißer im Feld X_i handelt. Der Übersicht halber sind die bei dieser Wahl der Vorzeichen positiven Werte weiß dargestellt, die Farbskala geht nicht in den positiven Bereich.

Auffällig ist besonders die in fast allen Feldern stark rot eingefärbte Region um die ostchinesischen Industriezentren sowie in der GOME Leue Auswertung die Region um Johannesburg (Highveld).

5.4.2 Identifizierung von Ausreißern

Ein Blick auf Abbildung 5.5 zeigt, dass die Datensätze nur wenige – Größenordnung weniger als zehn – Ausreißer enthalten. Deswegen erscheint es plausibel, wie bei den Zufallszahlen im Beispiel in Kapitel 4, Abschnitt 4.2.3, die Ausreißer der Felder Δe_{ii} zum Signifikanzniveau $\alpha = 0.005$ zu identifizieren. Dann würden in einem Datensatz mit 1462 Elementen, der *keine* Ausreißer enthält, im Mittel 7.3 Elemente fälschlich als Ausreißer identifiziert. (Tatsächliche Ausreißer erhöhen die Standardabweichung des Datensatzes, so dass bei Vorhandensein tatsächlicher Ausreißer weniger Elemente fälschlich als solche gefunden werden.) Bei der Wahl von $\alpha = 0.005$ können also nicht mehr falsche Ausreißer identifiziert werden, als nach dem optischen Eindruck von Abbildung 5.5 echte Ausreißer in den Datensätzen zu erwarten sind.

Entsprechend der Definition der Ausreißer-Testgröße $T_{\alpha,M}$ in Gleichung 4.14 wurden die vier Felder Δe_{ii} standardisiert, ihre Häufigkeitsverteilung danach ist in Abbildung 5.6 dargestellt. Hier gibt es nun die Schwierigkeit, dass die Wahrscheinlichkeitsverteilung der zugehörigen Grundgesamtheiten nicht bekannt sind. Auch sind die statistischen Eigenschaften der Säulendichte-Felder nicht genau genug bekannt, um die Ausreißer-Testgröße $T_{\alpha,M}$ wie im Falle des Beispiels durch Monte-Carlo-Simulation zu bestimmen.

Da das Beispiel sowohl hinsichtlich der Datensatzgröße wie auch hinsichtlich der Größe der Musterfehler ähnlich gewählt war wie die hier betrachteten Säulendichte-Felder, wird der Wert $T_{\alpha,M} = 4.58$ als Testgröße zum Signifikanzniveau $\alpha = 0.005$ aus dem Beispiel übernommen. Zum Vergleich ist die Häufigkeitsverteilung des standardisierten Beispielfelds X_1 aus Abbildung 4.3 zu den Verteilungen der Säulendichtefelder in Abbildung 5.6 in Schwarz dazugeplottet, ebenso eine $N(0; 1)$ -Normalverteilung. Alle Fehlerverteilungen sind asymmetrisch mit einem längeren Ausläufer in Richtung negativer Werte und einem leicht in Richtung positiver Werte verschobenen Maximum. Für eine Normalverteilung würde der

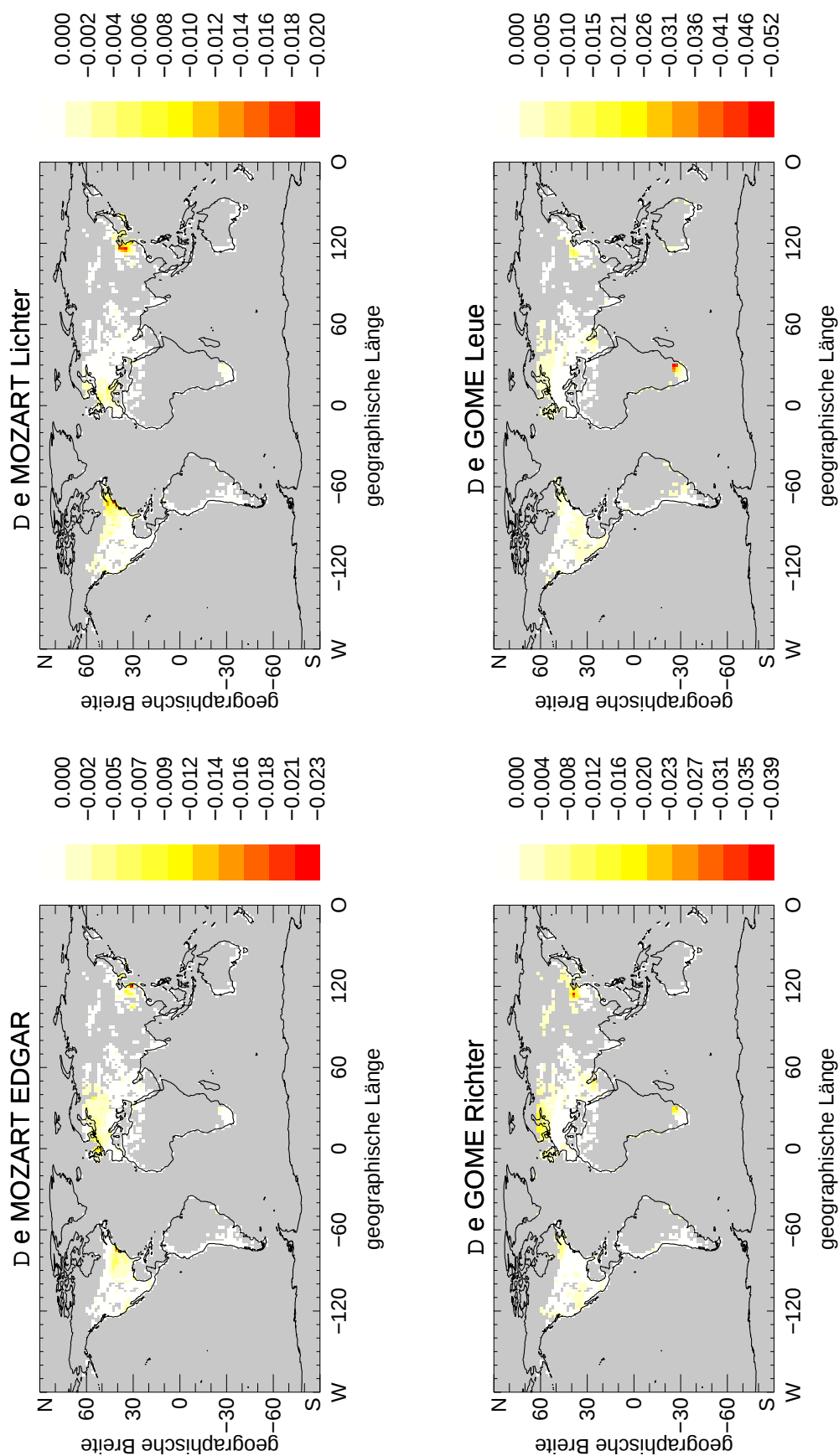


Abbildung 5.5: Einfluss der einzelnen Gitterpunkte auf die Musterfelder der betrachteten Gesamtfelder; Farbskala jeweils linear, aber der Übersicht wegen auf negative Werte (Herausnahme dieses Punktes verkleinert den Musterfehler) beschränkt, positive Werte sind weiß dargestellt

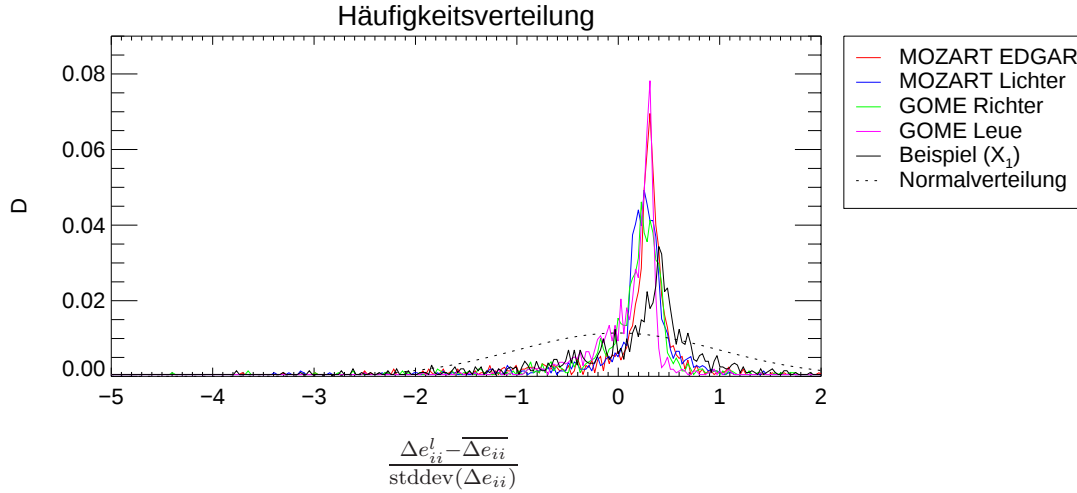


Abbildung 5.6: Häufigkeitsverteilung der standardisierten Änderungen der absoluten Fehlervarianzen der Säulendichtfelder bei Herausnehmen jeweils eines Punktes; in schwarz zum Vergleich: Häufigkeitsverteilung des Beispieldatensatzes X_1 aus Abbildung 4.3 sowie die $N(0; 1)$ -Normalverteilung

Grubbs-Test einen Wert von $T_{\alpha, M} = 4.48$ liefern. Dieser Wert liegt recht nah bei dem hier verwendeten Schwellenwert, obwohl die Verteilung sich stärker von den simulierten Verteilungen unterscheidet als die Verteilung der Säulendichten. Der Fehler durch die Wahl von $T_{\alpha, M} = 4.58$ kann also nicht allzu groß sein.

An den meisten so identifizierten Datenpunkten wies jeweils nur ein Feld Ausreißer auf, an einigen Punkten wurden jedoch auch für zwei Felder Ausreißer registriert.

In Abbildung 5.7 sind in den oberen sechs Teilabbildungen die zweidimensionalen Schnitte durch den vierdimensionalen Raum dargestellt, der durch die Δe_{ii} aufgespannt wird. In den Scatterplots sind jeweils die als Ausreißer identifizierten Punkte des auf der y-Achse aufgetragenen Feldes blau und die des auf der x-Achse aufgetragenen Feldes rot eingefärbt. Ausreißer, die in beiden Feldern auftreten, sind grün dargestellt. An den Gitterpunkten im ersten Quadranten enthalten beide Datensätze einen hohen Anteil Wahrheit. Gitterpunkte im zweiten bzw. im vierten Quadranten erhöhen den Musterfehler des auf der x-Achse bzw. auf der y-Achse aufgetragenen Feldes, während Gitterpunkte im dritten Quadranten den Fehler in beiden Datensätzen erhöhen.

In dieser Auftragsung springen die Ausreißer im Datensatz GOME Leue am deutlichsten ins Auge. Außerdem ist gut zu erkennen, dass die beiden GOME Auswertungen sowohl am meisten gemeinsame Wahrheit (erster Quadrant) wie auch am meisten gemeinsame Fehler (dritter Quadrant) enthalten.

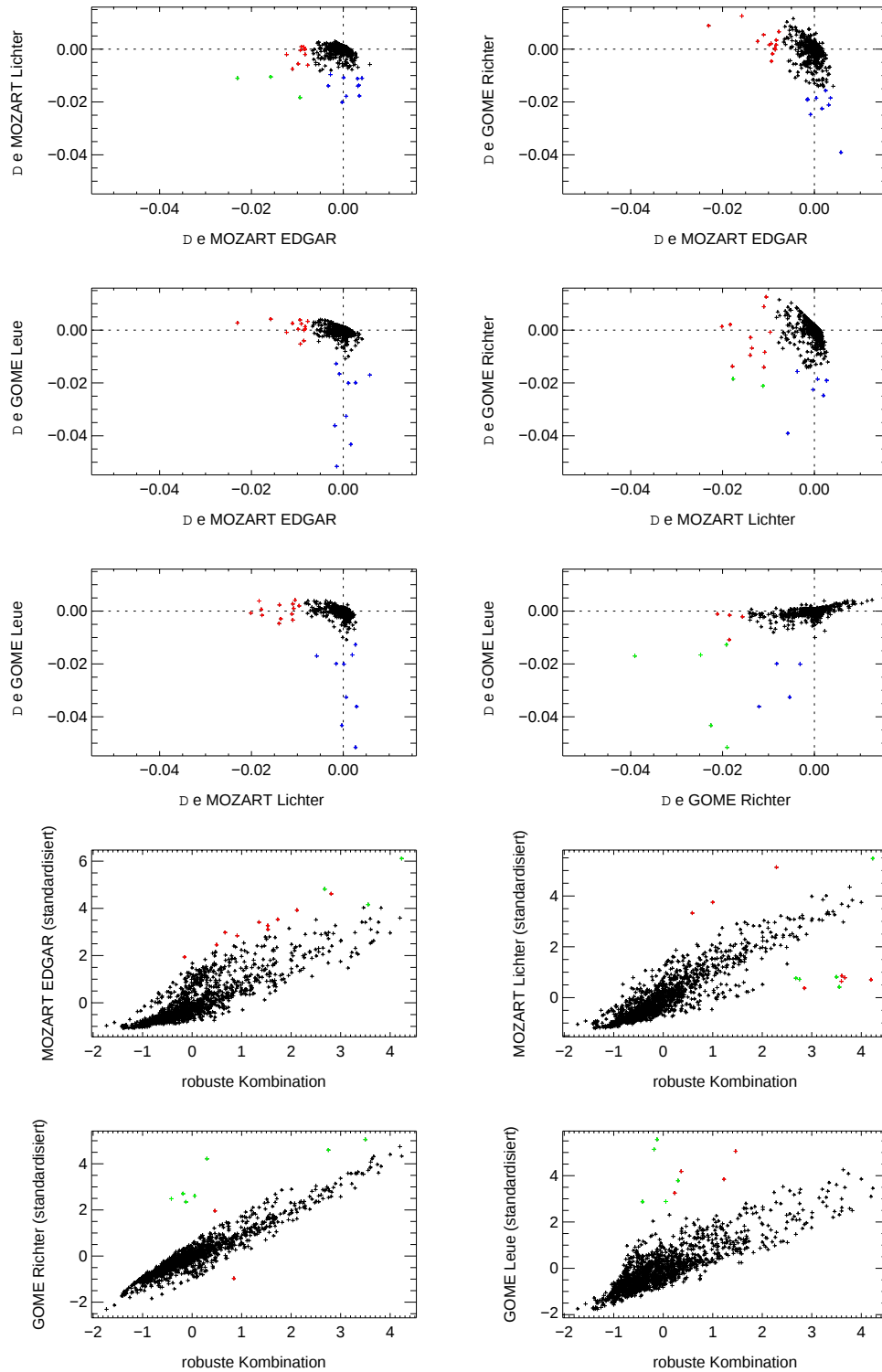


Abbildung 5.7: obere 6 Teilabbildungen: zweidimensionale Schnitte durch den von den Δe_{ii} aufgespannten Raum; rot: im Feld entlang der x-Achse identifizierte, blau: im Feld entlang der y-Achse identifizierte, grün: in beiden Feldern identifizierte Ausreißer; untere 4 Teilabbildungen: Scatterplots der betrachteten standardisierten Felder jeweils gegen die robuste Kombination, rot: nur im jeweiligen Feld gefundene Ausreißer, grün: gemeinsame Ausreißer mit anderen Feldern

Feld X_i	$e_{ii,robust}$
MOZART EDGAR	0.36 ± 0.02
MOZART Lichter	0.29 ± 0.02
GOME Richter	0.22 ± 0.04
GOME Leue	0.38 ± 0.04
Feld X_i, X_j	$e_{ij,robust}$
MOZART EDGAR, MOZART Lichter	0.20
MOZART EDGAR, GOME Richter	0.03 ± 0.01
MOZART EDGAR, GOME Leue	0.00
MOZART Lichter, GOME Richter	0.00
MOZART Lichter, GOME Leue	0.03 ± 0.01
GOME Richter, GOME Leue	0.19 ± 0.04

Tabelle 5.7: Beispielfall: Robuste Schätzer für die relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen; gesetzte Werte: ohne Fehlerangaben, berechnete Werte: Fehlerangaben mittels *Bootstrap*-Verfahren, eine Standardabweichung

5.4.3 Berücksichtigung der Ausreißer bei der Kombination

In diesem Abschnitt soll eine robuste Kombination der vier Datenfelder gebildet werden. Dabei sollen, analog zum Vorgehen in Abschnitt 4.2.3, die relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen an den Datenpunkten berechnet werden, an denen kein Feld Ausreißer aufweist. Sie werden als robuste Schätzer für die Fehler der Gesamtfelder angesehen und sind in Tabelle 5.7 dargestellt. Ein Vergleich mit Tabelle 5.5 zeigt, dass mit Ausnahme der EDGAR Modellrechnung die Musterfehler für alle Felder durch das Herausnehmen der Ausreißer tendenziell verkleinert werden.

Wie in Kapitel 4 beschrieben, sollen Wichtungsfaktoren zur Kombination jeweils aller Felder bestimmt werden, die für eine Gruppe von Gitterpunkten keine Ausreißer aufweisen. In jedem der vier Felder wurden Datenpunkte gefunden, die nur in diesem Feld ausreißten; darüberhinaus gibt es gemeinsame Ausreißer in den beiden Modellrechnungen, in den beiden Satellitenauswertungen sowie gemeinsame Ausreißer in MOZART Lichter und GOME Richter. In Tabelle 5.8 sind jeweils die einzeln oder gemeinsam ausreißenden Felder, die Wichtungsfaktoren $\tilde{w}_i$ zur optimalen Kombination der übrigen Felder, sowie die Anzahl der in diese Gruppe fallenden Gitterpunkte aufgelistet; in der letzten Spalte stehen die mit der vorliegenden Kombination erreichbaren Musterfehler. Durch Zusammensetzen der acht Teilfelder ergibt sich das neue optimale Feld, sein Musterfehler ist der mit der jeweiligen Anzahl Gitterpunkte gewichtete Mittelwert der Musterfehler der Teilkombinationen. Mit $e_{comb,robust} = 0.14 \pm 0.02$ ergibt sich gegenüber dem ohne Berücksichtigung von Ausreißern erzielten $e_{comb} = 0.16 \pm 0.02$ nochmals eine leichte Verbesserung. In Abbildung 5.8 ist die robuste Kombination der Einzelfelder dargestellt. Unter der in diesem Abschnitt getroffenen Annahme, dass die rela-

Ausreißer	$\tilde{w}_{MOZ\ ED}$	$\tilde{w}_{MOZ\ Li}$	$\tilde{w}_{GOME\ Ri}$	$\tilde{w}_{GOME\ Leu}$	N	e_{comb}
keine	0.11 ± 0.04	0.32 ± 0.05	0.52 ± 0.07	0.05 ± 0.04	1429	0.14 ± 0.02
MOZART EDGAR	—	0.40 ± 0.05	0.57 ± 0.08	0.04 ± 0.05	10	0.14 ± 0.02
MOZART Lichter	0.33 ± 0.06	—	0.57 ± 0.08	0.09 ± 0.04	8	0.16 ± 0.03
GOME Richter	0.24 ± 0.05	0.38 ± 0.06	—	0.38 ± 0.06	2	0.19 ± 0.03
GOME Leue	0.11 ± 0.04	0.33 ± 0.06	0.56 ± 0.08	—	4	0.14 ± 0.02
MOZ ED, MOZ Li	—	—	0.89 ± 0.08	0.11 ± 0.04	3	0.21 ± 0.03
MOZ Li, GOME Ri	0.51 ± 0.08	—	—	0.49 ± 0.04	2	0.23 ± 0.03
GO Ri, GO Leu	0.35 ± 0.08	0.65 ± 0.08	—	—	5	0.26 ± 0.03

Tabelle 5.8: Beispielfall: Aus der robusten Fehlerkovarianzmatrix abgeleitete Wichtungsfaktoren für die jeweils ohne Ausreißer vorliegenden standardisierten Felder, Anzahl der so kombinierten Gitterpunkte, Musterfehler der Kombination

tive Fehlerkovarianz der Modellrechnungen den Wert $e_{12} = 0.2$ annimmt, liefert diese Kombination die bestmögliche Abschätzung des globalen Verteilungsmusters troposphärischer NO_2 -Säulendichten über von anthropogenen Emissionen dominierten Gebieten.

Offset-Fehler

Bei der einfachen Kombination von vier Feldern in Abschnitt 5.3.2 diente die Standardisierung der Felder der leichteren Interpretierbarkeit der Faktoren. Wenn Kombinationen einer unterschiedlichen Anzahl von Feldern zusammengesetzt werden sollen, ist die Standardisierung zwingend erforderlich, da andernfalls Offsets der Einzelfelder das Muster des Kombinationsfeldes ändern können. Dies wird am einfachsten an einem Beispiel klar: Von vier Feldern X_1 , X_2 , X_3 und X_4 mit jeweils unabhängigen und gleich großen Varianzfehlern habe das Feld X_1 einen fehlerhaften Offset. Die Wichtungsfaktoren sind in diesem Fall alle gleich: $w_i = 0.25$, $i = 1, \dots, 4$. Der Offset ändert die Musterfehler nicht, er geht mit dem Wichtungsfaktor von X_1 : $w_1 = 0.25$ in das Gesamtfeld ein, trägt aber nicht zu dessen relativer Fehlervarianz bei, sondern verschiebt das Muster lediglich.

Werden aber an einigen Gitterpunkten aufgrund von Ausreißern in X_3 und X_4 nur die Felder X_1 und X_2 kombiniert, an anderen Punkten aufgrund von Ausreißern in X_1 die Felder X_2 , X_3 und X_4 , und an den restlichen Punkten alle Felder, so geht der Offset an den Ausreißerstellen von X_3 und X_4 mit einem Gewicht von $w_1 = 0.5$ in die Kombination ein, an den Ausreißerstellen von X_1 überhaupt

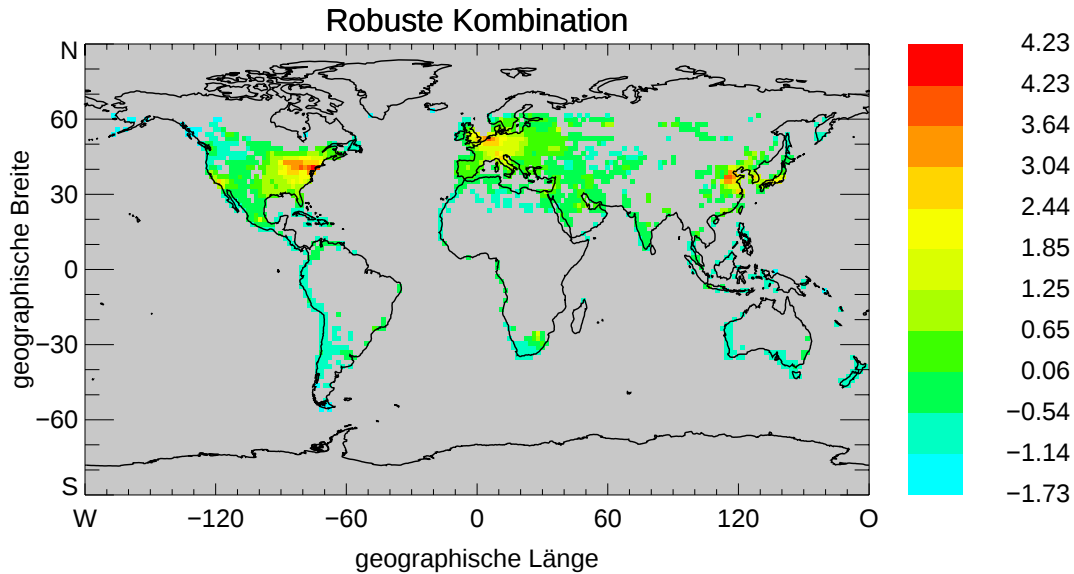


Abbildung 5.8: Robuste Kombination der vier untersuchten standardisierten NO_2 -Säulendichtefelder, nicht betrachtete Werte sind grau maskiert; der Musterfehler dieses Feldes beträgt $e_{comb,robust} = 0.14 \pm 0.02$

nicht, während an der Mehrzahl der Punkte das Gewicht des Offsets nach wie vor $w_1 = 0.25$ ist. Dadurch ändert sich das Muster des zusammengesetzten Feldes, was den Musterfehler erhöht. Durch das Eliminieren der Mittelwerte beim Standardisieren werden solche Artefakte vermieden.

5.4.4 Geographische Lokalisierung der Ausreißer

In den unteren vier Teilabbildungen in Abbildung 5.7 sind die vier betrachteten Felder jeweils gegen das robust kombinierte Feld aufgetragen. Rot eingefärbt sind die im jeweiligen Feld gefundenen Ausreißer, grün die Datenpunkte, die auch in einem anderen Feld ausreißern. In Abbildung 5.9 sind diese Punkte geographisch lokalisiert dargestellt, die Farben kodieren das Feld oder die Felder, in dem oder in denen der Ausreißer gefunden wurde.

Südafrika: Johannesburg

Die größten Ausreißer in der GOME Leue Auswertung liegen im Highveld in der Region um Johannesburg in Südafrika, die NO_2 -Säulendichten werden dort von GOME Leue überschätzt. Wie in Abbildung 5.9 zu sehen ist, reißt an zwei dieser vier Datenpunkte zusätzlich die GOME Richter Auswertung aus, und zwar in die gleiche Richtung, jedoch nicht so stark ausgeprägt.

Die Scatterplots der vier Datensätze gegen die robuste Kombination aus den unteren vier Teilabbildungen in Abbildung 5.7 sind in Abbildung 5.10 nochmals zu sehen, diesmal mit dem Breitengrad der Datenpunkte eingefärbt. Hier sieht

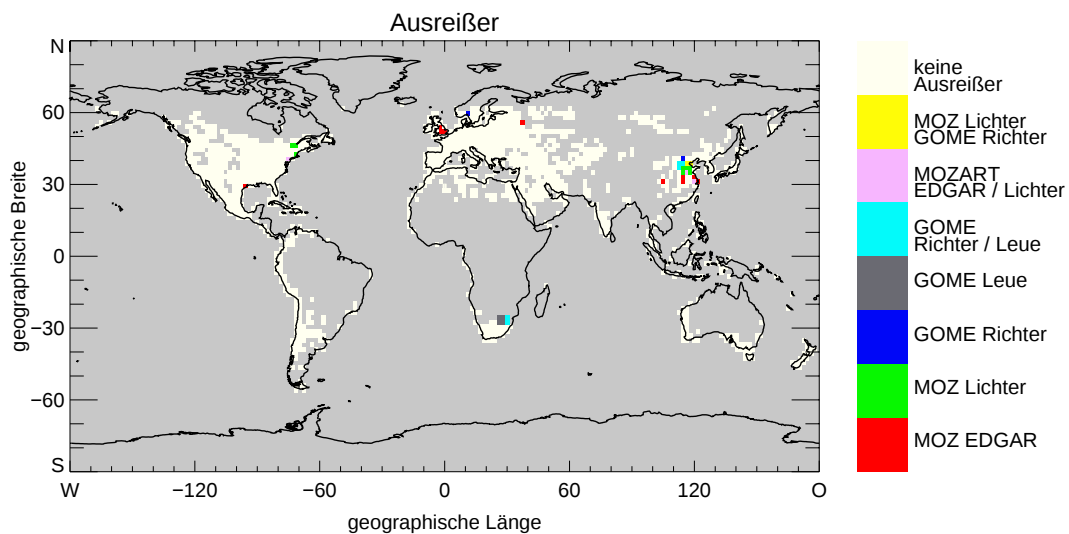


Abbildung 5.9: Geographische Lokalisierung der Ausreißer: grau: nicht betrachtete Gitterpunkte, weiß: betrachtete Gitterpunkte, an denen keines der vier untersuchten Felder einen Ausreißer aufweist, farbig kodiert: Gitterpunkte, die für ein Feld oder mehrere als Ausreißer identifiziert wurden

man, dass in GOME Leue eine Breitengradabhängigkeit der Fehler besteht. Johannesburg hat lediglich die höchsten Säulendichten auf der Südhemisphäre, an denen die überall vorliegende Abweichung signifikant wird. Dies bekräftigt Hinweise auf eine mögliche Überschätzung des südhemisphärischen NO_2 in GOME Leue in Kapitel 3. Für die anderen Datensätze scheint es eine solch eindeutige Abhängigkeit nicht zu geben.

Nordost-China

Die Ausreißer im Feld MOZART Lichter bilden im Scatterplot unten in Abbildung 5.7 einen Seitenast, der sich einer geographischen Region zuordnen lässt: Die Modellrechnung mit der Lichterquelle unterschätzt die NO_2 -Säulen in der ostchinesischen Industrieregion. Dies stimmt überein mit einer Untersuchung des Zusammenhangs zwischen beleuchteter Fläche und Stromverbrauch auf Länderebene von Doll et al. [9]: Dort werden die Länder China, Russland und Nordkorea als größte Abweichungen angegeben. Die Interpretation dort ist, dass Straßen in zentralen Planwirtschaften weniger hell beleuchtet werden.

Wie in Abbildung 5.9 zu sehen, ist in dieser Region die Übereinstimmung zwischen allen Feldern ziemlich schlecht; neben den Ausreißern nur im MOZART Lichter Feld gibt es gemeinsame Ausreißer des Lichter Laufs mit dem EDGAR Lauf sowie mit der GOME Richter Auswertung, dazu weitere einzelne Ausreißer. In einer so stark von Wachstum geprägten Region sind die EDGAR- wie die Lichterschätzung, die sich beide auf das Jahr 1995 beziehen, möglicherweise gegenüber dem Zeitraum der Satellitenmessungen von 1996 bis 2001 schon veraltet.

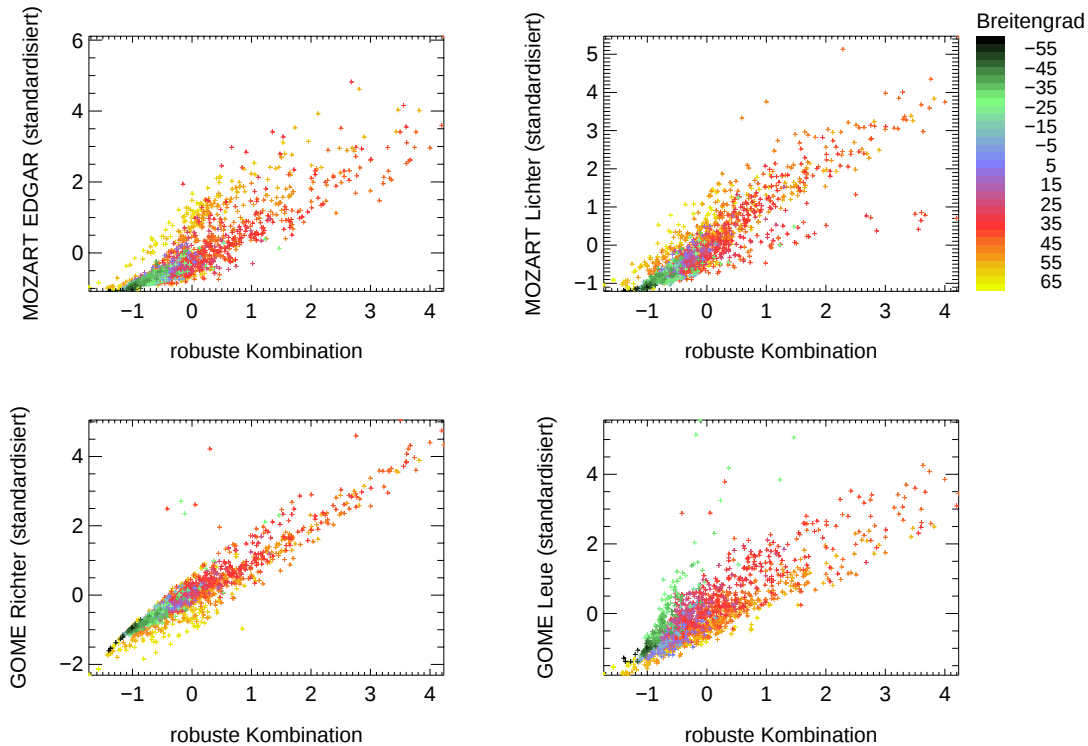


Abbildung 5.10: Auftragung der standardisierten NO_2 -Säulendichte-Felder gegen die robuste Kombination, Einfärbung nach geographischer Breite

Zumindest lässt sich festhalten, dass das Feld MOZART Lichter in China zu geringe Werte aufweist. Die Werte der anderen Felder sind höher, aber geographisch leicht gegeneinander verschoben: Die Maxima von GOME Richter liegen weiter nördlich, die von MOZART EDGAR weiter im Süden. Für eine zuverlässige Abschätzung der NO_2 -Säulen in dieser Region sind zusätzliche unabhängige Daten dringend erforderlich.

Weitere Ausreißer

Neben den beiden sofort ins Auge springenden Regionen gibt es weitere Ausreißer in den vier Datenfeldern:

- Die *EDGAR Modellrechnung* scheint die Säulendichten in einigen Industriezentren zu überschätzen, insbesondere über Großbritannien, aber auch über den Städten Houston, Moskau und Chonking.
- Die *Lichter Modellrechnung* überschätzt die Werte über Montreal, möglicherweise wegen des hohen Anteils von Wasserkraft an der kanadischen Stromerzeugung.
- In Skandinavien reißt die *GOME Richter Auswertung* nach unten aus; dort

hat das Satellitenfeld negative Werte, die wahrscheinlich eine Folge der Subtraktion des stratosphärischen Teils der Säulen sind.

- An der Ostküste der USA – die höchsten Säulen markieren hier New York – ergeben sich Ausreißer, da, wie in Abbildung 5.4 erkennbar ist, die Maxima in beiden Modellrechnungen direkt an der Küste liegen, während die Maxima der Satellitenauswertungen etwas ins Landesinnere verschoben sind.

5.5 Andere Fehlerangaben

Für Messwerte wird oft ein Fehler angegeben, der sich aus einem Teil η_1 prozentual zum wahren Wert und einem Grundrauschen η_2 , das der Nachweisgrenze entspricht, zusammensetzt. Angegeben werden jeweils $\text{stddev}(\eta_1/X_{\text{true}})$ und $\text{stddev}(\eta_2)$. Dies entspricht dem Ansatz:

$$X = X_{\text{true}} + \eta_1 + \eta_2, \quad \eta_1 = bX_{\text{true}}\xi_1, \quad \eta_2 = c\xi_2, \quad (5.4)$$

$$\langle \xi_i \rangle = 0, \quad \langle \xi_i \xi_j \rangle = \delta_{ij}, \quad \langle X_{\text{true}} \xi_i \rangle = 0,$$

mit $b = \text{stddev}(\eta_1/X_{\text{true}})$ und $c = \text{stddev}(\eta_2)$. In diesem Abschnitt wird versucht, eine solche Fehlerangabe mit dem in dieser Arbeit verwendeten Musterfehler zu vergleichen; letzterer folgt aus dem Ansatz

$$X = aX_{\text{true}} + \eta, \quad \langle \eta \rangle = 0, \quad \langle \eta X_{\text{true}} \rangle = 0,$$

bei dem keine funktionale Form von η vorgegeben wird.

Jetzt wird eine Annahme über die Fehler gemacht, die bislang nicht nötig war, die aber weiter unten noch einmal gebraucht wird: ξ_1 soll normalverteilt sein. Die Annahme ist wahrscheinlich nur näherungsweise erfüllt, dient hier aber auch nur einem näherungsweisen Vergleich. Unter dieser Annahme folgt aus der Unkorreliertheit von ξ_1 und X_{true} auch deren statistische Unabhängigkeit. Der Erwartungswert eines Produkts unabhängiger Größen ist gleich dem Produkt der Erwartungswerte. Damit sind auch X_{true} und η_1 unkorreliert:

$$\langle X_{\text{true}} \eta_1 \rangle = b \langle X_{\text{true}}^2 \xi_1 \rangle = b \langle X_{\text{true}}^2 \rangle \langle \xi_1 \rangle = 0.$$

Unter dieser Annahme gilt in dem für den Musterfehler verwendeten Ansatz $a = 1$, da a eine mögliche Korrelation zwischen wahren Feld und Fehlerfeld kompensieren sollte, und damit gilt $\eta = \eta_1 + \eta_2$. Der Musterfehler, der dem Ansatz aus Gleichung 5.4 entspricht, lautet also

$$e_X = \frac{\text{var}(\eta_1) + \text{var}(\eta_2)}{\text{var}(X)}.$$

Die Varianz von η_2 ist bekannt: $\text{var}(\eta_2) = c^2$, $\text{var}(\eta_1)$ berechnet sich wie folgt:

$$\begin{aligned}
 \text{var}(\eta_1) &= \langle \eta_1^2 \rangle - \langle \eta_1 \rangle^2 \\
 &= b^2 \langle X_{true}^2 \xi_1^2 \rangle \\
 &\stackrel{normal}{=} b^2 \langle X_{true}^2 \rangle \langle \xi_1^2 \rangle = b^2 \langle X_{true}^2 \rangle \\
 &= b^2 \langle (X - bX_{true}\xi_1 - c\xi_2)^2 \rangle \\
 &= b^2 \langle X^2 - 2bX_{true}^2\xi_1 - \eta_1^2 - \eta_2^2 \rangle \\
 &\stackrel{normal}{=} b^2 \langle X^2 \rangle - b^2 \langle \eta_1^2 \rangle - b^2 \langle \eta_2^2 \rangle \\
 &= b^2 (\text{var}(X) + \bar{X}^2) - b^2 \text{var}(\eta_1) - b^2 \text{var}(\eta_2)
 \end{aligned}$$

Daraus folgt

$$\text{var}(\eta_1) = \frac{b^2}{1+b^2} (\text{var}(X) + \bar{X}^2 - \text{var}(\eta_2)) ,$$

und für den Musterfehler ergibt sich

$$e_{X,est} = \frac{\frac{b^2}{1+b^2} (\text{var}(X) + \bar{X}^2 - c^2) + c^2}{\text{var}(X)} . \quad (5.5)$$

Richter & Burrows [34] geben für ihre troposphärischen Säulendichten an, ihre Säulen könnten um bis zu einen Faktor Zwei kleiner sein als die wahren Säulen. Dies entspricht in den hier verwendeten Symbolen $b = 0 \dots 1/2$. Zusätzlich geben sie als konservative Schätzung für den Fehler aufgrund der Subtraktion der stratosphärischen Säulen einen Wert von $1 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ an. Ein solcher Fehler wirkt sich eher als konstanter Offset denn als Rauschen aus und wird daher hier nicht berücksichtigt. Leue et al. [24] geben für den relativen Fehler einen Bereich von 25% bis 50% an, was den Werten $b = 1/4 \dots 1/2$ entspricht. Mit den Mittelwerten und Standardabweichungen der Datenfelder aus Tabelle 5.3 und unter der Annahme von $c = 0$ ergibt Gleichung 5.5

$$\begin{aligned}
 e_{Richter,est} &= 0.00 \dots 0.52 \\
 e_{Leue,est} &= 0.30 \dots 1.00
 \end{aligned}$$

Diese Bereiche stimmen sehr gut mit den hier unabhängig aus der Korrelations-Fehleranalyse bestimmten Bereichen für die Musterfehler in Tabelle 5.2 überein:

$$\begin{aligned}
 e_{Richter} &= 0.00 \dots 0.39 \\
 e_{Leue} &= 0.26 \dots 0.55 .
 \end{aligned}$$

Richter und Leue scheinen dem oft beobachteten Trend zu folgen, nur grob zu schätzende Messfehler eher etwas zu groß anzugeben.

5.6 Vergleich GOME Auswertung Boersma et al.

Das in diesem Kapitel konstruierte optimale Kombinationsfeld für die NO₂-Säulen soll nun mit einer der aktuelleren GOME Auswertungen verglichen wer-

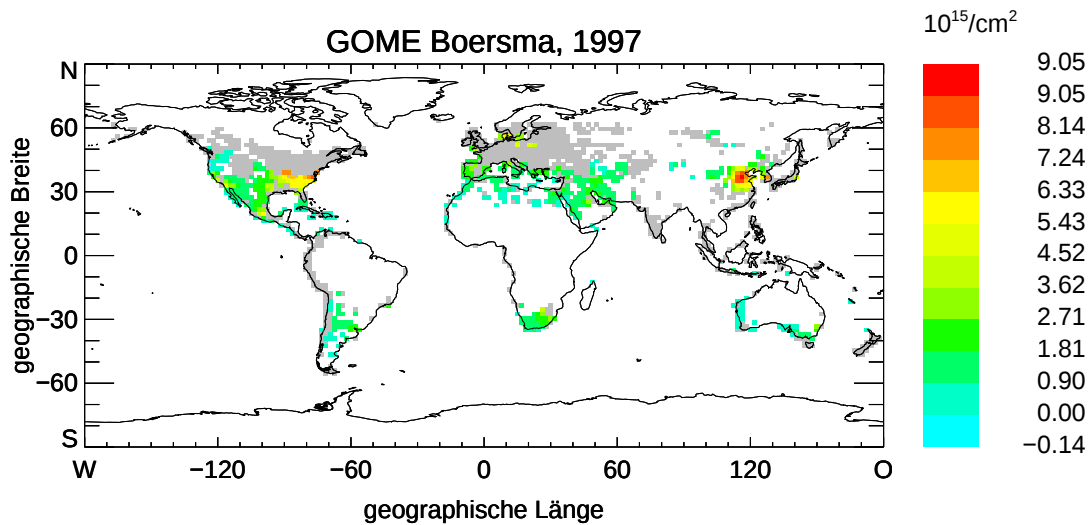


Abbildung 5.11: Jahresmittelwert der troposphärischen NO_2 -Säulen der GOME Auswertung von Boersma et al. in der Auflösung T63; weiß: in diesem Kapitel nicht betrachtete Punkte, grau: GOME Boersma nicht definiert, farbig: für den Vergleich in diesem Abschnitt verwendete Gitterpunkte (GOME Boersma und GOME Richter definiert, anthropogen dominiert und über Land liegend)

den, nämlich mit der Auswertung von Boersma et al. [4] vom KNMI. Diese Auswertung ist in Kapitel 1 kurz beschrieben: Die schiefen Säulen wurden mit einer kleinen Korrektur aus dem IUP Heidelberg übernommen, der stratosphärische Anteil wurde mittels Datenassimilation bestimmt, die zur Bestimmung der *Air Mass Factors* notwendigen Informationen über Aerosole und Höhenprofil des NO_2 wurden mit Hilfe des globalen Chemie-Transport-Modells TM3 gewonnen.

Durch die Verwendung des Modells ist die Auswertung von Boersma et al. nicht unabhängig von den hier verwendeten Modellrechnungen, da TM3 wie MOZART auf das EDGAR-Emissionskataster zurückgreift und weiterhin bei Modellen grundsätzlich nie eine völlige Unabhängigkeit angenommen werden kann. Die Voraussetzungen für die in diesem Kapitel durchgeführte Korrelations-Fehleranalyse sind also nicht erfüllt, ein Vergleich beider Ergebnisse ist jedoch trotzdem interessant.

Boersma et al. werteten GOME Daten für das Jahr 1997 aus, der Jahresmittelwert ist in der Auflösung T63 in Abbildung 5.11 dargestellt; es sind dort nur die Pixel farbig dargestellt, die einerseits zu den in diesem Kapitel analysierten Gitterpunkten gehören und an denen andererseits in dem Boersma Datensatz definierte Werte vorliegen. Die in diesem Kapitel nicht analysierten Pixel sind weiß, die zwar analysierten aber in GOME Boersma nicht definierten Pixel sind grau gefärbt.

Die großen Gebiete grauer Färbung kommen wie folgt zustande: Da Pixel mit einem Wolkenbedeckungsgrad von mehr als 15% bei der Auswertung herausgenommen wurden, weist der Datensatz ähnlich wie der von Richter & Burrows

R_{ij}	MOZ EDGAR	MOZ Lichter	GOME Richter	GOME Leue
GOME Boersma	0.86 ± 0.02	0.77 ± 0.03	0.91 ± 0.01	0.86 ± 0.02

Tabelle 5.9: Korrelationskoeffizienten zwischen den troposphärischen NO₂-Säulen der GOME Auswertung von Boersma et al. und den vier in diesem Kapitel untersuchten NO₂-Feldern

Lücken auf. In dieser Arbeit wurde bei der Interpolation auf die Modellauflösung T63 einem Gitterpunkt nur dann ein Wert zugeordnet, wenn mindestens 50% der Fläche des Pixels von Pixeln mit definierten Werten in der ursprünglichen Auflösung bedeckt war. Um einen *bias* durch den Jahresgang zu vermeiden, wurde dem Gitterpunkt weiterhin nur dann ein Wert zugewiesen, wenn der Wert dort in allen Monaten eines Jahres definiert war. In dem Mittelwert über den siebenjährigen Datensatz von Richter & Burrows konnten Lücken zum Teil durch Werte in anderen Jahren gefüllt werden; da die Boersma Auswertung nur ein Jahr abdeckt, ist dies dort nicht möglich. Von den 1463 anthropogen dominierten Gitterpunkten, die in diesem Kapitel untersucht wurden, bleiben nur noch 534 Punkte übrig. Da also knapp zwei Drittel der Punkte wegfallen (graue Pixel in Abbildung 5.11), darunter große Teile Europas und Nordamerikas, kann der Vergleich nur mit Vorsicht interpretiert werden.

In Tabelle 5.9 sind die Korrelationskoeffizienten der Boersma Auswertung mit den vier untersuchten Feldern aufgelistet. Die Korrelation mit GOME Richter ist am höchsten, obwohl Boersma et al. die schiefen Säulen nicht von der Satellitengruppe am IUP Bremen, sondern von der am IUP Heidelberg übernommen haben. Dies lässt darauf schließen, dass die Hauptunterschiede zwischen den Auswertungen von GOME Richter und GOME Leue nicht in der Auswertung der Spektren liegen, sondern bei der Umrechnung von schiefen in vertikale Säulen. Die Korrelation zwischen dem Boersma Datensatz und der lichterbasierten Modellrechnung ist am schlechtesten; das überrascht nicht, da die Lichter nirgends in die Satellitenauswertung eingehen.

In Abbildung 5.12 oben ist die Korrelation des Boersma Datensatzes mit der optimalen Kombination der vier Felder in Abhängigkeit von der jeweils angenommenen relativen Fehlerkovarianz e_{12} zwischen den beiden Modellrechnungen dargestellt. Über den gesamten Bereich ist die Korrelation höher als an dessen Ende bei $e_{12} = 0.39$, wo die Kombination zu 100% aus GOME Richter besteht; durch Einmischen der anderen Felder wird die Korrelation also in jedem Fall erhöht. Das Maximum der Korrelation liegt in der Mitte des Bereichs oder etwas links davon. Die in Abschnitt 5.3.2 vorgestellte Beispielskombination korreliert mit $R_{comb,Boersma} = 0.94 \pm 0.01$ also nahezu bestmöglich mit der GOME Auswertung von Boersma et al.. Die Berücksichtigung der Ausreißer dagegen verschlechtert die Korrelation leicht, dann wird nur noch der Wert $R_{robust,Boersma} = 0.93 \pm 0.01$ erreicht.

Die hohe Korrelation kann einerseits auf einen hohen Wahrheitsanteil in beiden Datensätzen, andererseits aber auch auf gemeinsame Fehler etwa durch das

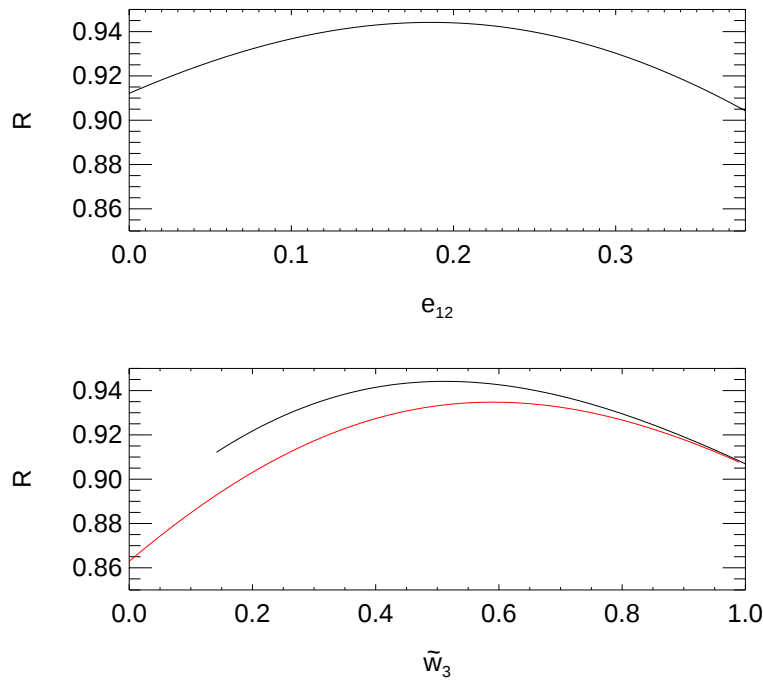


Abbildung 5.12: Korrelation GOME Boersma – optimale Kombination, oben: gegen die jeweilige relative Fehlerkovarianz der Modellrechnungen; unten, schwarz: gegen den Anteil GOME Richter an der Kombination; rot: gegen den Anteil GOME Richter an einer Kombination nur mit MOZART EDGAR

EDGAR Emissionskataster zurückgeführt werden, auch wenn letzteres in die Boersma Auswertung nur indirekt eingeht. Deshalb wurde die Korrelation in Abbildung 5.12 unten nochmals gegen den Wichtungsfaktor $\tilde{w}_3$ der GOME Richter Auswertung geplottet (schwarze Linie). Da auch unter der Annahme verschwindender Fehlerkovarianz zwischen den Modellrechnungen ($e_{12} = 0$) ein endlicher Anteil des Richter Datensatzes in der Kombination übrig bleibt, endet diese Kurve nicht bei Null.

In der gleichen Teilabbildung ist in Rot die Korrelation einer Kombination aus GOME Richter nur mit der MOZART EDGAR Rechnung dargestellt, der Anteil der Satellitenauswertung entspricht dem Wert auf der x-Achse. Am rechten Rand des Bereichs liegen die rote und die schwarze Kurve übereinander, da dort beide Kombinationen zu 100% aus dem Richter Datensatz bestehen. Der linke Rand der roten Kurve entspricht dem reinen MOZART EDGAR, hier wird als Minimum der Wert aus Tabelle 5.9 erreicht.

Wo die Kombinationen nicht identisch sind, liegt die rote Kurve überall unterhalb der schwarzen Kurve; obwohl die Modellrechnung auf Basis der Lichter am schlechtesten mit der Boersma Auswertung korreliert, verbessert ihr Einmischen in die Kombination die Korrelation mit diesem Datensatz. Dies spricht dafür, dass die hohe Korrelation der Kombination mit der Boersma Auswertung nicht aufgrund gemeinsamer Fehler wegen Benutzung der EDGAR Datenbank zustande kommt, sondern aufgrund eines gemeinsamen hohen Wahrheitsanteils.

Kapitel 6

GOME–Säulendichten: Proxy für anthropogene Emissionen

Bevor in Kapitel 7 die Korrelations–Fehleranalyse auf anthropogene NO_x –Emissionen angewandt werden kann, müssen mit Hilfe der NO_2 –Satellitensäulen anthropogene Quellfelder abgeschätzt werden. Dies soll wieder in dem schon im vorherigen Kapitel betrachteten durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet durchgeführt werden.

Eine Möglichkeit zur Umwandlung von Säulendichten in Quellen wäre es, eine invertierte Modellrechnung mit den Säulendichten durchzuführen. Die Invertierung des MOZART–Modells liegt jedoch außerhalb dessen, was in dieser Arbeit möglich ist. Abgesehen davon gäbe es dabei aber auch ein prinzipielles Problem: Es würden mögliche Fehler des MOZART–Modells auf die Satellitenfelder übertragen. Deswegen sollen hier mit möglichst wenigen Annahmen und einfachen Mitteln aus den GOME–Säulen Abschätzungen für die anthropogenen Quellfelder gewonnen werden.

Um den ungerichteten Transport teilweise zu kompensieren, werden die Säulendichtefelder einer Entfaltung unterzogen. Dann werden relativ zur EDGAR–Quelle Offsets eliminiert und die Quellstärke skaliert und schließlich wird durch Potenzieren die Varianz angepasst. Durch Anwendung dieser Mittel auf die Modellsäulendichten wird geprüft, ob zumindest modellintern die Säulendichtefelder den Quellfeldern ähnlicher werden.

6.1 Troposphärische Säulendichten und Emissionen

Wegen der kurzen Lebensdauer (Größenordnung: ≤ 1 Tag) von NO_x ($\text{NO} + \text{NO}_2$) sind die Verteilungsmuster von NO_2 –Säulen und NO_x –Quellen sehr ähnlich. Innerhalb des Modells lässt sich dies mit Hilfe des Korrelationskoeffizienten quantifizieren: Zwischen dem Jahresmittelwert der EDGAR– NO_x –Quellen und dem damit modellierten NO_2 –Säulendichten existiert eine Korrelation von $R = 0.84$. Das heißt aber auch, dass 30% der Varianz in beiden Datensätzen nicht gemein-

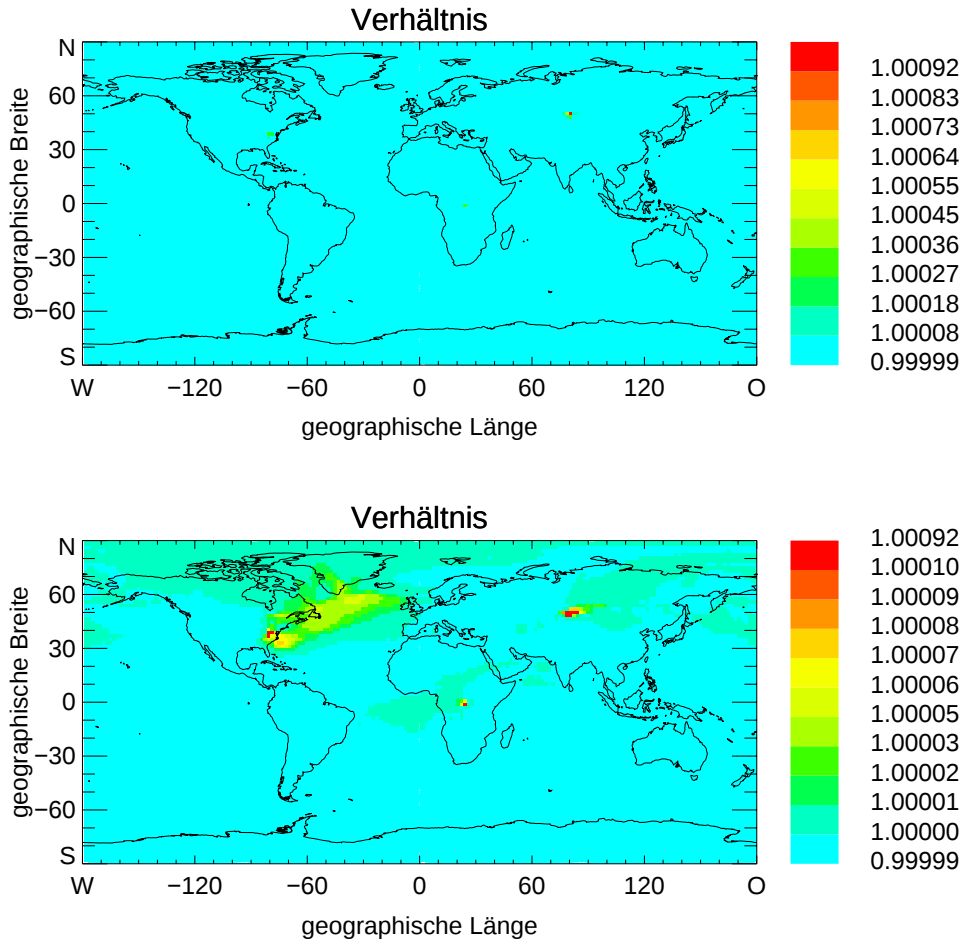


Abbildung 6.1: Verhältnis der Säulendichten zweier Modellrechnungen nach sieben Wochen, bei denen unter sonst gleichen Bedingungen die Quellstärken eines Laufes an drei Gitterpunkten (Ostküste Nordamerikas, Kasachstan, tropisches Afrika) um 1‰ erhöht wurden; oben: lineare Farbskala, unten: gespreizte Farbskala

sam ist. Dies ist eine Folge von gerichtetem wie ungerichtetem Transport (Advektion und turbulente Diffusion), der Ortsabhängigkeit der Lebensdauer und des NO-Anteils am NO_x .

6.1.1 Transport

Zur Abschätzung der Bedeutung des Transports innerhalb des Modells wurde ein kurzer MOZART-Lauf durchgeführt, bei dem an drei Gitterpunkten (an der Ostküste Nordamerikas, in Kasachstan und im tropischen Afrika) die NO_x -Quellstärke um jeweils 1‰ gegenüber ihrem ursprünglichen Wert erhöht war. Die Erhöhung wurde so gering gewählt, damit sich dadurch das chemische Regime nicht ändert.

Das Verhältnis der Läufe mit und ohne Erhöhung nach sieben Wochen (der

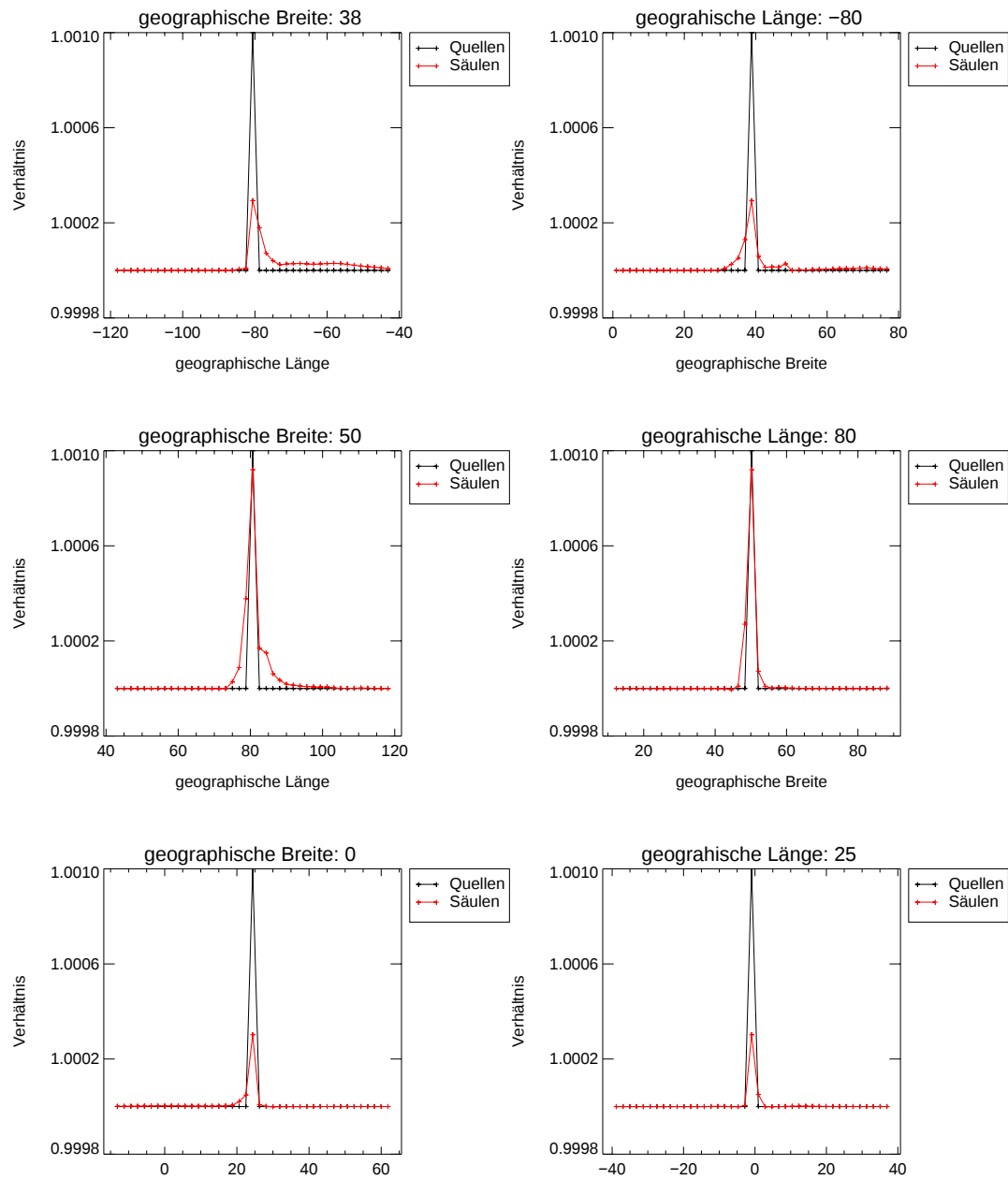


Abbildung 6.2: rot: eindimensionale Schnitte entlang eines Längen- bzw. Breiten-grades durch die Karten aus Abbildung 6.1, schwarz: Verhältnisse der zugehörigen Quellstärken

Lauf startete am ersten Januar, der Zeitpunkt der Untersuchung ist also Mitte Februar) ist in Abbildung 6.1 dargestellt. In der oberen Abbildung verläuft die Farbskala linear bis zum Maximum. Bei dieser Skala ist gut zu sehen, dass ein signifikanter Einfluss der Änderung der Quellen auf die Säulen auf die Nachbarpunkte beschränkt bleibt. In der Abbildung darunter wurde die Farbskala für kleine Werte gespreizt. Hier wird deutlich, dass weitreichender Transport zwar stattfindet, allerdings in einer sehr kleinen Größenordnung.

Um den Einfluss des Transportes sichtbar zu machen, werden in Abbildung 6.2 eindimensionale Schnitte des Verhältnisses der erhöhten zu den nicht erhöhten Quellen sowie der zugehörigen Säulen nach sieben Wochen entlang des Längens- bzw. Breitengrades der erhöhten Quelle gezeigt. Auch hier wird deutlich, dass zwar insbesondere von der Ostküste Nordamerikas aus weitreichender Transport stattfindet, dass aber der Einfluss der Erhöhung schon bei den übernächsten Nachbarpunkten deutlich abgefallen ist.

Ungerichteter Transport: Faltung – Entfaltung

Die einfachste Möglichkeit, ungerichteten Transport zu den benachbarten Gitterpunkten zu simulieren ohne detaillierte Annahmen über meteorologische Parameter machen zu müssen, ist eine Glättung, bzw. eine Faltung mit dem *kernel*

$$K = \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & n & 1 \\ 1 & 1 & 1 \end{pmatrix}. \quad (6.1)$$

Wie in Anhang B beschrieben entspricht dies einer Mittelung über einen Punkt und seine Nachbarpunkte, wobei der Mittelpunkt jeweils n -fach so stark gewichtet wird wie seine Nachbarn: je kleiner n , desto stärker die Glättung. Im Gegensatz zum MOZART-Modell kann eine solche Faltung einfach invertiert werden, auch dies wird in Anhang B beschrieben.

In Abbildung 6.3 ist der Korrelationskoeffizient zwischen den jährlich gemittelten modellierten Säulendichten und den mit dem *kernel* K aus Gleichung 6.1 gefalteten zugehörigen Gesamtquellen für den gesamten Globus in Abhängigkeit des Faltungsparameters n dargestellt. Ebenfalls dargestellt ist die Korrelation zwischen den modellierten Säulendichten mit den gefalteten anthropogenen Quellen für das betrachtete durch anthropogene Emissionen dominierte Gebiet. Die Korrelationen mit den ungeglätteten Quellen (R_∞) sind jeweils in der Legende angegeben.

Insbesondere in dem durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet erhöht sich die Korrelation zwischen Modellquellen und -Säulen durch die Glättung deutlich. Die größte Übereinstimmung zwischen anthropogenen NO_x -Quellen und NO_2 -Säulen wird sowohl für den EDGAR- wie auch für den Lichterlauf bei $n = 4$ erzielt. Ein Teil des Transportes kann also durch eine simple Faltung simuliert werden.

Für die modellinterne Korrelation zwischen Quellen und Säulen im anthropogen dominierten Gebiet spielt es im Übrigen fast keine Rolle, ob mit den Gesamtemissionen oder nur mit den anthropogenen Emissionen korreliert wird: Die (im

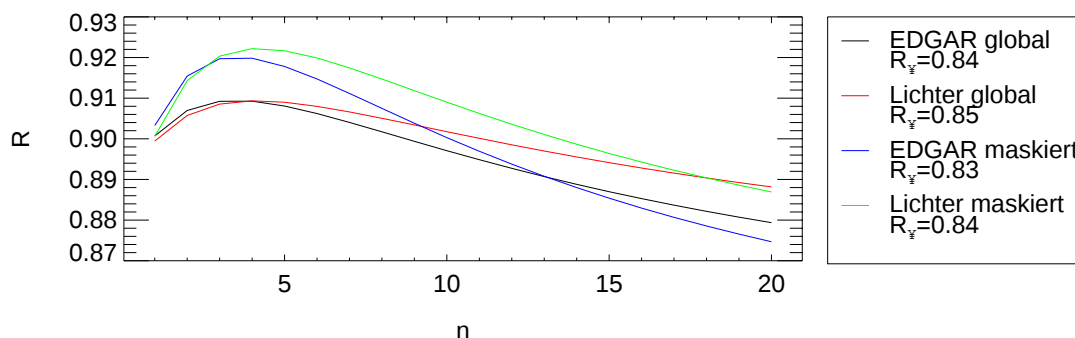


Abbildung 6.3: Korrelation zwischen modellierten Säulendichten und zugehörigen geglätteten Gesamtquellen für den gesamten Globus, bzw. zugehörigen geglätteten anthropogenen Quellen für das anthropogen dominierte Gebiet, in Abhängigkeit des Faltungsp Parameters n aus Gleichung 6.1; in der Legende angegeben: Korrelation mit den ungeglätteten Quellen (R_{∞})

Modell verwendeten) biogenen Emissionen machen in den betrachteten anthropogen dominierten Gebieten zwar 17% der Quellstärke aus, wirken sich aber eher wie ein Offset aus: Zur räumlichen Varianz der Quellfelder tragen sie mit 1% nur wenig bei. Dies kann natürlich für die tatsächlichen biogenen Emissionen anders sein.

Die Umkehroperation dieser Faltung, die in Anhang B beschriebene Entfaltung, soll auf die GOME-Felder angewandt werden, um den im folgenden Kapitel (siehe Abschnitt 7.1) bestimmten Musterfehler der GOME-basierten Quellfelder zu verringern. Bei der Durchführung der Korrelations-Fehleranalyse für die Quellfelder (Kapitel 7) zeigt sich wie erwartet eine Verkleinerung des Musterfehlers nach der Entfaltung, allerdings wird dort das Minimum bei $n = 8$ erreicht. Da der Zweck der Operation eine Verkleinerung des durch den Transport bedingten Musterfehlers in den als Quellen interpretierten Satellitenfeldern sein soll, werden die Satellitenfelder im Folgenden mit einem *kernel* mit dem Parameter $n = 8$ entfaltet. Damit reduziert sich in allen Fällen die nicht gemeinsame Varianz zwischen Emissionen und Säulendichten von 30% auf unter 20%.

Es wird nicht versucht, den gerichteten Transport und einen etwas realistischeren ungerichteten Transport, der räumlich unterschiedlich stark ausgeprägt sein kann und auch nicht isotrop sein muss, zu kompensieren. Für das Erreichen jedes weiteren Prozentes gemeinsamer Varianz zwischen Quellen und Säulen sind zunehmend komplexe Operationen erforderlich, und es besteht stets die Gefahr, durch fehlerhafte Annahmen die Fehlervarianz der Satellitenfelder zu erhöhen. Außerdem bliebe selbst bei vollständig korrekter Kompensation des Transports eine Differenz zu den Quellen, da ein großer Teil der 20% nicht gemeinsamer Varianz auf die Ortsabhängigkeit der Lebensdauer von NO_x zurückzuführen ist, siehe unten.

6.1.2 Lebensdauer und NO-Anteil des NO_x

Wie in Kapitel 1 beschrieben bestimmten Martin et al. [26] mit Hilfe der GOME-Säulendichten unter Benutzung des Modells GEOS-CHEM NO_x-Quellen. Für ihre *a priori* Schätzung berechneten sie an jedem Gitterpunkt das Verhältnis von modellierten Säulendichten zur zugrundeliegenden Quellstärke und bestimmten so eine lokale effektive Modell-Lebensdauer $\tau_{M, local}^*$, die neben der chemischen Lebensdauer und der Begrenzung der Lebensdauer durch Deposition auch den NO-Anteil am NO_x sowie Transport beinhaltet. Zur Abschätzung ihres *a priori* Quellfeldes dividierten sie die Satellitensäulen durch das innerhalb des Modells GEOS-CHEM bestimmte effektive Lebensdauerfeld $\tau_{M, local}^*$. Dieses Vorgehen führt insbesondere in der Umgebung großer Gradienten der Quellfelder zu Fehlern, wenn der Transport im Modell nicht mit dem realen Transport zum Zeitpunkt der GOME-Messung übereinstimmt.

Das Muster der lokalen effektiven Lebensdauer kann nur modellintern bestimmt werden und hängt empfindlich von Modellfehlern sowohl beim Transport wie auch bei der Chemie ab. Damit diese potentiellen Modellfehler nicht den Satellitenfeldern aufgeprägt werden, wird in dieser Arbeit unter Benutzung des MOZART-Modells statt einer lokalen eine globale effektive Lebensdauer τ_M^* bestimmt. Dazu werden die über die Erdoberfläche integrierten modellierten Säulendichten durch die über dieselbe Fläche integrierten zugrundeliegenden Gesamtemissionen geteilt. Der Transport spielt bei diesem Verhältnis keine Rolle, da durch die Integration über den gesamten Globus auch die transportierten aber noch nicht abgebauten Stickoxide erfasst werden. Die beiden für diese Arbeit durchgeführten Modellrechnungen (EDGAR und Lichter) lieferten denselben Wert

$$\tau_M^* \approx 0.92 \text{ Tage} .$$

Diesem Ansatz liegt die Annahme zugrunde, dass die Lebensdauer sowie der NO-Anteil am NO_x räumlich konstant sind. Beirle et al. [2] schätzen mit Hilfe von GOME die Lebensdauer von NO_x exemplarisch für Deutschland zwischen sechs Stunden im Sommer und 18 – 24 Stunden im Winter ab. Martin et al. [26] geben neben den lokalen auch zonal gemittelte Lebensdauern an, dort sieht man, dass die Werte auf der Südhalbkugel entsprechend jahreszeitlich verschoben sind. Im Jahresmittel heben sich diese Unterschiede also weitgehend auf; die verbleibende Ortsabhängigkeit bleibt ebenso wie oben der gerichtete Transport und die Inhomogenität des ungerichteten Transports unberücksichtigt.

Werden die entfalteten Satellitenfelder (die Entfaltung lässt den Mittelwert unverändert) durch die effektive Lebensdauer τ_M^* dividiert und die so erhaltenen Quellfelder über die Erdoberfläche integriert, so ergeben sich Quellstärken, die kleiner sind als die NO_x-Gesamtquelle aus dem MOZART-Modell. Auch die Integration über die durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiete ergibt kleinere Quellstärken als die der anthropogenen NO_x-Quelle aus EDGAR 3. Beide Werte sind in der Einheit Megatonnen Stickstoff pro Jahr in Tabelle 6.1 dargestellt. Ebenso wenig wie beim direkten Vergleich der Säulendichten in Kapitel 3 kann hier entschieden werden, welche Werte eher der Realität entsprechen: Die

	Modell– Emissionen	GOME Richter, entfaltet, $1/\tau_M^*$	GOME Leue, entfaltet, $1/\tau_M^*$
Gesamtquellstärke global, überall definiert	42 Mt N/y	16 Mt N/y	38 Mt N/y
anthropogene Quellstärke im betrachteten Gebiet	16 Mt N/y	6 Mt N/y	9 Mt N/y

Tabelle 6.1: Globale Gesamtquellstärke der modellinternen NO_x -Emissionen sowie der beiden entfalteten und durch die globale effektive Modell-Lebensdauer dividierten Satellitenauswertungen in den in beiden Satellitenauswertungen definierten Gebieten, sowie anthropogene Gesamtquellstärke in den durch anthropogene Emissionen dominierten Gebieten

EDGAR-Emissionen könnten zu hoch geschätzt sein, die Satellitenauswertungen könnten einen Skalierungsfehler enthalten, die modellierte effektive Lebensdauer τ_M^* könnte zu groß sein, oder es könnte eine Kombination diese Effekte aufgetreten sein.

6.2 Offset und Skalierung

Bei der Bestimmung der Musterfehler spielen Offsets oder Skalierungsfaktoren keine Rolle, beim Zusammensetzen einzelner Teilfelder können Offsets jedoch neue Musterfehler erzeugen, siehe Abschnitt 5.4.3. Deshalb wurden die Säulendichte-Felder in Kapitel 5 standardisiert. Da ein Ziel dieser Arbeit die Konstruktion eines optimierten Quellfeldes ist, mit dem auch eine MOZART-Modellrechnung durchgeführt werden soll, dürfen Mittelwert und Varianz der Felder nicht weiter ignoriert, sondern müssen möglichst realistisch abgeschätzt werden. Es werden daher folgende Annahmen gemacht:

- Hinsichtlich der Gesamtquellstärke wird in dieser Arbeit angenommen, dass das Integral der anthropogenen NO_x -Emissionen über die betrachteten anthropogen dominierten Gebiete von EDGAR richtig geschätzt wurde.
- Ferner wird angenommen, dass das anthropogene NO_x -Emissionsfeld von EDGAR und die lichterbasierte NO_x -Quelle keine Offsets aufweisen.

Beide Datensätze beinhalten die Null; da es keine negativen Emissionen gibt, könnte ein potentieller Offset nur aus einer über das betrachtete Gebiet konstanten anthropogenen Emission bestehen, was als unwahrscheinlich angesehen wird.

6.2.1 Offset und Nullpunktrauschen der entfalteten Säulen relativ zu den Emissionen

Der Offset der Satellitenfelder kann relativ zu den nach der zweiten oben gemachten Annahme offsetfreien anthropogenen EDGAR Emissionen bestimmt und dann

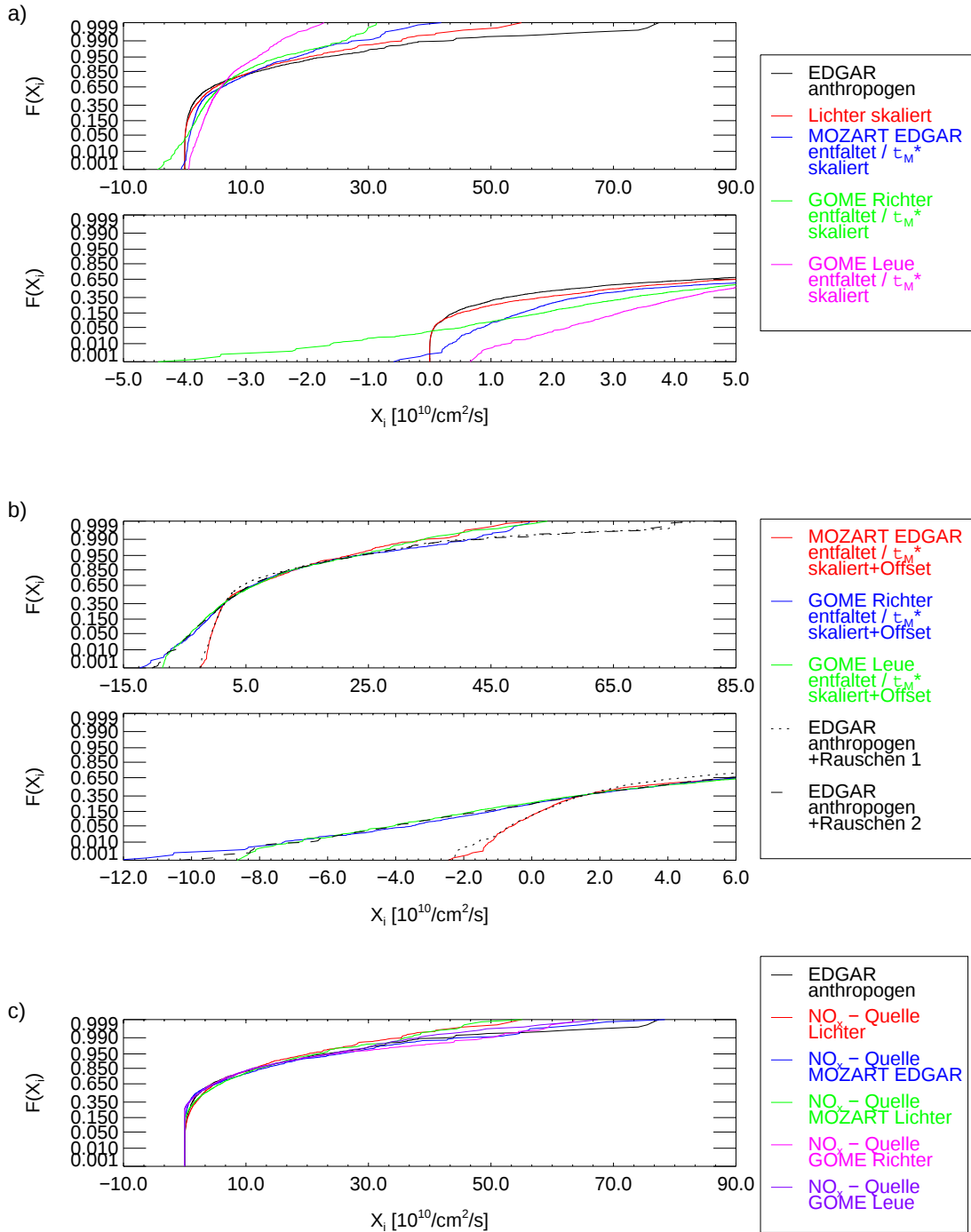


Abbildung 6.4: Kumulierte Häufigkeitsverteilung $F(X_i)$ der Felder X_i (s. Legende) in den durch anthropogene Emissionen dominierten Gebieten; a) Quellfelder und auf die Quellstärke von EDGAR anthropogen skalierte entfaltete Säulendichten, darunter: Ausschnitt für kleine Werte; b) Verteilung der Satellitensäulen nach Subtraktion der Offsets relativ zu EDGAR anthropogen und Neuskalierung, Emissionen nach Addition des Nullpunktrauschens der Satellitensäulen (Rauschen 2) und der Modellsäulen (Rauschen 1), wieder mit Ausschnitt, c) nach Potenzierung mit dem in Abschnitt 6.3 bestimmten Exponenten

subtrahiert werden; zum Vergleich wird auch der entsprechende Offset der Modellsäulen bestimmt. Zur Offsetbestimmung ist ein Vergleich der niedrigen Werte in den betrachteten Datensätzen erforderlich. Dieser Vergleich wird dadurch erschwert, dass ein mittelwertsfreies Rauschen bei kleinen Säulendichten zu negativen Werten führen kann, selbst wenn der Datensatz einen positiven Offset hat. Deswegen wurden nicht die Werte selbst, sondern ihre kumulierten Häufigkeitsverteilungen verglichen.

Die kumulierte Häufigkeitsverteilung eines offsetfreien Quellfeldes ohne Nullpunktrauschen beginnt im Nullpunkt. Die kumulierte Häufigkeitsverteilung der gleichen Quelle mit einem Nullpunktrauschen beginnt bei negativen Werten und steigt in der Nähe des Nullpunktes gemäß dem Rauschen weniger steil an als die Kurve der Verteilung ohne Rauschen. Ein Offset verschiebt die gesamte Verteilung je nach Vorzeichen in Richtung positiver oder negativer Werte.

In Abbildung 6.4 a) ist die kumulierte Häufigkeitsverteilung F der anthropogenen NO_x -Emissionen aus EDGAR, der lichterbasierten Quelle, der MOZART-Modellrechnung auf Basis der EDGAR-Quelle, sowie der beiden Satellitenauswertungen in dem betrachteten durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet dargestellt. Die Skala auf der y-Achse wurde so gewählt, dass eine Normalverteilung als Gerade dargestellt würde. Die drei Säulendichte-Felder wurden jeweils mit dem *kernel* aus Gleichung 6.1 mit der Wahl $n = 8$ entfaltet, durch die effektive Lebensdauer τ_M^* dividiert und gemäß den oben getroffenen Annahmen so skaliert, dass die Gesamtquellstärke in diesem Gebiet gleich der der anthropogenen EDGAR-Quelle ist. Da im Modell ein Nettotransport des NO_2 von den Gitterpunkten mit höheren Quellstärken zu denen mit niedrigeren Quellstärken stattfindet und die anthropogen dominierten Gitterpunkte eher durch höhere Quellstärken gekennzeichnet sind, musste auch die entfaltete Modellrechnung umskaliert werden, der Skalierungsfaktor hier liegt jedoch näher bei Eins (ist deutlich kleiner) als bei den Satellitenfeldern.

In der Abbildung darunter ist nochmals ein Ausschnitt der kumulierten Häufigkeitsverteilung für kleine Werte zu sehen. Die Verteilungen der beiden Emissionsfelder steigen am Nullpunkt senkrecht an (es gibt einen großen Anteil Gitterpunkte, an denen die Quellstärke fast verschwindet), die entfalteten Säulendichtefelder dagegen steigen deutlich flacher an. Dies ist schon bei den noch nicht entfalteten Säulen zu beobachten: Durch den Transport über Gebiete mit kleinen Quellstärken wird der Anstieg abgeflacht. Bei kleinen Werten wirkt sich das, wie aus der fast linearen Steigung zu entnehmen ist, wie ein fast normalverteiltes Rauschen aus. Durch die Entfaltung wird dieses Rauschen noch verstärkt. Die beiden Satellitenauswertungen enthalten zusätzlich zu diesem Effekt noch das Rauschen des Messinstrumentes sowie mögliche stratosphärische Fluktuationen, ebenfalls durch die Entfaltung verstärkt.

Zur Bestimmung der Offsets der Satellitenfelder wurde auf die EDGAR-Quelle ein simuliertes Rauschen mit der Steigung der Satellitendaten (Rauschen 2) addiert. Dann wurde auf die Satellitenfelder ein Offset addiert, so dass die Kurvenanfänge der kumulierten Häufigkeitsverteilungen übereinanderliegen. Schließlich wurden die Satellitenfelder wieder auf das vorgegebene Integral skaliert. Da diese

	NO _x -Quelle [$cm^{-2}s^{-1}$]		Säulen entfaltet [cm^{-2}]		Faktor
	Offset	Rauschen	Offset	Rauschen	
MOZ EDGAR	1.7×10^{10}	1.0×10^{10}	—	—	1.7
GOME Richter	4.4×10^{10}	3.7×10^{10}	2.5×10^{14}	4.2×10^{14}	6.7
GOME Leue	10.5×10^{10}	3.7×10^{10}	8.2×10^{14}	4.3×10^{14}	6.6

Tabelle 6.2: Offset und Rauschen (Standardabweichung) für die aus den Säulendichten konstruierten NO_x-Quellen (Entfaltung, Division durch τ_M^* , iterative Subtraktion und Skalierung); bei den zurückskalierten Werten für die entfalteten Säulendichten wurden die Werte für MOZART EDGAR bei den Satelliten herausgerechnet; ebenso angegeben ist der zusätzlich zur Division durch τ_M^* angewandte Skalierungsfaktor

Skalierung auch auf das Nullpunktrauschen wirkt, wurde dieser Vorgang manuell iteriert, bis bei kleinen Werten die kumulierten Häufigkeitsverteilungen der um ein Rauschen ergänzten Emissionen und der um einen Offset verschobenen Säulendichten optisch befriedigend übereinander lagen. Die zum Vergleich bestimmten Werte für Offset und Rauschen der EDGAR-Modellrechnung geben an, wie sich bei Verwendung der exakt passenden Quellen modellintern die Vernachlässigung von Transport, Ortsabhängigkeit der Lebensdauer und biogenen Emissionen sowie die Verstärkung des Rauschens durch die Entfaltung auswirkt.

Das Ergebnis dieses Verfahrens ist, wiederum als gesamte kumulierte Häufigkeitsverteilung und mit vergrößertem Ausschnitt um den Nullpunkt, in Abbildung 6.4 b) dargestellt. Auffällig ist, dass die Kurven der beiden Satellitenauswertungen, abgesehen von einigen sehr kleinen Werten, die aber weniger als 1% der Datenpunkte ausmachen, jetzt übereinander liegen: Ihr Nullpunktrauschen scheint, im Rahmen der Genauigkeit der manuellen Anpassung, gleich groß zu sein und damit nicht von den Unterschieden in den beiden Auswertungsalgorithmen abzuhängen. Das Nullpunktrauschen der Modellrechnung ist kleiner.

Die Werte der so für die aus den Säulendichten konstruierten NO_x-Quellen sind in Tabelle 6.2 dargestellt. Offset wie Standardabweichung des Rauschens sind für die aus der EDGAR-Modellrechnung konstruierte Quelle am geringsten. Das Rauschen ist, wie schon erwähnt, für beide Satellitenauswertungen gleich, der Offset ist für GOME Leue deutlich größer als für GOME Richter, aber für alle drei Felder positiv: Die Hintergrundkonzentration sowie die biogenen Emissionen führen zu positiven Beiträgen zu den Säulen, die vor der Betrachtung als Quellen subtrahiert werden müssen. Die Größe des Offsets in der GOME Leue Auswertung liefert auch einen Hinweis darauf, warum beim Vergleich der Fehlermaße in Abschnitt 5.2.1 für diesen Datensatz ein so großer Unterschied bestand zwischen dem Musterfehler (unabhängig vom Mittelwert und damit vom Offset) und dem Verhältnis aus Fehlervarianz zum Mittelwert.

Ebenfalls dargestellt in Tabelle 6.2 sind die zurückskalierten Werte für Offset und Rauschen in der Einheit der zwar entfalteten, aber nicht skalierten Satellitensäulen, für die die MOZART-Werte herausgerechnet wurden: Der MOZART-Offset wurde subtrahiert, zur Eliminierung des MOZART-Rauschens wurde zunächst durch Quadrieren die Varianz bestimmt und dann die Varianz des MO-

ZART-Rauschens subtrahiert und schließlich durch Wurzelziehen wieder zur Standardabweichung zurückgerechnet. Diese Werte können mit den relativ zu den modellierten Säulen bestimmten Werten der nicht entfalteten Säulen aus dem nächsten Abschnitt verglichen werden.

Ganz rechts in Tabelle 6.2 sind die Faktoren aufgelistet, mit denen die entfalten und skalierten Säulen nach Subtraktion der Offsets zurückskaliert werden müssen, um die EDGAR-Quellstärke wieder zu erreichen. Am kleinsten ist der Faktor bei den ehemaligen MOZART-Säulen, die auch den kleinsten Offset aufwiesen. Der Skalierungsfaktor bei den beiden Satellitenauswertungen ist in etwa gleich: Das größere Gesamtinventar von GOME Leue wird durch den größeren Offset kompensiert.

6.2.2 Offset und Nullpunktrauschen der Satelliten-Säulen relativ zur Modellrechnung

Analog zum Vorgehen mit entfalten Säulen und Quellen wurden Offset und Nullpunktrauschen für die Säulendichtefelder relativ zum MOZART-EDGAR-Lauf bestimmt. Die kumulierte Häufigkeitsverteilung der EDGAR- wie der Lichter-Modellrechnung und die der beiden Satellitenauswertungen (jeweils original und auf das Inventar der MOZART-Läufe skaliert) sind in Abbildung 6.5 a) dargestellt, oben die gesamte Verteilung, darunter ein Ausschnitt für kleine Werte. Genau wie bei der Eliminierung der Offsets aus den Quellfeldern wurde hier iterativ durch Addition eines Rauschens die Steigung der Verteilung der EDGAR-Modellrechnung an die der Verteilung der Satellitenauswertungen angepasst, durch Addition je eines Offsets auf die Satellitensäulen der Ursprung der zugehörigen Kurven auf den der Kurve der Modellrechnung verschoben und die Gesamtmenge NO₂ der Satellitenauswertungen auf die der Modellrechnung skaliert. Das Ergebnis dieses Prozesses ist in Abbildung 6.5 b) dargestellt, oben die gesamte Verteilung und darunter ein Ausschnitt für kleine Werte. Genauso wie bei der Betrachtung als Quellen liegen nach der Anpassung im Rahmen der manuellen Anpassungsgenauigkeit die drei Kurven für die kumulierten Häufigkeitsverteilungen im Bereich von 5% bis 60% übereinander, d.h. das Nullpunktrauschen beider GOME-Auswertungen ist etwa gleich groß.

In Kapitel 3 wurde gezeigt, dass die modellierten Säulendichten, die durch Summation der Höhenlevel bis zur thermischen Tropopause berechnet wurden, und die durch die Referenzsektor-Methode bestimmten Modellsäulen sehr hoch korreliert sind, dass sie sich im Gesamtinventar jedoch deutlich unterscheiden. Dies gilt genauso für die durch anthropogene Emissionen dominierten Gitterpunkte: Hier beträgt die Korrelation zwischen den mit beiden Verfahren berechneten troposphärischen Säulen sogar $R = 0.999$. Für die Musterfehler spielt die Methode zur Bestimmung der Säulen also keine Rolle, die Offsets hängen jedoch durchaus davon ab. Offsets und Nullpunktrauschen der Satellitenauswertungen wurden deshalb auch relativ zu den Modellsäulen nach der Referenzsektor-Methode bestimmt (ohne Abbildung). Die Werte sind für beide Fälle in Tabelle 6.3 dargestellt.

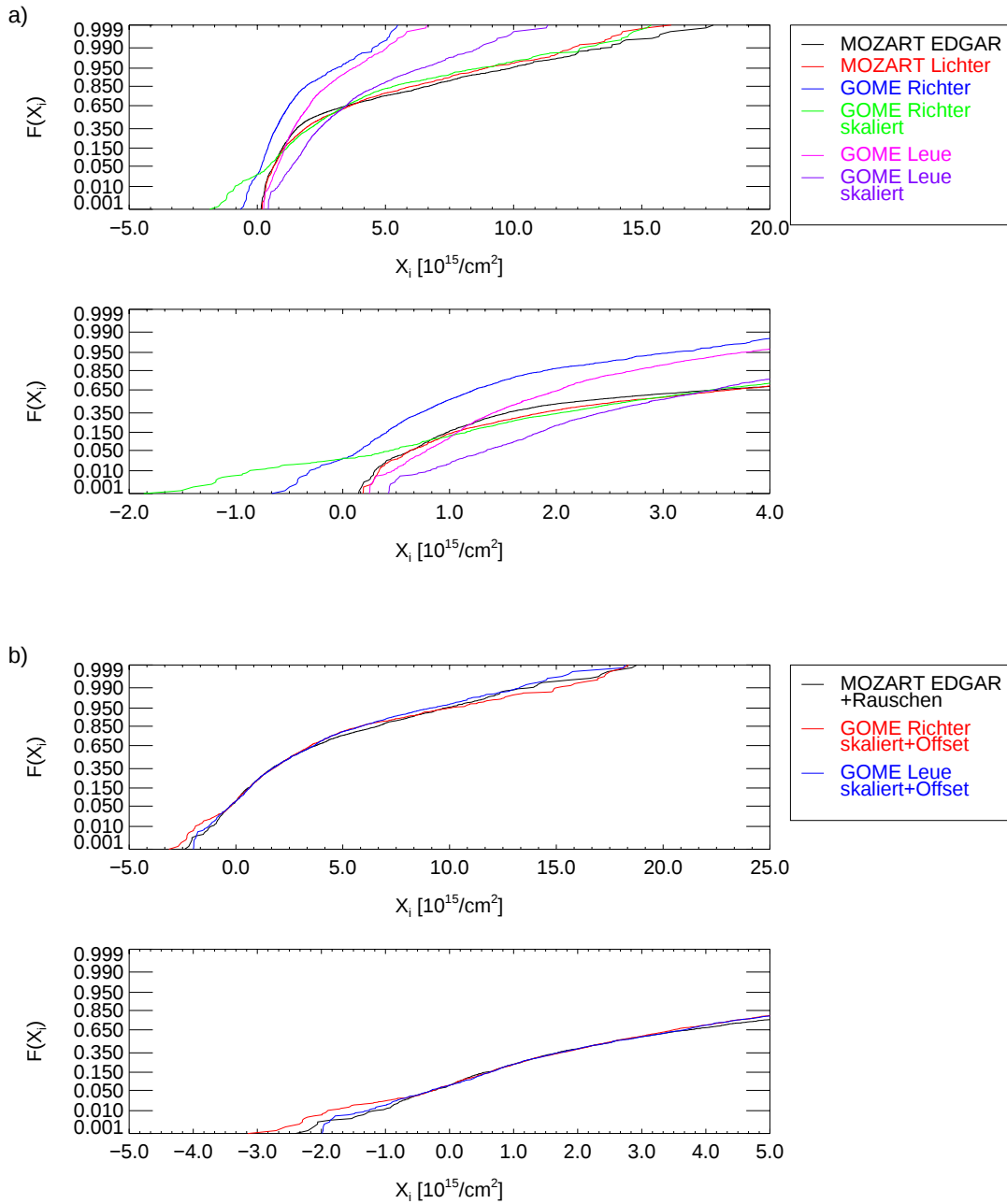


Abbildung 6.5: a) Kumulierte Häufigkeitsverteilungen von modellierten und gemessenen Säulendichten; Satellitenauswertungen: sowohl in Originaleinheit wie auf das Gesamtinventar der Modellrechnung skaliert, darunter: Ausschnitt; b) Kumulierte Häufigkeitsverteilungen der Satellitenauswertungen nach Eliminierung des Offsets relativ zur EDGAR-Modellrechnung und anschließender Neuskalierung, zu den MOZART-Säulen wurde das Nullpunktrauschen der Satelliten addiert, darunter: Ausschnitt

relativ zu MOZART EDGAR mit Tropopausen-Kriterium:					
	skaliert [cm^{-2}]		original [cm^{-2}]		
	Offset	Rauschen	Offset	Rauschen	Faktor
GOME Richter	8.1×10^{14}	11.0×10^{14}	2.3×10^{14}	3.1×10^{14}	3.5
GOME Leue	27.8×10^{14}	11.0×10^{14}	8.7×10^{14}	3.5×10^{14}	3.2
relativ zu MOZART EDGAR mit Referenzsektor-Methode:					
	skaliert [cm^{-2}]		original [cm^{-2}]		
	Offset	Rauschen	Offset	Rauschen	Faktor
GOME Richter	13.4×10^{14}	12.0×10^{14}	3.8×10^{14}	3.4×10^{14}	3.5
GOME Leue	33.4×10^{14}	12.0×10^{14}	10.5×10^{14}	3.8×10^{14}	3.2

Tabelle 6.3: Offset und Nullpunktrauschen (Standardabweichung) relativ zur EDGAR-Modellrechnung (oben: troposphärische Säulen nach Tropopausen-Kriterium, unten: nach Referenzsektor-Methode) für die Satellitensäulen, sowohl nach Elimination des Offsets und Neuskalierung wie auch zurückskaliert auf die Origineleinheit der GOME-Säulen

Wie bei der Bestimmung der Offsets der entfalteten Felder relativ zu den anthropogenen Quellen sind die Werte für Offset und die Standardabweichung des Nullpunktrauschens jeweils für die mit einem nach der Anpassung bestimmten Faktor skalierten Felder sowie zurückskaliert in die Einheiten der Originalfelder dargestellt. Die Standardabweichungen des Nullpunktrauschens sind, wie oben erwähnt, für die beiden Satellitenauswertungen im Rahmen der manuellen Anpassungsgenauigkeit jeweils gleich; es macht auch fast keinen Unterschied, ob sie relativ zu den Modellsäulen nach Tropopausen- oder nach Referenzsektor-Methode bestimmt wurden. Der Offset ist bei GOME Leue deutlich größer als bei GOME Richter. Für beide Satellitenauswertungen ist der Offset größer, wenn er relativ zu den Referenzsektor-Säulen bestimmt wird als wenn er relativ zu den bis zur thermischen Tropopause summierten Säulen bestimmt wird. Dies stimmt mit dem in Kapitel 3 gefundenen kleineren Gesamtinventar überein: Im Modell haben die Referenzsektor-Säulen gegenüber den Säulen nach dem Tropopausen-Kriterium einen negativen Offset.

Die auf die Einheit der Originalsäulen zurückskalierten Werte für Offset und Rauschen relativ zu den Modellsäulen nach dem Tropopausen-Kriterium können direkt mit den Zahlen für die entfalteten Säulen nach Herausrechnen von Modell-offset und -Rauschen in Tabelle 6.2 verglichen werden. Die Offsets sind etwa gleich groß, eine bessere Übereinstimmung ist bei der manuellen Anpassung und unter Benutzung eines simulierten Rauschens mit einer Stichprobengröße von $N = 1463$ nicht zu erwarten. Die Werte für die Standardabweichung des Nullpunktrauschens sind bei den entfalteten Säulen jedoch um etwa ein Drittel größer als bei den nicht entfalteten Säulen. Dies zeigt, wie stark der Vorgang des Entfaltens ein vorhandenes Hintergrundrauschen verstärkt.

Abschließend sei noch angemerkt, dass die relativ zu den Modellsäulen bestimmten Offsets keineswegs Artefakte der Satellitenauswertung sein müssen.

Varianz	Modell: Tropopausen- kriterium [cm^{-4}]	Modell: Referenzsektor [cm^{-4}]
MOZART EDGAR original	9.3×10^{30}	9.1×10^{30}
MOZART Lichter original	7.3×10^{30}	7.2×10^{30}
MOZART EDGAR + Rauschen	10.5×10^{30}	10.6×10^{30}
MOZART Lichter + Rauschen	8.6×10^{30}	8.6×10^{30}
GOME Richter original	0.9×10^{30}	0.9×10^{30}
GOME Richter skaliert	6.7×10^{30}	6.7×10^{30}
GOME Richter – Offset, skaliert	10.5×10^{30}	10.5×10^{30}
GOME Leue original	0.9×10^{30}	0.9×10^{30}
GOME Leue skaliert	2.5×10^{30}	2.5×10^{30}
GOME Leue – Offset, skaliert	8.7×10^{30}	8.8×10^{30}

Tabelle 6.4: Varianzen der Säulendichtefelder: Modellrechnungen: original und nach Addition des Nullpunktrauschens der Satellitensäulen, GOME-Auswertungen: original, nach Skalierung auf das Gesamtinventar der Modellrechnung und nach Elimination des Offsets relativ zu der EDGAR-Rechnung und anschließender Neuskalierung (Modellsäulen und Offsets der Satellitensäulen relativ zu Modellsäulen: jeweils nach Tropopausenkriterium und Referenzsektor-Methode)

Die Modellsäulen wurden als willkürlicher Bezugspunkt gewählt, da die wahren Säulen nicht bekannt sind. Dadurch wird das Problem eines unterschiedlich großen Offsets in den verschiedenen Datensätzen aus Abschnitt 5.4.3 behoben, ein absoluter Offset für die Säulen ist jedoch nicht bestimmbar (für die EDGAR-Quellen wurde er oben als Null angenommen). Die tatsächliche Hintergrundkonzentration oder die tatsächlichen biogenen Emissionen können größer sein als die modellierten, was negative Offsets für die MOZART-Säulen bedeuten würde. Dies stimmt überein mit einem Ergebnis von Martin et al. [26], die im Vergleich mit GOME-Messungen fanden, dass in den gängigen Emissionskatastern die Bodenemissionen zu niedrig geschätzt sind.

Vergleich der Varianzen der Säulendichte-Felder

In Tabelle 6.4 sind die Varianzen der Säulendichte-Felder in den betrachteten durch anthropogene Emissionen dominierten Gebieten dargestellt. Bei den Satellitenauswertungen wurden die Varianzen zunächst für die Originalfelder bestimmt, dann nach Skalierung auf das Gesamtinventar des MOZART-EDGAR-Laufes und schließlich nach Subtraktion des Offsets relativ zum MOZART-EDGAR-Lauf und anschließender Neuskalierung.

Während selbst nach der Skalierung auf das MOZART-Inventar insbesondere die Varianz der Leue-Auswertung deutlich kleiner ist als die beider Modellrechnungen, stimmen die Varianzen der Satellitenauswertungen nach Eliminierung der Offsets gut mit denen der Modellrechnungen nach Addition des relativ zu den Modellrechnungen bestimmten Nullpunktrauschens überein; die Varianzen des Lichterlaufs und der Leue-Auswertung sind etwas kleiner als die des EDGAR-

Emissionsfeld	Varianz [$cm^{-4}s^{-2}$]	Maximum [$cm^{-2}s^{-1}$]
EDGAR anthropogen	8.72×10^{21}	11.78×10^{11}
Lichter skaliert	5.24×10^{21}	6.58×10^{11}
MOZART EDGAR, entfaltet, $1/\tau_M^*$, – Offset, skaliert	6.06×10^{21}	7.22×10^{11}
MOZART Lichter, entfaltet, $1/\tau_M^*$, – Offset, skaliert	4.62×10^{21}	4.97×10^{11}
NO _x -Quelle MOZART EDGAR	9.61×10^{21}	11.77×10^{11}
NO _x -Quelle MOZART Lichter	5.93×10^{21}	6.39×10^{11}
NO _x -Quelle GOME Richter	8.95×10^{21}	6.65×10^{11}
NO _x -Quelle GOME Leue	7.36×10^{21}	8.03×10^{11}

Tabelle 6.5: Varianzen und Maxima der Modellquellen sowie der aus den zugehörigen Modellsäulen zurückgewonnenen Quellen; dritte und vierte Zeile: Säulen entfaltet, durch die effektive globale Modell-Lebensdauer dividiert, offsetkorrigiert und skaliert; fünfte und sechste Zeile: zusätzlich potenziert mit der Steigung aus der doppeltlogarithmischen Auftragung von Quellen gegen Säulen; siebte und achte Zeile: analog transformierte Satellitensäulen

Laufs und der GOME Richter Auswertung. Es besteht bei den Varianzen fast kein Unterschied, ob die MOZART-Säulen bis zur thermischen Tropopause oder nach dem Referenzsektor-Kriterium verwendet werden.

6.3 Varianzen der Quellfelder

Da die Varianzen der vier Säulendichtefelder nach Eliminierung der Offsets und Umskalierung ähnlich sind, ist zu erwarten, dass die Varianzen der zugehörigen Quellfelder ebenfalls ähnlich sind. Beim Vergleich von Varianzen und Maximalwerten der Quellfelder und der offsetkorrigierten, entfalteten und skalierten zugehörigen Modellfelder zeigt sich, dass alle diese Korrekturen nicht ausreichen, um die ursprüngliche Varianz und die ursprünglichen Maximalwerte der Quellfelder zu erreichen. Die Werte sind in Tabelle 6.5 aufgelistet.

Die Tatsache, dass nach Offsetkorrektur der entfalteten Säulen und Skalierung auf das Gesamtinventar der Quellen deren Maximalwerte nicht erreicht werden, legt nahe, dass der Zusammenhang zwischen Quellen und Säulen möglicherweise nicht ganz linear ist. Bei einem linearen Zusammenhang zwischen zwei Größen müsste die Steigung einer angefitzten Geraden in doppeltlogarithmischer Darstellung gleich Eins sein:

$$y = x^a \leftrightarrow \ln(y) = a \cdot \ln(x), \quad a = 1 \leftrightarrow \text{Linearität.}$$

In Abbildung 6.6 sind links in Blau die entfalteten, offsetkorrigierten und skalierten Modellsäulen jeweils gegen die zugehörigen Quellen doppeltlogarithmisch als Scatterplot aufgetragen. In Schwarz ist die Gerade dargestellt, die sich ergibt, wenn alle positiven Daten logarithmiert werden und dann durch linearen Fit die

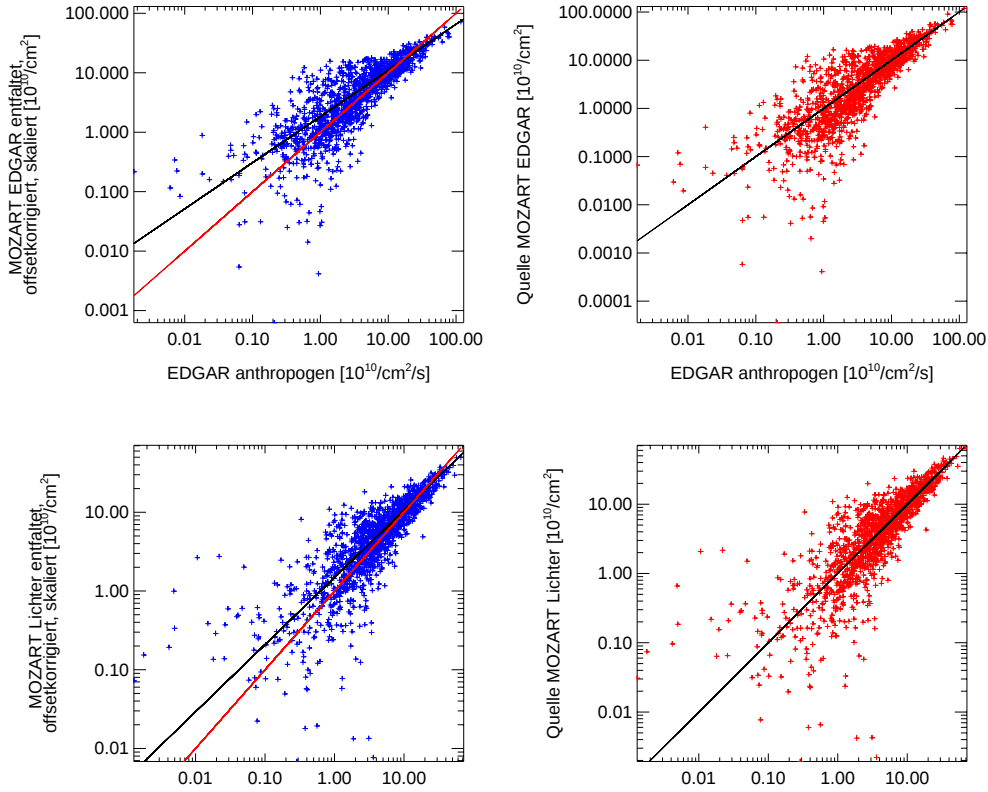


Abbildung 6.6: blau: Modell-Quellen gegen zugehörige entfaltete Säulen doppelt logarithmisch, rot: Säulen mit der durch linearen Fit der logarithmierten Werte gewonnenen Steigung potenziert, schwarz: jeweils 1:1 Gerade, rote Gerade: Steigung aus der rechten Abbildung

Steigung bestimmt wird. Für diesen Fit wurde eine IDL-Routine verwendet, die den in den *Numerical Recipes* [32] beschriebenen Algorithmus zum Fitten bei Fehlern in beiden Koordinaten verwendet (fitexy). Hinsichtlich des Fehlers wurde angenommen, dass er in beiden Koordinaten gleich groß ist, für die linearen Werte konstant und gleich dem Nullpunktrauschen der entfalteten Säulen, d.h.

$$\Delta_{lin} = 10^{10} cm^{-2} s^{-1} .$$

Für die logarithmierten Werte muss er noch durch den jeweiligen Wert geteilt werden:

$$y = \ln(x) \rightarrow \Delta y = \Delta x / x .$$

Damit ergeben sich die Werte für die Steigungen von $a = 0.78$ (EDGAR) und $a = 0.85$ (Lichter). In Rot ist zum Vergleich die 1 : 1 Gerade dargestellt.

Die roten Punkte rechts in Abbildung 6.6 ergeben sich, wenn die positiven Säulen mit den Kehrwerten der Steigungen (EDGAR: $1/a = 1.30$, Lichter: $1/a = 1.17$) potenziert und auf das richtige Inventar zurückskaliert werden. Jetzt entspricht die Fitgerade der 1 : 1 Geraden. Um die entfalteten Satellitensäulen

R	EDGAR anthropogen	Lichter skaliert
zugehöriger MOZART–Lauf	0.83	0.84
zugehöriger MOZART–Lauf, entfaltet	0.90	0.91
zugehöriger MOZART–Lauf, entfaltet, potenziert	0.92	0.92

Tabelle 6.6: Korrelationskoeffizienten zwischen anthropogener Quelle und zugehöriger Modellrechnung, (Säulen unbehandelt, entfaltet, mit der Steigung aus dem doppeltlogarithmischen Scatterplot potenziert)

den unbekannten Quellen ähnlicher zu machen, sollen auch sie mit einem Exponenten potenziert werden. Leider sind die Exponenten für die Modell–Läufe nicht gleich, die Satellitensäulen wurden im Folgenden daher mit dem Mittelwert beider potenziert ($exp = 1.23$)

Da negative Zahlen nicht potenziert werden können (bei nicht ganzzahligen Exponenten ergäbe das ein komplexes Ergebnis), wird diese Operation auf die positiven Werte beschränkt. Dadurch werden die positiven Werte des Nullpunktrauschens mitpotenziert, die negativen aber nicht, und das vorher mittelwertsneutrale Rauschen kann das Inventar ändern. Um den Einfluss dieses Fehlers abzuschätzen, wurden die anthropogenen Quellen (EDGAR und lichterbasiert) mit dem Kehrwert des Exponenten potenziert und dann wieder auf ihre ursprüngliche Quellstärke skaliert. Dann wurde im ersten Fall das Nullpunktrauschen der Satelliten addiert und die positiven Werte wurden mit dem Exponenten potenziert, im zweiten Fall wurden alle Werte ohne Rauschen potenziert. Das Gesamtinventar der beiden Fälle unterscheidet sich um 8% (EDGAR) bzw. 9% (Lichter). Dies ist klein gegenüber den anderen verwendeten Abschätzungen.

Da durch das Potenzieren kleine Werte weniger als große Werte vergrößert werden, führt die anschließende Skalierung dazu, dass die kleinen Werte insgesamt verkleinert werden. In Abbildung 6.4 c) sind die Häufigkeitsverteilungen der aus den Säulen gewonnenen Quellen nach der Potenzierung zusammen mit denen der Quellen dargestellt: Das Nullpunktrauschen wurde durch die Potenzierung unterdrückt, die Kurven der potenzierten Säulen steigen sogar etwas stärker an als die der Quellen. Sie liegen aber, im Vergleich zu den Verteilungen vor dem Potenzieren, in einem großen Bereich fast übereinander.

In Abbildung 6.5 sind neben den Varianzen und Maxima der entfalteten Säulen auch die der potenzierten Säulen gezeigt. Die Maxima stimmen nach dem Potenzieren deutlich besser mit denen der Quellen überein, die Varianzen sind jetzt, insbesondere bei dem Lichterlauf, etwas zu hoch. Die Korrelationskoeffizienten mit den Quellen erhöhen sich durch das Potenzieren noch einmal leicht, wie in Tabelle 6.6 zu sehen ist.

6.4 Zusammenfassung

Die Schritte zur Abschätzung eines Emissionsfeldes aus einem Säulendichtenfeld lauten zusammengefasst:

- Entfaltung,
- Division durch τ_M^* ,
- iterative manuelle Offsetkorrektur und Skalierung,
- Potenzierung mit dem Mittelwert der Steigungen aus dem doppeltlogarithmischen Zusammenhang von Modellquellen und -Säulen des EDGAR- und des Lichterlaufs und Rückskalierung.

Das Ergebnis dieser Schritte ist in Abbildung 6.7 dargestellt, zum Vergleich wurden die ursprünglichen Satellitenfelder nochmals über die daraus konstruierten Quellfelder geplottet. Die Schärfung der Muster ist gut zu erkennen.

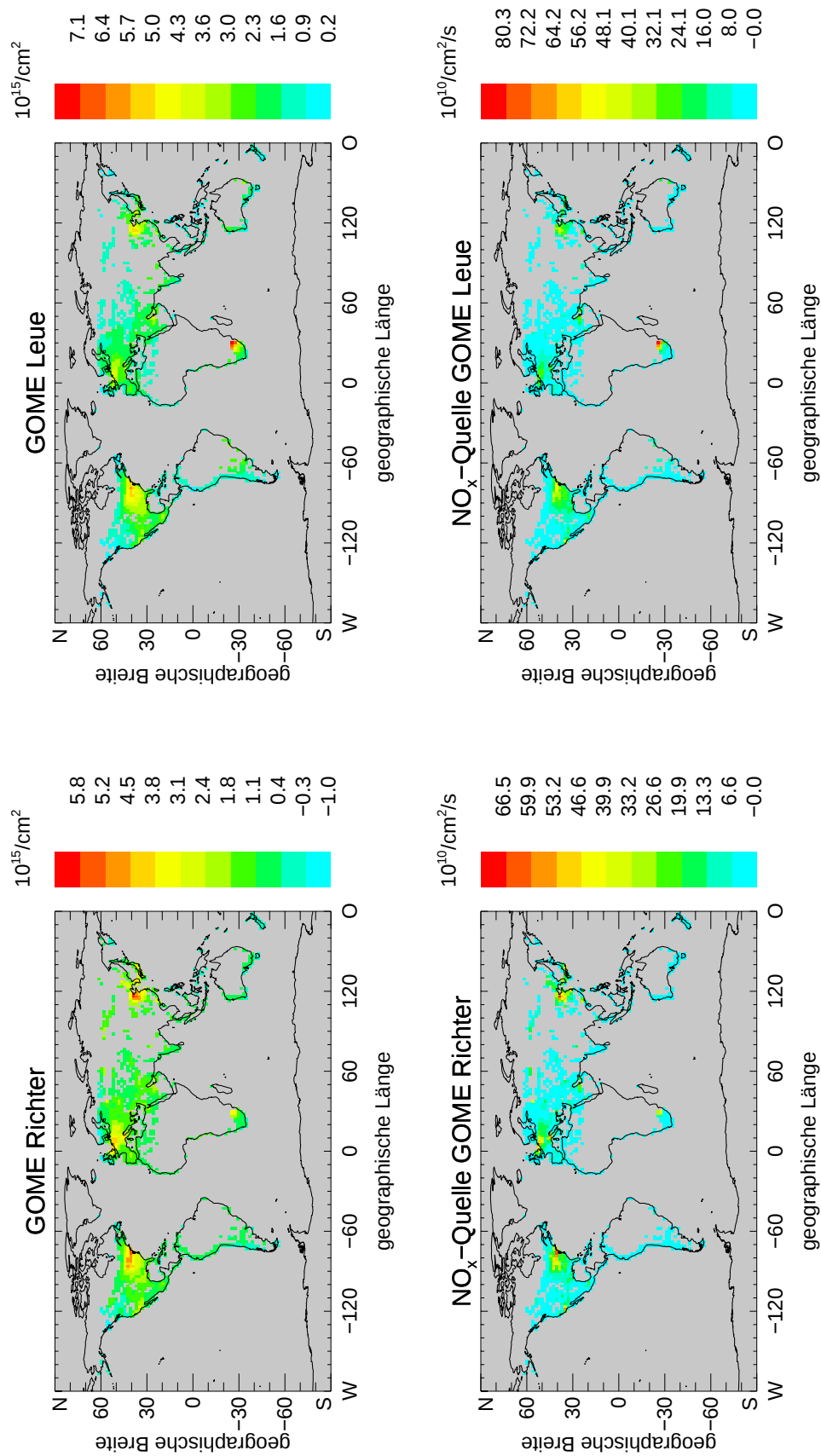


Abbildung 6.7: NO₂-Satellitensäulen und daraus konstruierte anthropogene NO_x-Quellen im betrachteten durch anthropogene Quellen dominierten Gebiet

Kapitel 7

Korrelations–Fehleranalyse der anthropogenen NO_x –Emissionen

Nachdem im vorherigen Kapitel aus dem Jahresmittel der troposphärischen NO_2 –Säulen des GOME–Instrumentes über den durch anthropogene Emissionen dominierten Gitterpunkten anthropogene NO_x –Quellen konstruiert wurden, soll in diesem Kapitel die Korrelations–Fehleranalyse auf die Emissionsfelder angewandt werden. Die Bestimmung der Fehlervarianzen der Quellen ist – anders als die der Säulen – problemlos, da die Musterfehler der anthropogenen NO_x –Emissionen aus dem EDGAR–Kataster und die lichterbasierte Quelle als unabhängig angenommen werden können. Am Ende des Kapitels soll ein optimiertes Emissionsfeld mit globaler Abdeckung konstruiert werden.

7.1 Musterfehler der Emissionen

Für die anthropogenen NO_x –Quellen liegen in den Gebieten, die durch anthropogene Emissionen geprägt sind, vier Schätzungen vor: das EDGAR–Kataster, die Quelle auf Basis der Satellitenaufnahmen der Lichter der Welt bei Nacht sowie die beiden im vorherigen Kapitel aus den GOME–Säulendichten gewonnenen Datensätze; im Folgenden werden sie kurz mit

X_{ED}	NO_x – Quelle	EDGAR 3,
X_{Li}	NO_x – Quelle	Lichter,
X_{Ri}	NO_x – Quelle	GOME Richter,
X_{Leu}	NO_x – Quelle	GOME Leue

bezeichnet.

Die vier Felder sind in Abbildung 7.1 dargestellt. Da wegen der hohen Spitzenwerte bei linearer Farbskala bereits in den Gebieten mit mittleren Emissionen keine Konturen mehr zu erkennen wären, wurde eine logarithmische Farbskala gewählt; die nicht betrachteten Gitterpunkte sind jeweils grau maskiert. Die Korrelationskoeffizienten der Felder untereinander sind in Tabelle 7.1 links dargestellt.

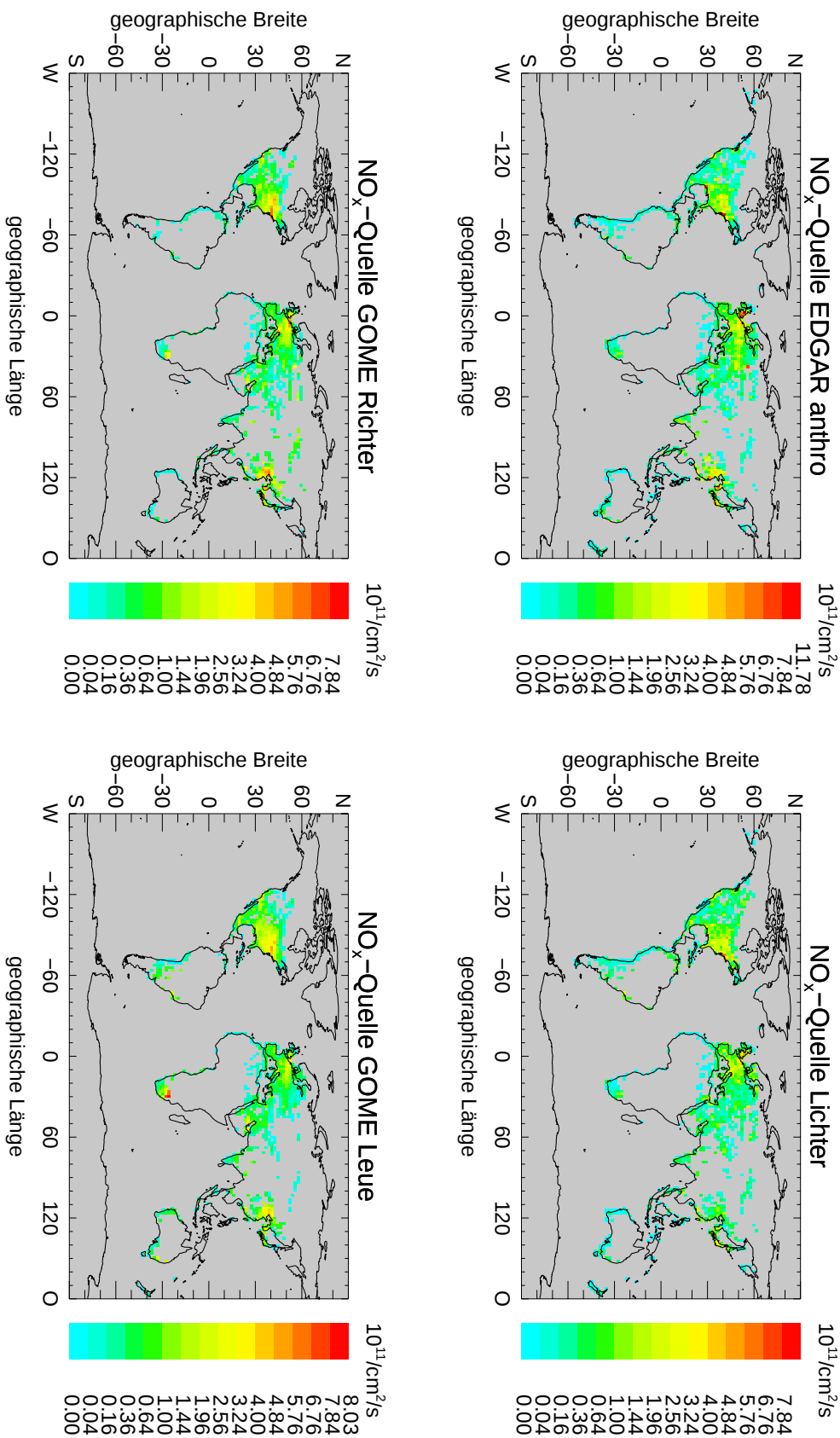


Abbildung 7.1: In diesem Kapitel untersuchte Abschätzungen für anthropogene NO_x -Quellen: EDGAR 3 anthropogen, die lichterbasierte Quelle sowie die beiden Quellschätzungen auf Basis der GOME-Auswertungen von Richter & Burrows und Leue et al. (siehe Kapitel 6)

	alle Gitterpunkte			nach Eliminierung der Ausreißer		
R_{ij}	X_{Li}	X_{Ri}	X_{Leu}	X_{Li}	X_{Ri}	X_{Leu}
X_{ED}	0.73 ± 0.03	0.69 ± 0.04	0.56 ± 0.05	0.73 ± 0.03	0.72 ± 0.03	0.63 ± 0.05
X_{Li}		0.65 ± 0.04	0.58 ± 0.04		0.70 ± 0.03	0.65 ± 0.03
X_{Ri}			0.82 ± 0.02			0.83 ± 0.02

Tabelle 7.1: Räumliche Korrelationskoeffizienten R_{ij} der vier Emissionsfelder, links: unter Einbeziehung aller betrachteten Gitterpunkte, rechts: nach Eliminierung der Ausreißer

Im Folgenden sollen die Musterfehler der Emissionsfelder bestimmt werden. Wie bei der Betrachtung der Säulendichten in Abschnitt 5.2.1 wird Gleichung 4.6 (Verknüpfung der Korrelationskoeffizienten mit den relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen) zu einem System aus sechs Gleichungen mit zehn Unbekannten, das in Abbildung 7.2 schematisch dargestellt ist. Analog zu den Säulen wird auch hier die Annahme gemacht, dass die gemeinsamen Fehler der EDGAR-Quelle und der Lichter-Quelle jeweils mit den GOME-basierten Quellen (e_{13} , e_{14} , e_{23} , e_{24}) möglichst klein sein sollen. Die minimalen mit den Korrelationskoeffizienten in Tabelle 7.1 links kompatiblen Werte für diese relativen Fehlerkovarianzen ergeben sich, immer noch analog zu den Säulen und wie in Abschnitt 5.2.1 beschrieben, aus der Beziehung

$$e_{23} = e_{14} = 0 \quad \text{und} \quad e_{13} = e_{24} = 1 - \sqrt{\frac{R_{23}R_{14}}{R_{13}R_{24}}} \approx 0.05 .$$

Anders als bei den Säulen kann hier jedoch angenommen werden, dass auch die EDGAR- und die Lichterquelle keine gemeinsamen Fehler haben: $e_{12} = 0$. (Bei den Säulendichtefeldern MOZART EDGAR und MOZART Lichter war dies nicht möglich, da den zwar ursprünglich unabhängigen Quellfeldern durch das MOZART-Modell gemeinsame Fehler aufgeprägt wurden.) Damit ist das Gleichungssystem 4.6 im Falle der Quellen lösbar; die sich für die relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen ergebenden Werte sind in Tabelle 7.2 links aufgelistet.

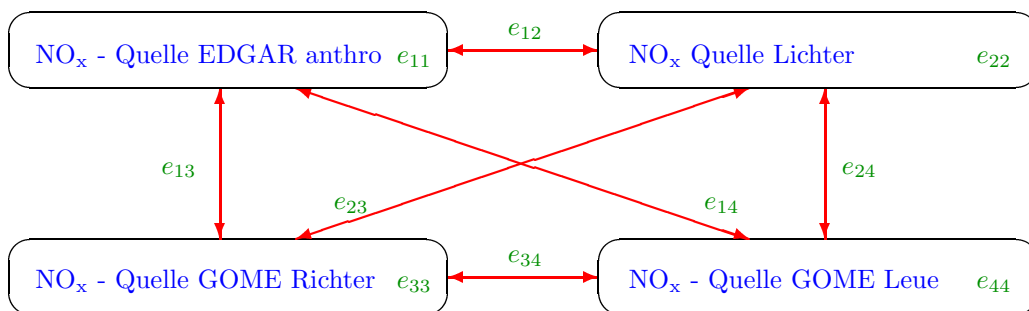


Abbildung 7.2: Analog zu den Säulendichten (siehe Abbildung 5.2) wird auch bei vier Quellfeldern (blau) Gleichung 4.6 zu einem System aus sechs Gleichungen (rot) mit zehn Unbekannten (grün).

Feld	e_{ii}	w_i	$\tilde{w}_i$	$e_{ii, \text{ robust}}$	$w_{i, \text{ robust}}$	$\tilde{w}_{i, \text{ robust}}$
X_{ED}	0.26 ± 0.05	0.36 ± 0.08	0.40 ± 0.08	0.27 ± 0.05	0.34 ± 0.05	0.35 ± 0.05
X_{Li}	0.28 ± 0.06	0.45 ± 0.08	0.39 ± 0.08	0.26 ± 0.05	0.40 ± 0.07	0.37 ± 0.05
X_{Ri}	0.42 ± 0.05	0.17 ± 0.04	0.19 ± 0.05	0.33 ± 0.05	0.19 ± 0.04	0.22 ± 0.04
X_{Leu}	0.58 ± 0.06	0.02 ± 0.03	0.02 ± 0.03	0.45 ± 0.05	0.06 ± 0.03	0.06 ± 0.03

Felder	e_{ij}	$e_{ij, \text{ robust}}$
X_{ED}, X_{Li}	0.00	0.00
X_{ED}, X_{Ri}	0.05 ± 0.02	0.03 ± 0.02
X_{ED}, X_{Leu}	0.00	0.00
X_{Li}, X_{Ri}	0.00	0.00
X_{Li}, X_{Leu}	0.05 ± 0.02	0.03 ± 0.02
X_{Ri}, X_{Leu}	0.39 ± 0.05	0.27 ± 0.04

Tabelle 7.2: Oben, links: Relative Fehlervarianzen e_{ii} und Wichtungsfaktoren w_i (bzw. $\tilde{w}_i$ für standardisierte Felder) zur optimalen Kombination der vier betrachteten Quellfelder X_i über dem in Abschnitt 5.1 definierten durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet; **oben, rechts:** Die gleichen Größen nach Eliminierung der Ausreißer; **unten:** Relative Fehlerkovarianzen jeweils zweier Felder; Fehlerangaben: *Bootstrap*-Verfahren, eine Standardabweichung

Ebenfalls dargestellt sind die Wichtungsfaktoren, die sich aus diesen Werten zur Kombination zu einem Feld mit minimalem Musterfehler ergeben (nach Abschnitt 4.2.2). Da, wie Tabelle 6.5 zeigt, bei gleichem Inventar die Varianz der Lichterquelle etwas kleiner ist als die der anderen Felder, werden analog zu Abschnitt 5.2.2 zum Vergleich auch die Wichtungsfaktoren gezeigt, die sich bei standardisierten Feldern ergeben.

Durch die Kombination kann der Musterfehler von $e_{11} = 0.26 \pm 0.05$ (Fehler der anthropogenen EDGAR-Emissionen) auf $e_{comb} = 0.14 \pm 0.02$ reduziert werden, die angegebenen Fehlerbereiche wurden, wie in den Kapiteln zuvor, mit dem *Bootstrap*-Verfahren (siehe Anhang A) bestimmt und entsprechen einer Standardabweichung.

7.2 Ausreißer

Identifizierung

Auch bei den Quellfeldern soll der Einfluss von Ausreißern untersucht werden, und es soll eine robuste Kombination der Quellfelder ohne Ausreißer gebildet werden. Dazu wird analog zu den Säulen in Abschnitt 5.4 und wie im Methodenkapitel in Abschnitt 4.2.3 beschrieben für jedes Feld X_i an jedem Punkt l die auf den Gesamtfehler normierte Differenz zwischen dem absoluten Fehler E_{ii} des gesamten Feldes X_i und dem Fehler dieses Feldes unter Auslassung des Punktes l bestimmt:

$$\Delta e_{ii}^l = \frac{E_{ii}^{(l)} - E_{ii}}{E_{ii}} = \frac{e_{ii}^{(l)} \text{var}(X_i^{(l)}) - e_{ii} \text{var}(X_i)}{e_{ii} \text{var}(X_i)},$$

die Felder Δe_{ii} sind in Abbildung 7.3 dargestellt. Wie bei den Säulen ist der Wert eines Punktes negativ, wenn es sich um einen fehlerhaften Punkt handelt, sein Herausnehmen also den Musterfehler verkleinert. Die bei dieser Wahl der Vorzeichen positiven Punkte wurden in der Abbildung der Übersicht wegen weiß eingefärbt.

Zur Identifizierung der Ausreißer muss ein Schwellenwert bestimmt werden, jenseits von dem ein Wert Δe_{ii}^l als Ausreißer deklariert wird. Im Fall der Säulendichten wurde dieser Schwellenwert aus dem Beispiel in Abschnitt 4.4 übernommen. Der Vergleich der gemäß der Definition des Schwellenwertes in Relation 4.14 standardisierten Häufigkeitsverteilungen der Δe_{ii} in Abbildung 7.4 zeigt, dass die Verteilungen der Fehleränderungen der Quellfelder nur schlecht mit der Beispielverteilung übereinstimmen. Das Beispiel wurde daher abgewandelt: Statt normalverteilter Fehlerfelder ($N(0; 1)$) wurden lognormalverteilte und dann standardisierte Fehlerfelder verwendet, alle übrigen Konstanten blieben gleich. Die Häufigkeitsverteilung der standardisierten Fehleränderungen des so konstruierten X_1 ist in Abbildung 7.4 gestrichelt dargestellt. Sie stimmt gut mit den Verteilungen der Fehleränderungen der Quellfelder überein.

Analog zu den Säulen sollen die Ausreißer der Quellfelder zum Signifikanzniveau $\alpha = 0.005$ bestimmt werden. Wie in dem Beispiel mit normalverteilten Fehlerfeldern kann auch in dem Beispiel mit lognormalverteilten Fehlerfeldern der Schwellenwert für die Testgröße $T_{\alpha, M}$, oberhalb dessen die standardisierten Δe_{ii}^l als Ausreißer erkannt werden, per Simulation bestimmt werden. Bei $T_{0.005, 1400} = 4.95$ werden in den vier Beispieldatensätzen ohne eingebaute Ausreißer folgende Ausreißerzahlen fälschlich identifiziert:

$$\begin{aligned} X_1 &: 7.1 \pm 3.2 \text{ Ausreißer} \\ X_2 &: 7.3 \pm 3.1 \text{ Ausreißer} \\ X_3 &: 7.0 \pm 3.3 \text{ Ausreißer} \\ X_4 &: 7.1 \pm 3.2 \text{ Ausreißer} . \end{aligned}$$

Der Wert $T_{\alpha, M} = 4.95$ soll auch für die Quellfelder als Schwellenwert für die Testgröße übernommen werden.

Analog zu Abbildung 5.7 sind in Abbildung 7.5 in den oberen sechs Teilabbildungen die zweidimensionalen Schnitte durch den vierdimensionalen Raum dargestellt, der durch die Δe_{ii} der Quellfelder aufgespannt wird. Die mittels der Relation 4.14 mit dem Schwellenwert $T_{\alpha, M} = 4.95$ bestimmten Ausreißer des auf der x-Achse dargestellten Feldes sind rot, die des auf der y-Achse dargestellten Feldes blau, und Ausreißer, die in beiden Feldern auftreten, sind grün eingefärbt.

Berücksichtigung der Ausreißer bei der Kombination

Die robusten Korrelationskoeffizienten und die robusten relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen wurden an allen den Gitterpunkten bestimmt, an denen

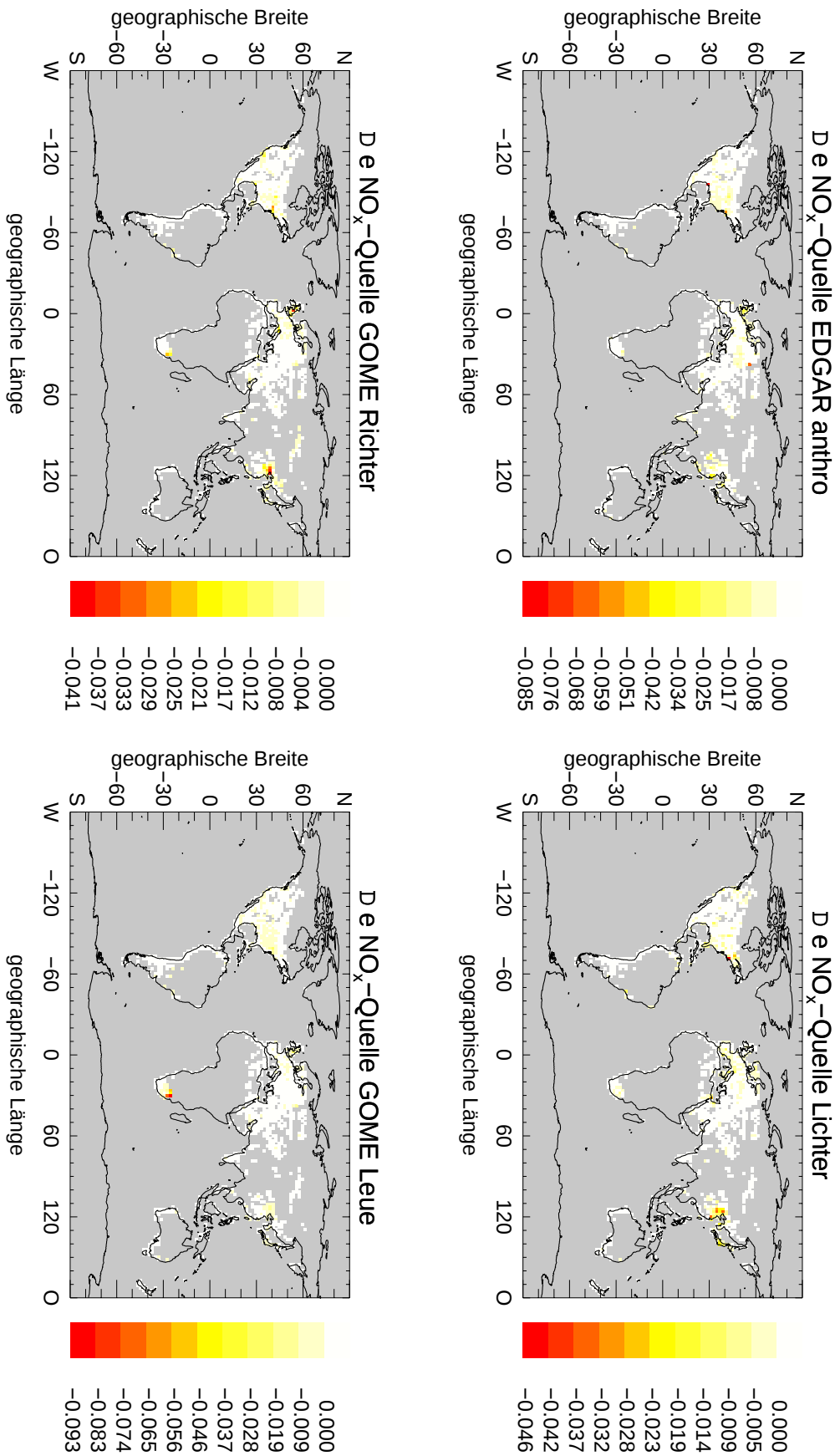


Abbildung 7.3: Einfluss der einzelnen Gitterpunkte auf die Musterfehler der betrachteten Emissionsfelder; Farbskala jeweils linear, aber der Übersicht wegen auf negative Werte (Herausnahme dieses Punktes verkleinert den Musterfehler) beschränkt, positive Werte sind weiß dargestellt

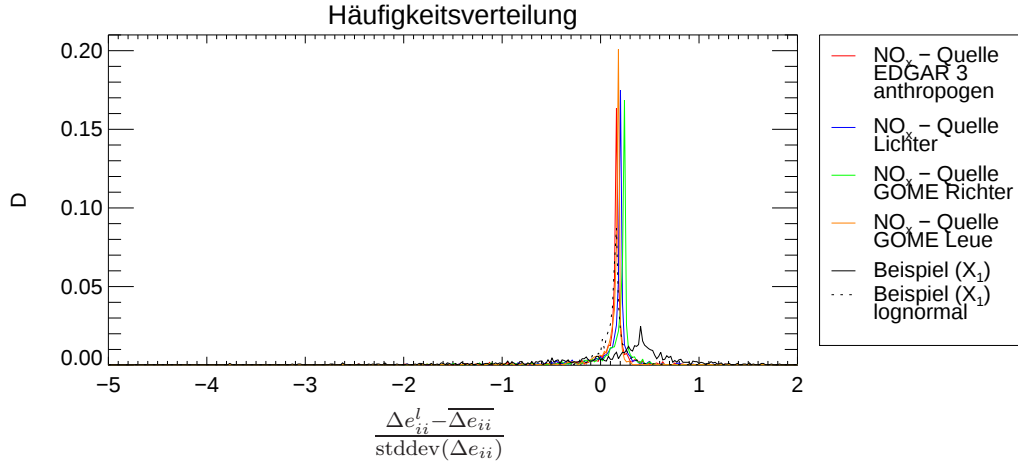


Abbildung 7.4: Häufigkeitsverteilung der standardisierten Änderungen der absoluten Fehlervarianzen der Emissionsfelder bei Herausnehmen jeweils eines Punktes; in schwarz zum Vergleich: Häufigkeitsverteilung des Beispieldatensatzes X_1 aus Abbildung 4.3 sowie die des gleichen Beispiefeldes mit einem lognormal- statt normalverteilten Fehlerfeld

keines der vier Quellfelder Ausreißer aufwies; die Werte der $R_{ij,robust}$ sind in Tabelle 7.1 rechts, die Werte der $e_{ii,robust}$ und $e_{ij,robust}$ in Tabelle 7.2 ebenfalls rechts aufgelistet. In dieser Tabelle befinden sich auch die Werte für die Wichtungsfaktoren w_i und $\tilde{w}_i$ (für standardisierte Felder) zur Kombination von vier Feldern zu einem Feld mit minimalem Musterfehler. Wie bei den Säulen wurde ein robustes Kombinationsfeld gebildet, bei dem an den Stellen, an denen ein oder zwei der Quellfelder Ausreißer aufwiesen, nur die übrigen drei oder zwei Felder optimal kombiniert wurden. Die Faktoren sind bei den zugehörigen Gebieten in Abschnitt 7.3 in Tabelle 7.3 aufgelistet. Die robuste Kombination in diesem Abschnitt beschränkt sich auf die Berücksichtigung der Ausreißer, in Abschnitt 7.3 werden zur Konstruktion eines Emissionsfeldes noch weitere Bedingungen erforderlich sein (eine reale Quelle darf etwa nirgends negativ sein). Das betrifft aber nur die Auswahl der an einem Gitterpunkt zu kombinierenden Felder, die Wichtungsfaktoren, mit denen diese dann kombiniert werden, sind die gleichen. Die in diesem Abschnitt durchgeführte robuste Kombination führt zu einem Feld mit dem Musterfehler $e_{comb,robust} = 0.12 \pm 0.02$, durch das Berücksichtigen der Ausreißer kann der Fehler des neuen Feldes also noch einmal tendenziell verringert werden.

In Abbildung 7.5 sind in den unteren vier Teilabbildungen jeweils die Emissionsfelder gegen das robust kombinierte Feld aufgetragen; die nur im jeweiligen Feld identifizierten Ausreißer sind rot, die zusätzlich noch in einem anderen Feld gefundenen Ausreißer grün eingefärbt. Bei der Richter-Quelle fällt auf, dass einige Punkte als Ausreißer markiert sind, die zwar relativ weit am Rande des Scatterplots, aber zum Teil weniger weit außerhalb liegen als andere Punkte, die keine Ausreißer sind. Der blau eingerahmte Punkt ist ein gemeinsamer Ausreißer mit dem EDGAR-Feld (auch dort blau eingerahmt) und wurde durch dieses

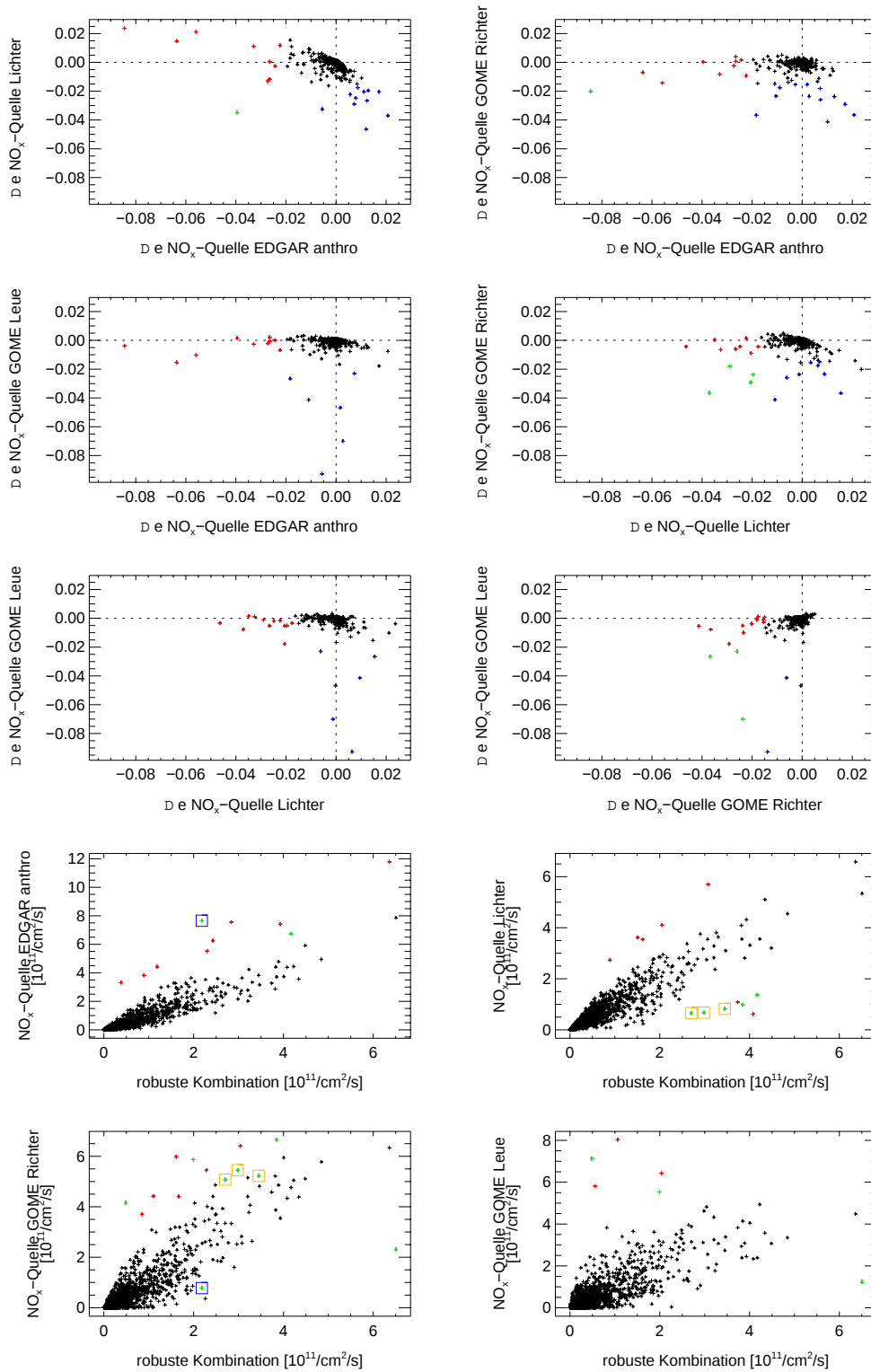


Abbildung 7.5: obere 6 Teilabbildungen: zweidimensionale Schnitte durch den von den Δe_{ii} aufgespannten Raum; rot: im Feld entlang der x-Achse identifizierte, blau: im Feld entlang der y-Achse identifizierte, grün: in beiden Feldern identifizierte Ausreißer; untere 4 Teilabbildungen: Scatterplots der betrachteten Felder jeweils gegen die robuste Kombination, rot: nur im jeweiligen Feld gefundene Ausreißer, grün: gemeinsame Ausreißer mit anderen Feldern

induziert. An diesem Gitterpunkt, es handelt sich um Houston, Texas (siehe Abschnitt Lokalisierung), reißt die EDGAR-Quelle besonders stark nach oben aus; ginge sie mit in die Kombination ein, läge der Punkt im kombinierten Feld bei einem deutlich höheren Wert weiter rechts und wäre dann in der Richter-Quelle zu niedrig. Der umgekehrte Fall liegt bei den gelb eingerahmten Punkten vor: Es sind gemeinsame Ausreißer mit der Lichter-Quelle, die dort deutlich zu niedrig ist (China). Bei einer Kombination aus allen Punkten lägen die gelb eingerahmten Punkte bei niedrigeren Werten auf der x-Achse weiter links und wären in der Richter-Quelle zu hoch, nach Herausnahme der Lichter-Ausreißer liegen die Richter-Werte dort nur noch am oberen Rand des Scatterplots. Da das Herausnehmen auch der induzierten Ausreißer aber offensichtlich keine Fehler verursacht, werden diese Fälle nicht gesondert betrachtet.

Lokalisierung

Die geographischen Positionen der Ausreißer der Quellfelder sind in Abbildung 7.6 dargestellt, sie stimmen weitgehend mit denen der Säulendichtefelder überein, siehe Abschnitt 5.4.4: Die größten Ausreißer in der GOME Leue Quelle befinden sich über dem Highveld bei Johannesburg in Südafrika, die Lichterquelle ist über dem Osten Chinas zu klein, die anderen Datenfelder dort liegen höher, ihre Muster stimmen aber schlecht überein. Die Lichter liegen über einigen Städten zu hoch, EDGAR liegt ebenfalls über einigen Metropolen zu hoch, am deutlichsten über New York und London. Im Unterschied zu den Säulendichten befinden sich bei den Quellfeldern direkt neben diesen Ausreißern der EDGAR-Quelle solche der GOME-Auswertungen: Dies ist ein Transport-Effekt, der sich durch das Entfalten nicht neutralisieren lässt: Die Spitzenwerte sind zu klein, dafür die Werte in den benachbarten Gitterpunkten zu hoch.

7.3 Kombiniertes Emissionsfeld (anthropogen)

Aus den vier betrachteten Quellfeldern X_{ED} , X_{Li} , X_{Ri} und X_{Leu} wurde ein globales, optimiertes, anthropogenes NO_x -Emissionsfeld konstruiert, das nicht auf die in Abschnitt 5.1 definierten durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiete beschränkt sein sollte. Dazu wurde angenommen, dass die in den anthropogen dominierten Gebieten bestimmten Musterfehler der EDGAR- und der Lichterquelle auch in den restlichen Gebieten gelten.

Ein reales Emissionsfeld soll nicht nur das Muster der Emissionen möglichst korrekt beinhalten, sondern darf auch nicht um einen Offset verschoben sein und muss die richtige Gesamtquellstärke ergeben. Diese Forderungen wurden im vorherigen Kapitel behandelt. Eine weitere Bedingung ist, dass eine Quelle nirgends negativ sein darf. Deshalb dürfen die GOME-Auswertungen an den Gitterpunkten, an denen sie aufgrund des Nullpunktrauschens negativ sind, nicht in die Kombination mit eingehen. Für die Kombination in diesem Abschnitt wurde der Schwellenwert noch etwas in Richtung positiver Werte verschoben: Bei den sehr kleinen Werten ist das wahre Signal durch Rauschen aufgrund von unvollständig

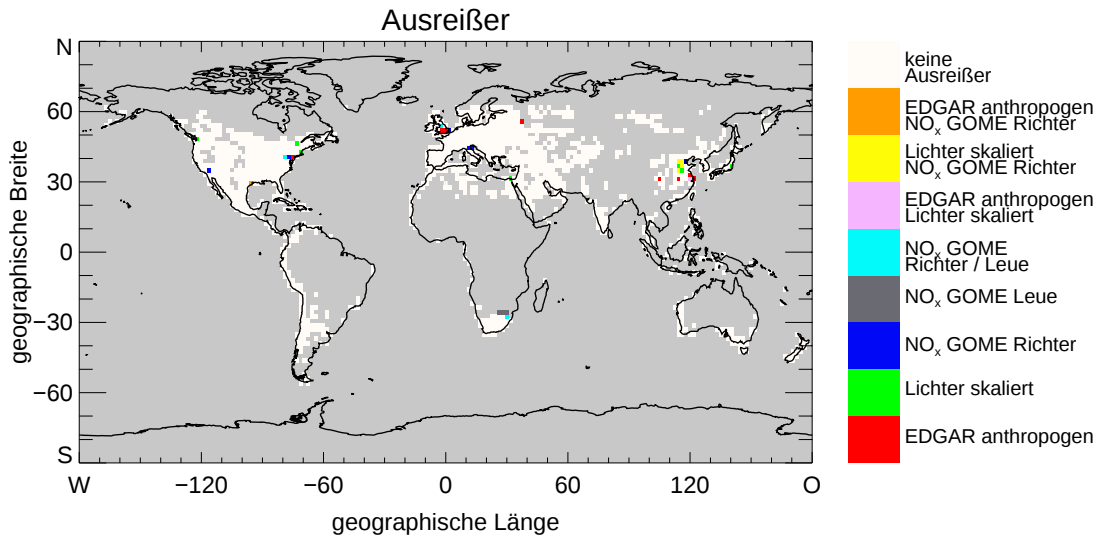


Abbildung 7.6: Geographische Lokalisierung der Ausreißer: grau: nicht betrachtete Gitterpunkte, weiß: betrachtete Gitterpunkte, an denen keines der vier untersuchten Felder einen Ausreißer aufweist, farbig kodiert: Gitterpunkte, die für ein oder mehr Felder als Ausreißer identifiziert wurden

korrigiertem Transport, aufgrund von Rauschverstärkung bei der Entfaltung und aufgrund der Stauchung beim Potenzieren und Zurückskalieren überlagert, wie die kumulierten Häufigkeitsverteilungen in Abbildung 6.4 zeigen. Der Schwellenwert, oberhalb dessen die GOME basierten Quellen in die Kombination eingehen, wurde deshalb nicht bei 0, sondern bei $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ gewählt. Zur Kombination wurde insgesamt wie folgt vorgegangen:

- An den anthropogen dominierten Landpunkten ($(\text{anthro Lichter} + \text{anthro EDGAR})/2 > \text{bio EDGAR}$ und Landanteil der Fläche des betrachteten Gitterpunktes $> 10\%$) wurden nach Möglichkeit alle vier Felder kombiniert, es gingen jedoch folgende Felder an folgenden Gitterpunkten nicht in die Kombination ein:
 - X_{ED} oder X_{Li} , wo sie Ausreißer aufweisen,
 - X_{Ri} oder X_{Leu} , wo sie Ausreißer aufweisen, kleiner als der Schwellenwert sind oder die Säulen nicht definiert sind.
- Über den Kontinenten wurden an den durch biogene Emissionen dominierten Gebieten ($(\text{anthro Lichter} + \text{anthro EDGAR})/2 \leq \text{bio EDGAR}$) die EDGAR- und die Lichterquelle kombiniert mit Wichtungsfaktoren, die aus den Musterfehlern über den anthropogen dominierten Gebieten folgen.
- Über den Ozeanen (Landanteil der Fläche des betrachteten Gitterpunktes $\leq 10\%$) wurde für die Schiffsemissionen die EDGAR-Quelle ohne Änderung übernommen.

Gebiet	in die Kombination eingehende anthropogene NO _x -Emissionsfelder
1	EDGAR 3 anthro, Lichter (OLS), GOME Richter, GOME Leue
2	EDGAR 3 anthro, Lichter (OLS), GOME Richter
3	EDGAR 3 anthro, Lichter (OLS), GOME Leue
4	Lichter (OLS), GOME Richter, GOME Leue
5	EDGAR 3 anthro, GOME Richter, GOME Leue
6	EDGAR 3 anthro, Lichter (OLS)
7	EDGAR 3 anthro, GOME Richter
8	EDGAR 3 anthro, GOME Leue
9	Lichter (OLS), GOME Richter (kommt nicht vor)
10	Lichter (OLS), GOME Leue
11	GOME Richter, GOME Leue

Gebiet	w_{ED}	w_{Li}	w_{Ri}	w_{Leu}	M	e_{comb}
1	0.34±0.05	0.40±0.07	0.19±0.04	0.06±0.03	710	0.12±0.02
2	0.34±0.05	0.42±0.07	0.24±0.04	—	161	0.12±0.02
3	0.39±0.06	0.42±0.07	—	0.19±0.04	204	0.13±0.02
4	—	0.60±0.09	0.33±0.05	0.07±0.03	8	0.17±0.03
5	0.56±0.09	—	0.30±0.05	0.14±0.04	6	0.18±0.03
6	0.47±0.08	0.53±0.08	—	—	3763	0.15±0.03
7	0.59±0.09	—	0.41±0.05	—	1	0.19±0.03
8	0.66±0.09	—	—	0.34±0.06	4	0.20±0.03
9	—	0.62±0.09	0.38±0.06	—	0	0.17±0.03
10	—	0.70±0.09	—	0.30±0.06	1	0.21±0.03
11	—	—	0.75±0.10	0.25±0.06	1	0.23±0.04

Tabelle 7.3: Wichtungsfaktoren w_i zur Kombination der im jeweiligen Gebiet gültigen Quellfelder X_i über Land; ebenfalls angegeben: Anzahl Gitterpunkte M und resultierender Musterfehler e_{comb} im jeweiligen Gebiet; bei Kombination der Gebiete ergibt sich insgesamt $e_{comb,tot} = 0.15 \pm 0.02$

Die über den Kontinenten jeweils kombinierten Felder und die zugehörigen Wichtungsfaktoren sind in Tabelle 7.3 aufgelistet, für die globale neue Quelle werden die einzelnen Gebiete kombiniert. Der Musterfehler dieses globalen Kombinationsfeldes ergibt sich als der mit der Anzahl der eingehenden Gitterpunkte gewichtete Mittelwert der Fehler der Kombinationen in den Gebieten. Während der Musterfehler der Kombination über den anthropogen dominierten Gebieten auf $e_{comb,robust} = 0.12 \pm 0.02$ reduziert werden konnte, liegt der Fehler des globalen Feldes mit $e_{comb,tot} = 0.15 \pm 0.02$ höher. Dies liegt daran, dass fast dreimal so viele Landpunkte von biogenen Emissionen dominiert werden wie von anthropogenen Emissionen; an diesen Landpunkten können nur die EDGAR- und die Lichterquelle kombiniert werden, was zu einem höheren Musterfehler führt.

In Abbildung 7.7 oben ist die globale neu kombinierte anthropogene NO_x-Quelle im Vergleich mit der EDGAR 3 Quelle dargestellt. Für die stark industria-

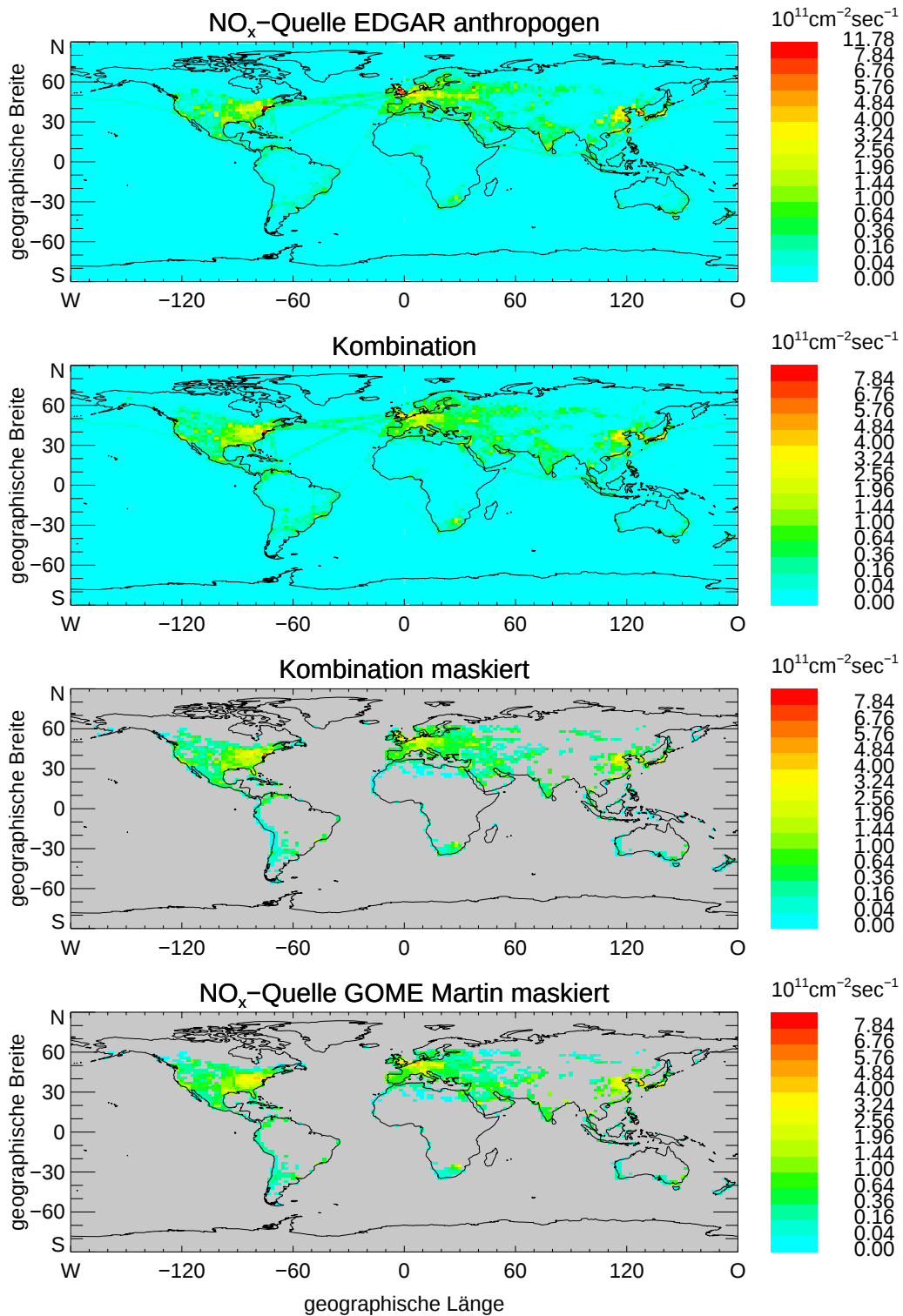


Abbildung 7.7: oben: Vergleich der Kombinationsquelle NO_x mit der ursprünglichen anthropogenen EDGAR-Stickoxidquelle; unten: Vergleich in den anthropogen dominierten Gebieten mit der GOME- NO_x -Quelle von Martin et al. [26]; Farbskala nach Abbildung 7.1

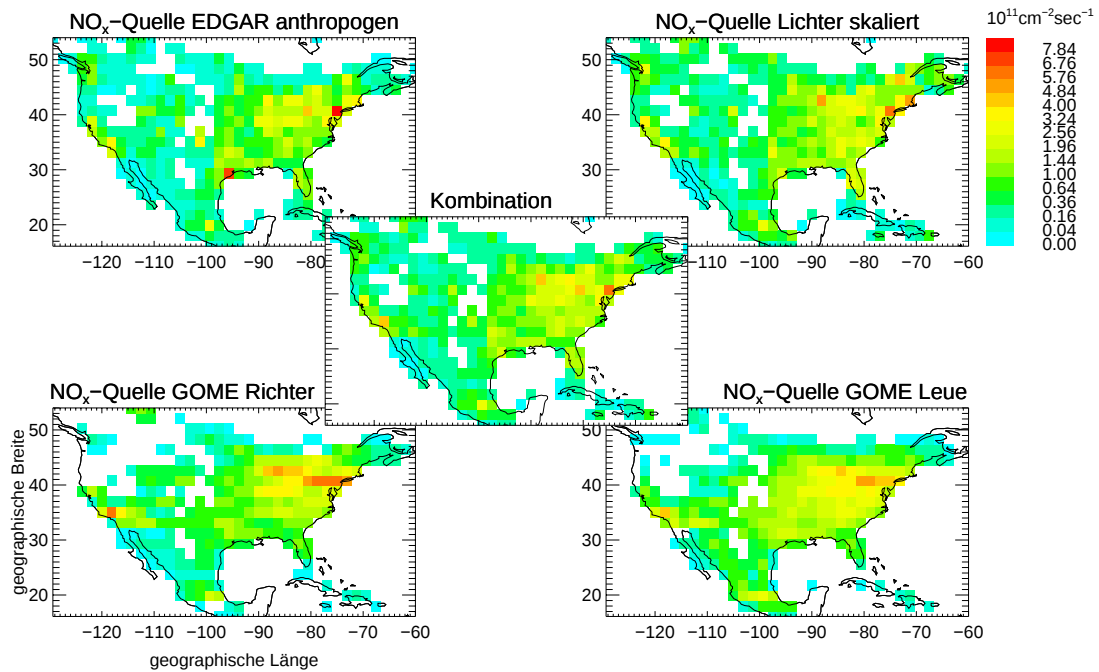


Abbildung 7.8: Vergleich der vier Ursprungsfelder und der Kombination in Nordamerika; Farbskala nach Abbildung 7.1

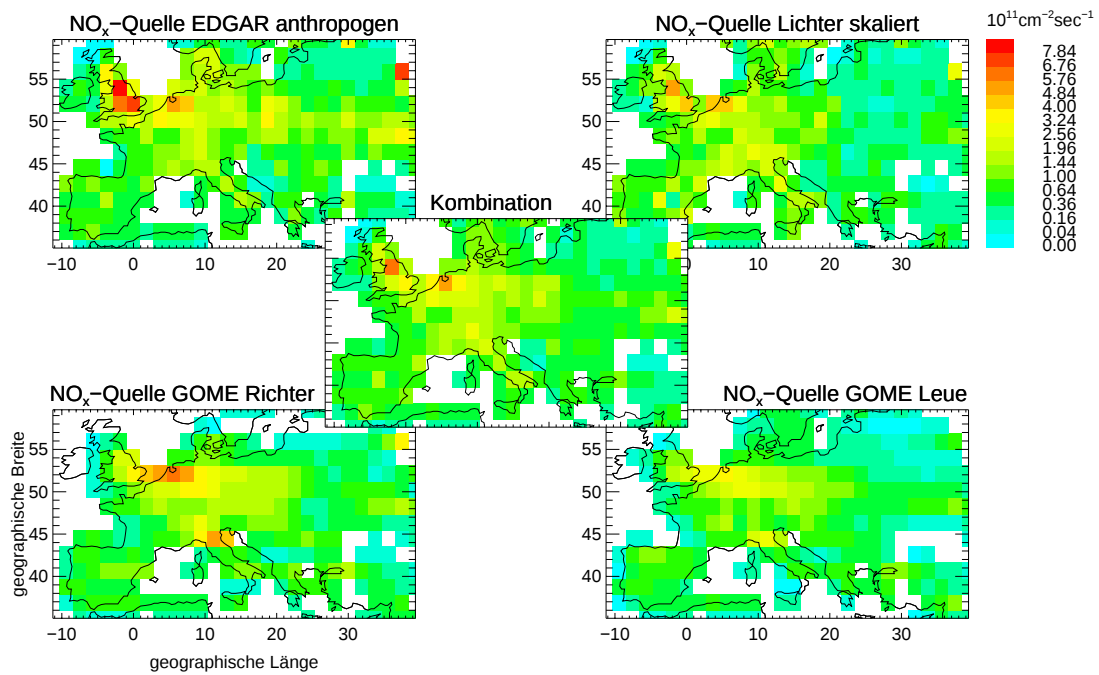


Abbildung 7.9: Vergleich der vier Ursprungsfelder und der Kombination in Europa; Farbskala nach Abbildung 7.1

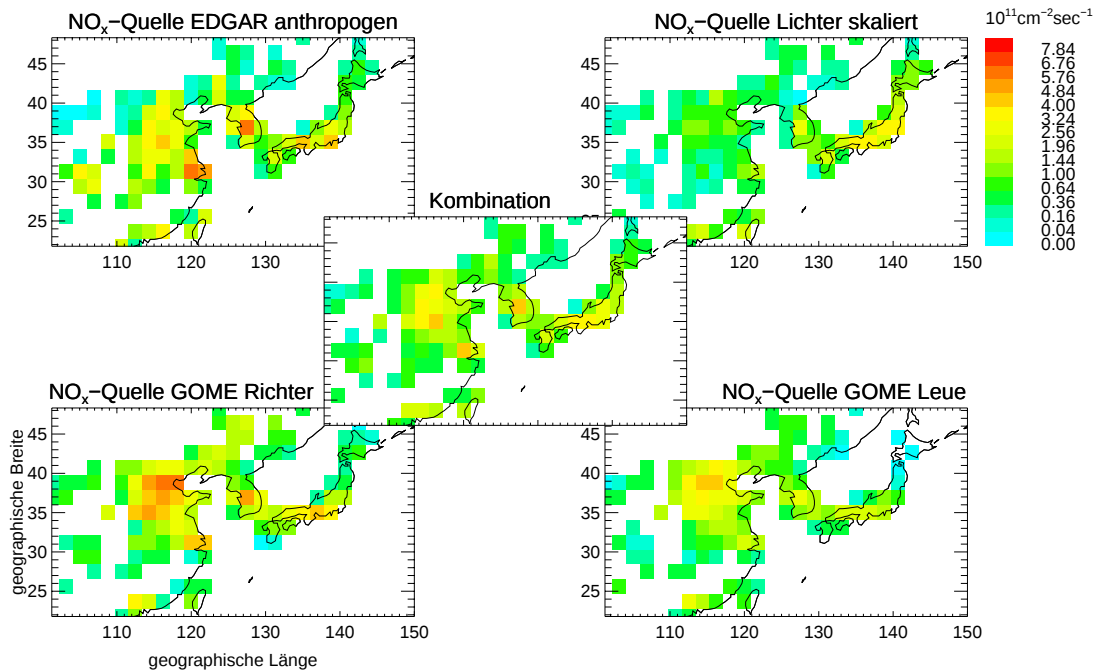


Abbildung 7.10: Vergleich der vier Ursprungsfelder und der Kombination in Nordost-Asien; Farbskala nach Abbildung 7.1

lisierten Gebiete Nordamerika, Europa und Nordasien sind in den Abbildungen 7.8, 7.9 und 7.10 die vier Ursprungsquellen und das Kombinationsfeld nochmals vergrößert zusammengefasst. Hier wurden die biogen dominierten Gitterpunkte wieder grau maskiert, damit die biogenen Anteile in den GOME basierten Quellen nicht den Vergleich erschweren. Ein Vergleich mit der Lokalisierung der Ausreißer (Abbildung 7.6) zeigt, dass die Hauptunterschiede zwischen einzelnen Originalfeldern und dem Kombinationsfeld auf die Ausreißer in diesen Feldern zurückzuführen sind (in Nordamerika z. B. ist Houston, Texas ein Ausreißer in EDGAR, in Europa die Po-Ebene ein Ausreißer in GOME Richter, in Ostchina liegt die Lichterquelle extrem niedrig).

Po-Ebene

Speziell in der Po-Ebene wurde von Petrioli et al. [30] ein Vergleich zwischen der auch hier betrachteten GOME Auswertung von Richter & Burrows und Bodenmessungen durchgeführt. Dabei wurden Zeitreihen der troposphärischen Säulendichtemessungen von GOME mit denen des ebenfalls im UV und sichtbaren Bereich arbeitenden GASCOD (Gas Analyser Spectrometer Correlating Optical Differences) Spektrometers auf dem Monte Cimone (Gipfel im Apennin südlich der Po-Ebene) verglichen, mit dem troposphärische Säulendichten vom Boden aus gemessen werden. Zur Abschätzung des unterhalb der Messstation vorhandenen NO_2 wurden die täglichen Maximal- und Mittelwerte über zwei Jahre (2000 und 2001) des ARPA (Regional Agency for Environmental Protection) herangezogen.

R	X_{ED}	X_{Li}	X_{Ri}	X_{Leu}
Kombination	0.89 ± 0.02	0.89 ± 0.02	0.84 ± 0.02	0.73 ± 0.04
NO _x -Quelle Martin	0.75 ± 0.03	0.71 ± 0.03	0.80 ± 0.02	0.75 ± 0.03

Tabelle 7.4: Räumliche Korrelationskoeffizienten der vier Emissionsfelder mit dem kombinierten Feld und mit der GOME-NO_x-Quelle von Martin et al. an den anthropogen dominierten Gitterpunkten; die Korrelation zwischen der Kombination und letzterer Quelle beträgt $R = 0.84 \pm 0.02$

Auch unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Größe und Lage der beiden Bodenpixel finden Petrioli et al., dass GOME die troposphärische Säule deutlich unterschätzt (der Faktor variiert im Laufe des Jahres etwa zwischen Eins und Zehn). Dies widerspricht dem Befund dieser Arbeit, dass bei der Betrachtung der resultierenden Quellen GOME Richter in der Po-Ebene in Richtung zu hoher Werte ausreißt (bei der Betrachtung der Säulendichten wurden in der Po-Ebene noch keine Ausreißer detektiert, siehe Abbildung 5.9), was auch in Abbildung 7.9 nochmals deutlich wird. In dieser Arbeit werden die globalen Muster verglichen, das heißt die Größe der troposphärischen Säule eines Pixels im Verhältnis zu der der anderen Pixel. Beim Vergleich des Gesamtinventars des offsetkorrigierten GOME Richter mit der EDGAR-Modellrechnung ergab sich über dem anthropogen dominierten Gebiet ein Faktor von 3.5 (siehe Tabelle 6.3). Im Vergleich mit der Modellrechnung unterschätzt GOME Richter die Säulendichten demnach generell. Nach Multiplikation der GOME Säulen mit 3.5 wäre die von Petrioli et al. gefundene Diskrepanz kleiner. Dies erklärt jedoch noch nicht die Identifizierung der Po-Ebene als Ausreißer in Richtung zu hoher Werte bei der Quellbetrachtung.

Räumliche Korrelationskoeffizienten

In Tabelle 7.4 sind die Korrelationskoeffizienten der vier Ursprungsfelder mit der kombinierten Quelle an den durch anthropogene Emissionen dominierten Gitterpunkten aufgelistet. Ein Vergleich mit Tabelle 7.1 zeigt, dass die neue Quelle besser mit jedem der Ursprungsfelder korreliert, als diese untereinander; eine Ausnahme bilden hier die beiden GOME-Auswertungen, die sowohl Wahrheit wie auch einen Teil ihrer Fehler gemeinsam enthalten und daher untereinander höher korreliert sind als mit den übrigen Feldern.

7.4 Vergleich mit der Quelle von Martin et al.

Martin et al. [26] werteten GOME-Säulendichten nach einem eigenen Algorithmus aus und konstruierten eine *a posteriori* NO_x-Quelle durch punktweises gewichtetes Mitteln der Satellitendaten und des Standard-Emissionskatasters des Modells GEOS-CHEM (basierend auf dem alten GEIA-Kataster) mit dem jeweils geschätzten Fehler am jeweiligen Gitterpunkt als Gewicht (siehe Abschnitt 1.1.3). Sie geben an, dass der Fehler für diese Quelle über dem Ostteil der Ver-

einigten Staaten, Europa und dem Osten Chinas typischerweise weniger als 40% beträgt. Unter der Annahme, dass sich diese Angabe auf den Fehler relativ zu den „wahren“ Quellen bezieht, lässt sich die Fehlerangabe mittels Gleichung 5.5 mit $b = 0.4$ und $c = 0$ in einen Musterfehler von $e_{Ma} = 0.23$ umrechnen.

Da das *a posteriori* Emissionsfeld von Martin et al., im Weiteren vereinfachend NO_x -Quelle Martin genannt, auch die biogenen Emissionen beinhaltet, kann es nur über den anthropogen dominierten Gebieten mit der in dieser Arbeit konstruierten Quelle verglichen werden; in Abbildung 7.7 unten sind beide Quellfelder nochmals mit grauer Maskierung der biogen dominierten Gebieten dargestellt. Der Korrelationskoeffizient zwischen der NO_x -Quelle Martin und der hier kombinierten Quelle beträgt $R_{Ma, comb} = 0.84 \pm 0.02$, die Korrelationskoeffizienten zwischen den vier Ursprungsquellfeldern und der Martin-Quelle sind in Tabelle 7.4 in der unteren Zeile aufgelistet. Auch wenn die Korrelation der Martin-Quelle zu der Kombination höher ist als zu den Einzelfeldern, ist sie doch nicht besonders hoch: Die beiden optimalen Kombinationen weisen nur $R^2 = 71\%$ gemeinsame Varianz auf. Bei wenig gemeinsamer Varianz und kleinen relativen Fehlervarianzen können die Felder nicht viele gemeinsame Fehler haben. Das lässt sich mit Gleichung 4.6 quantifizieren, nach der Fehlerkovarianz $e_{Ma, comb}$ aufgelöst ergibt sich:

$$e_{Ma, comb} = 1 - \frac{\sqrt{(1 - e_{Ma})(1 - e_{comb})}}{R_{Ma, comb}}.$$

mit $e_{comb} = 0.12$, $e_{Ma} = 0.23$ und $R_{Ma, comb} = 0.84$ folgt $e_{Ma, comb} = 0.03$, das heißt, nur 3% der gemeinsamen Varianz der beiden Felder ist Varianz eines gemeinsamen Fehlers.

Beide Kombinationsfelder enthalten GOME-Daten und Emissionskataster, aber in unterschiedlicher Form, siehe Abschnitt 1.1.3: Martin et al. verwendeten die NO_x -Quellen des Modells GEOS-CHEM, hier wurde das EDGAR-Kataster benutzt; Martin et al. werteten die GOME-Spektren durch direkten Fit aus und berechneten zur Umrechnung von schiefen in vertikale Säulendichten NO_2 -Höhenprofile mit dem Modell GEOS-CHEM, die hier verwendeten GOME-Auswertungen von Richter & Burrows und Leue et al. gingen nach der DOAS-Methode vor und nahmen ein konstantes Höhenprofil für NO_2 an; Martin et al. betrachteten die Monate von September 1996 bis August 1997, hier wurden die Jahre von 1996 bis 2001 gemittelt. Deswegen ist es gut möglich, dass die *a posteriori* NO_x -Quelle von Martin et al. und die hier konstruierte Kombinationsquelle tatsächlich nur 3% relative Fehlerkovarianz aufweisen.

7.5 MOZART-Rechnung mit der neuen Quelle

Von Olaf Stein (ICG-II, FZ Jülich) wurde eine MOZART-Modellrechnung mit der in diesem Kapitel konstruierten kombinierten anthropogenen NO_x -Quelle durchgeführt. In Abbildung 7.11 ist der Jahresmittelwert der troposphärischen NO_2 -Säulen dieser Modellrechnung im Vergleich mit den vier Ursprungsfeldern und der robusten Kombination (standardisiert) der Säulendichtefelder aus Abschnitt

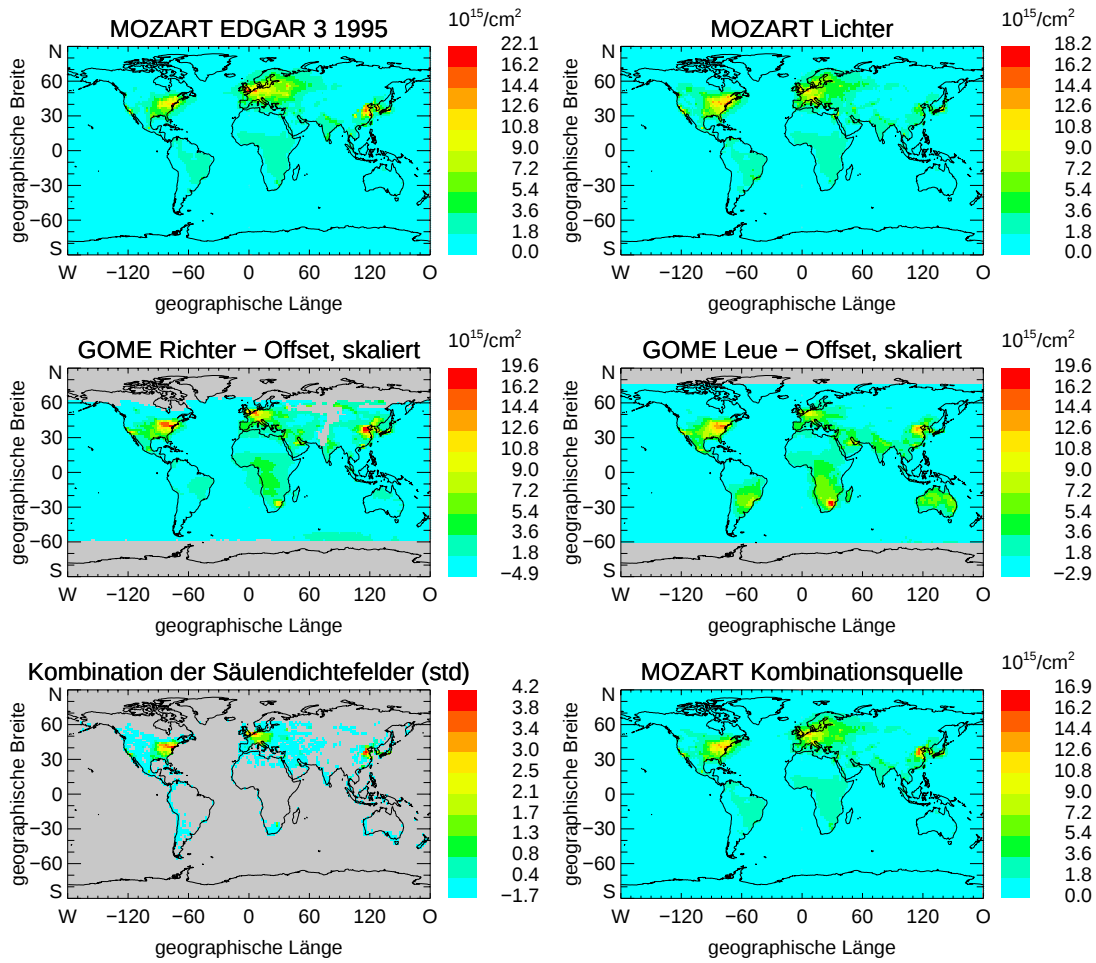


Abbildung 7.11: Jahresmittelwerte troposphärischer Säulendichtefelder: Modellrechnung mit EDGAR 3 1995 und der lichterbasierten anthropogenen NO_x -Quelle, GOME-Satellitenfelder offsetkorrigiert relativ zu MOZART EDGAR und skaliert, robuste Kombination aus Abschnitt 5.4 (standardisiert), Modellrechnung mit der Kombinationsquelle (Abschnitt 7.3)

5.4 dargestellt; die Farbskala der Abbildungen ist bis auf die Extremwerte bei allen nicht standardisierten Feldern gleich.

In diesem Vergleich werden nicht die originalen GOME-Felder betrachtet, sondern die relativ zu MOZART EDGAR offsetkorrigierten und skalierten Felder, da auch bei der Konstruktion der GOME-basierten anthropogenen NO_x -Quellen (Kapitel 6) Offsets von GOME gegenüber der anthropogenen EDGAR-Quelle subtrahiert wurden. Der relative Offset der Säulen zwischen Satellitenmessungen und Modellrechnungen könnte, wie in Kapitel 6 argumentiert, auch im Modell verursacht sein, etwa durch fehlende Bodenemissionen, zu geringe Modelldiffusion oder chemische Lebensdauer. In dieser Arbeit liegt der Fokus jedoch auf anthropogenen Emissionen; ein Vergleich der offsetkorrigierten Felder macht die Unterschiede aufgrund der geänderten anthropogenen Quelle deutlicher. Es fällt

Gesamtinventar	global	anthropogen dominiertes Gebiet
MOZART EDGAR	107.1kt N	37.5kt N
MOZART Kombinationsquelle	106.4kt N	36.7kt N

Varianz	global	anthropogen dominiertes Gebiet
MOZART EDGAR	$2.4 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$	$9.3 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$
MOZART Lichter	$2.1 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$	$7.3 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$
GOME Richter, –Offset, skaliert	$2.4 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$	$10.5 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$
GOME Leue, –Offset, skaliert	$2.0 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$	$8.7 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$
MOZART Kombinationsquelle	$2.0 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$	$7.0 \times 10^{30} \text{ cm}^{-4}$

Tabelle 7.5: Inventar (über die Erdoberfläche integrierte Gesamtmenge) und Varianz des Jahresmittelwertes der troposphärischen Säulendichten der Modellrechnung mit der neuen Kombinationsquelle im Vergleich mit den beiden ursprünglichen Modellrechnungen und den relativ zur EDGAR–Modellrechnung offsetkorrigierten und skalierten Satellitenfeldern

jedoch auf, dass nach der Subtraktion der über dem durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet bestimmten Offsets die GOME–Felder über großen Teilen der Ozeane negative Werte annehmen. Bei näherer Betrachtung der biogenen Gebiete müssten dort eigene Offsets bestimmt werden.

Gesamtinventar und Varianz

Da die Quellstärke des neuen Emissionsfeldes sowohl in dem durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet wie auch global auf die Quellstärke der anthropogenen EDGAR–Emissionen skaliert ist, stimmt auch in den zugehörigen Säulendichtefeldern die in der Troposphäre vorhandene Gesamtmenge an NO_2 überein, wie Tabelle 7.5 (oben) zeigt.

Unten in Tabelle 7.5 ist die Varianz des Jahresmittelwertes der troposphärischen Säulendichten der Modellrechnung mit dem neuen Emissionsfeld im Vergleich mit den beiden ursprünglichen Modellrechnungen und den relativ zur EDGAR–Rechnung offsetkorrigierten und skalierten Satellitenfeldern dargestellt. Global ist die Varianz bedingt durch die einheitlichen Ozeanflächen in allen Feldern ziemlich niedrig. Über dem durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet ist die Varianz der Säulendichten auf Basis der neuen Kombinationsquelle etwas kleiner als die der anderen Felder. Dies ist auch zu erwarten: Die enthaltene Fehlervarianz sollte kleiner sein, da der Fehleranteil der Varianz der zugehörigen Quelle mit 12% deutlich niedriger liegt als der der anderen Quellen über diesem Gebiet (vergleiche Tabelle 7.2 oben).

R_{ij}	MOZART Kombination global	MOZ Kombination anthrop. dominiert	Beispielkombination Säulendichtefelder
MOZ EDGAR	0.97 ± 0.01	0.95 ± 0.01	0.87 ± 0.02
MOZ Lichter	0.96 ± 0.01	0.92 ± 0.01	0.88 ± 0.02
GOME Richter	0.80 ± 0.01	0.83 ± 0.02	0.95 ± 0.01
GOME Leue	0.71 ± 0.01	0.72 ± 0.03	0.82 ± 0.02

Tabelle 7.6: Räumliche Korrelationskoeffizienten zwischen den Jahresmittelwerten der vier Ursprungsfelder und dem einer MOZART-Modellrechnung mit der in Abschnitt 7.3 konstruierten Quelle (global und in dem anthropogen dominierten Gebiet) sowie mit der robusten Beispielkombination der Säulendichtefelder aus Abschnitt 5.4 (anthropogen dominiertes Gebiet)

Räumliche Korrelationskoeffizienten

Die räumlichen Korrelationskoeffizienten zwischen den Jahresmittelwerten der vier ursprünglichen Säulendichtefelder und dem der MOZART-Modellrechnung mit der hier konstruierten Kombinationsquelle sind in Tabelle 7.6 sowohl global wie auch in dem durch anthropogene Emissionen dominierten Gebiet aufgelistet. Zum Vergleich sind für das letztere Gebiet auch die Korrelationen mit der robusten Beispielkombination der Säulendichtefelder aus Abschnitt 5.4 dargestellt. Die vier ursprünglichen Felder korrelieren mit der neuen Modellrechnung besser als jeweils untereinander (Ausnahme: die beiden GOME-Auswertungen, wegen hoher Fehlerkovarianz), siehe Tabelle 5.1.

Da die GOME-basierten Quellen aufgrund von unvollständig kompensiertem Transport und Ortsabhängigkeit der Lebensdauer mit geringeren Wichtungsfaktoren eingegangen sind als die EDGAR- oder die Lichterquelle, korrelieren die Satellitenfelder mit dem neuen Feld schlechter als die beiden MOZART-Rechnungen. Bei der Beispielkombination der Säulendichtefelder aus Abschnitt 5.4 ist dies aufgrund von gemeinsamen Fehlern der beiden Modellrechnungen genau umgekehrt. Die Korrelation zwischen der robusten Beispielkombination über dem anthropogen dominierten Gebiet und der Modellrechnung mit der neuen konstruierten Quelle beträgt $R = 0.95 \pm 0.01$.

Ausblick

In dieser Arbeit wurde eine Methode der Korrelations-Fehleranalyse entwickelt, die es ermöglicht, Musterfehler für mindestens drei Felder zu bestimmen, deren Fehler als unabhängig angenommen werden können. Damit konnten Fehlerbereiche für die Musterfehler der Jahresmittelwerte der troposphärischen NO_2 -Verteilung von zwei GOME-Auswertungen sowie von zwei Modellrechnungen bestimmt werden. Die Korrelations-Fehleranalyse kann auch in anderen Zusammenhängen angewandt werden, die betrachteten Größen können statt räumlicher Felder etwa auch Zeitreihen sein, zum Beispiel Messreihen dreier unabhängiger Instrumente jeweils derselben physikalischen Größe.

Die Methode wurde auch auf vier Felder anthropogener NO_x -Emissionen angewandt: auf EDGAR 3 anthropogen als eine auf Wirtschaftsdaten der einzelnen Länder basierenden *bottom up* Schätzung, auf aus den beiden *top down* gemessenen GOME-Säulendichten abgeschätzte Quellverteilungen, sowie auf die Satellitenmessung der Lichter der Welt bei Nacht als Proxy für die anthropogenen Emissionen. Für diese Felder konnten Musterfehler angegeben werden und es konnte ein neues Feld konstruiert werden mit deutlich reduziertem Musterfehler. Da das neue Feld neben der *bottom up* Schätzung auch globale Messungen enthält, ist eine deutliche Verbesserung auch zu erwarten. Die Gesamtquellstärke der neuen Quelle wurde auf die Quellstärke der anthropogenen Emissionen von EDGAR 3 skaliert.

Da die „wahre“ Quellverteilung nicht bekannt ist, konnte die Verbesserung des Musters der neuen Quellverteilung nur intern mittels der zur Konstruktion benutzten Methode gezeigt werden, hohe Korrelationen zwischen einer Modellrechnung mit der neuen Quelle und den ursprünglichen Säulendichtefeldern zeigten die Konsistenz des Verfahrens. Ein Vergleich mit nationalen Emissionskatastern war bei der hier verwendeten Auflösung nicht möglich, da die Anzahl der Gitterpunkte eines Landes für Korrelationen nicht ausreicht. Dies könnte jedoch in Zukunft mit höher aufgelösten Satellitenmessungen und entsprechenden Modellrechnungen möglich werden. Wenn zukünftig aktuellere Schätzungen der anthropogenen Emissionen vorliegen oder auch präzisere Schätzungen einer bestimmten Region wie etwa Europa oder Nordamerika, können auch diese zum Vergleich sowohl der Muster wie auch der Quellstärken herangezogen werden. Dabei ist zu beachten, dass solche Schätzungen selten unabhängig von früheren Schätzungen sind. Die anthropogenen Emissionen des POET Projektes (*Precursors of Ozone and their Effects in the Troposphere*) etwa basieren auf den anthropogenen Emissionen von EDGAR 3.

Neben einer weiteren Präzisierung und Evaluierung der hier konstruierten anthropogenen NO_x -Quelle könnte das Verfahren auch zur Abschätzung der biogenen Emissionen angewandt werden. Zur Abschätzung der Emissionen aufgrund von Biomasseverbrennung kämen als Ursprungsfelder etwa Satellitenaufnahmen der verbrannten Fläche von Landsat, Feuerzählungen von ATSR (*Along-Track Scanning Radiometer*), einem Instrument, dass sich wie GOME auf dem zweiten europäischen Fernerkundungssatelliten befindet, sowie die EDGAR-Schätzung in Frage.

Anhang A

Bootstrap–Verfahren

Ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung der einer Stichprobe $D_{(0)}$ zugrundeliegenden stochastischen Variablen bekannt, so können Konfidenzintervalle für aus der Stichprobe gewonnene Parameterschätzungen a_0 analytisch berechnet werden.

Wenn die „wahre“ Wahrscheinlichkeitsverteilung unbekannt ist, die Informationen über die Stichprobe jedoch ausreichen, um *via* Simulation weitere Datensätze zu generieren, die von der „wahren“ stochastischen Größe in gleicher Weise abweichen wie die Stichprobe, so hilft eine *Monte Carlo Simulation* weiter: Es wird eine große Anzahl M von simulierten Datensätzen $D_{(i)}^s$ generiert und dann werden für jeden die gewünschten Parameterschätzer berechnet. Danach werden der Mittelwert $\bar{a}$ und das geforderte Konfidenzintervall Δa (z. B. eine Standardabweichung) dieser M Parameterschätzer bestimmt.

Sind nicht genügend Informationen über die der Größe zugrundeliegenden Prozesse oder auch die Natur der Messfehler bekannt, um eine glaubwürdige *Monte Carlo Simulation* durchzuführen, so kann das *Bootstrap*–Verfahren [32] [11] zum Einsatz kommen.

Bei dieser Methode wird, wie schematisch in Abbildung A.1 dargestellt ist, aus dem ursprünglichen Datensatz $D_{(0)}$ eine große Anzahl M simulierter Datensätze gleicher Größe $D_{(1)}^s, D_{(2)}^s, \dots, D_{(M)}^s$ erzeugt. Dies geschieht jeweils durch Herausnehmen einer gewissen Anzahl (typisch: $1/e \approx 37\%$) zufällig ausgewählter Datenpunkte, die durch Duplikation ebenfalls zufällig ausgewählter anderer Datenpunkte ersetzt werden. Diese künstlichen Datensätze werden wie die simulierten Datensätze bei der *Monte Carlo Simulation* ausgewertet: Für jeden Datensatz $D_{(i)}^s$ werden die gesuchten Parameter $a_{(i)}$ berechnet, dann werden aus diesen M Parametern Mittelwert und gefordertes Konfidenzintervall bestimmt.

Voraussetzung für das *Bootstrap*–Verfahren ist, dass die Datenpunkte, aus denen die Stichprobe besteht, unabhängig und identisch verteilt (*iid: independent identically distributed*) sind. Dies heißt hier insbesondere, dass die Berechnung der gesuchten Parameter a nicht von der Reihenfolge der Datenpunkte abhängen darf. Für Größen wie z. B. Mittelwert, Korrelations- und Regressionskoeffizienten ist dies erfüllt. Ein Gegenbeispiel wäre etwa die Rangkorrelation, bei der zunächst die Datensätze sortiert und dann Differenzen von aufeinander folgenden Datenpunkten betrachtet werden.

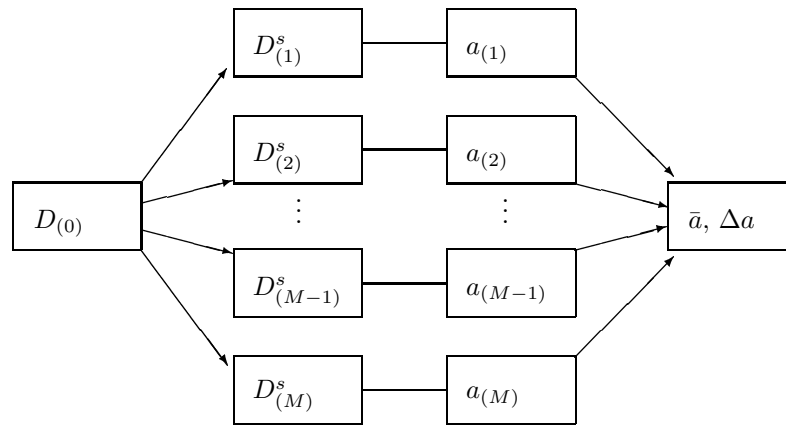


Abbildung A.1: Beim *Bootstrap*-Verfahren werden aus dem ursprünglichen Datensatz $D_{(0)}$ durch Herausnehmen einer gewissen Anzahl Datenpunkte und Ersetzen dieser Punkte durch Duplizierung anderer Punkte M künstliche Datensätze $D_{(i)}^s$ erzeugt, für die jeweils die gesuchten Parameter $a_{(i)}$ bestimmt werden. Daraus werden dann Mittelwert und gefordertes Konfidenzintervall berechnet.

Anhang B

Faltung

B.1 Faltung

Die Glättung eines Feldes kann durchgeführt werden durch Faltung mit einem Matrix-Kern K . Analog zum gleitenden Mittelwert in einer Dimension wird der Kern über das Feld geschoben. An jedem Punkt des Feldes wird ein Mittelwert gebildet über die vom Kern überdeckten Umgebungspunkte, die dabei jeweils mit dem Wert des Kerns an dieser Stelle gewichtet werden. Für

$$K = \frac{1}{18} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & 10 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \end{pmatrix}$$

etwa wird an jedem Punkt ein gewichteter Mittelwert aus dem Punkt mit allen seinen Nachbarpunkten gebildet, wobei der Punkt selbst zehn mal so stark in die Summe eingeht wie jeder seiner Nachbarpunkte.

Die allgemeine Formel für die Faltung eines Felds X der Größe $im \times jm$ mit einem Kern K der Größe $lm \times km$ lautet (ohne Berücksichtigung der Ränder):

$$Y_{i,j} = \sum_{l=-\frac{lm}{2}}^{\frac{lm}{2}} \sum_{k=-\frac{km}{2}}^{\frac{km}{2}} X_{i+l, j+k} K_{\frac{lm}{2}+l, \frac{km}{2}+k} \quad (\text{B.1})$$

An den Rändern des Feldes gibt es mehrere Möglichkeiten; in dieser Arbeit sollen geographische Karten gefaltet werden, dazu werden in der ersten Dimension (Index i , entspricht der Ost–West Richtung) periodische Randbedingungen angenommen, in der zweiten Dimension (Index j , Nord–Süd Richtung) geht der Randwert entsprechend häufiger in die Mittelwertbildung ein. Daher lauten die tatsächlichen Indizes von X

$$\begin{aligned} i + l &\rightarrow (im + i + l) \bmod im \\ j + k &\rightarrow \min(\max(j + k, 0), jm - 1) \end{aligned}$$

B.2 Entfaltung

Nun soll die Umkehroperation zur oben vorgestellten Faltung bestimmt werden. Es sollen also bei Kenntnis von K und Y die Werte von X berechnet werden. Dazu werden die Felder X und Y als Vektoren geschrieben und Gleichungssystem B.1 in Matrixform dargestellt:

$$\vec{y} = A\vec{x} ,$$

mit

$$\begin{aligned} x_n &= X_{n \div jm, n \bmod jm} \\ y_n &= Y_{n \div jm, n \bmod jm} \\ A_{jm \cdot i + j, jm(i+l) + j + m} &= K_{\frac{lm}{2} + l, \frac{km}{2} + k} , \end{aligned}$$

worin $\div$ die Ganzzahldivision darstellt.

$$\vec{x} = A^{-1}\vec{y}$$

ist die Auflösung von Gleichung B.1 nach X und damit die exakte Umkehrung der Faltung nach der *brute force*-Methode: A hat die Dimensionen $(im \cdot jm) \times (im \cdot jm)$, hat also für Felder in der Auflösung T63 mit $im = 192$ und $jm = 96$ Gitterpunkten gewaltige Ausmaße. Da der verwendete Kern K jedoch nur von der Dimension 3×3 ist, besteht A bis auf die Haupt- sowie zwei Nebendiagonalen aus Nullen. Außerdem sind die zu entfaltenden Felder nördlich von 70° Breite und südlich von -60° Breite ohnehin nicht definiert. Auf einem Desktop-Computer mit 2 Gigabyte Hauptspeicher stellt die Inversion damit kein Problem dar.

Lokal operierende Methoden aus der Bildverarbeitung oder auf der Basis von Fourier-Transformationen kommen mit deutlich weniger Speicherplatz aus, hängen jedoch empfindlich von den Randbedingungen ab und/oder sind konzeptionell deutlich komplizierter als eine bloße Matrixinversion. Ihre Anwendung ist hier nicht nötig, da die *brute force*-Methode mit der vorhandenen Hardware problemlos durchzuführen war.

Schließen von Lücken

Kommen in den Feldern nicht definierte Werte vor, so kann die oben beschriebene Faltung bzw. Entfaltung ohne ein Schließen dieser Lücken nicht durchgeführt werden. Der Einfluss artifizierlicher Füllwerte beschränkt sich aber auf eine halbe Kern-Breite, ist also lokal begrenzt und damit unproblematisch. Die Lücken wurden sukzessive geschlossen, indem jeweils der nicht definierte Gitterpunkt mit den meisten definierten Nachbarn auf den Mittelwert seiner Nachbarpunkte gesetzt wurde. Nach dem Falten oder Entfalten wurden die ursprünglichen Lücken wieder hergestellt.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Beobachtungsgeometrie von GOME	6
1.2	Troposphärische NO ₂ -Säulendichten, Herbst 1997 (IUP Heidelberg [44])	10
1.3	DMSP-OLS: Lichter der Welt bei Nacht (Elvidge et al.[12])	16
3.1	Vertikalkoordinaten des MOZART-Modells	26
3.2	Modell: Beiträge der einzelnen Schichten zu den Säulendichten . .	27
3.3	Jahresmittelwerte troposphärischer NO ₂ -Säulendichtefelder, Modell und GOME, gleiche Farbskala	29
3.4	Zonale Mittel der nach unterschiedlichen Kriterien bestimmten Modellsäulen und der GOME-Auswertungen	32
3.5	Scatterplots Modellsäulen gegen GOME-Messungen	36
4.1	Anwendung der Korrelations-Fehleranalyse auf ein aus Zufallszahlen konstruiertes Beispiel	49
4.2	Einfluss einzelner Gitterpunkte auf Musterfehler der Beispielfelder und identifizierte Ausreißer	52
4.3	Häufigkeitsverteilung der standardisierten <i>Jackknife</i> -Änderungen der absoluten Fehlervarianzen der Beispielfelder	53
4.4	Scatterplots der <i>Jackknife</i> -Änderungen der absoluten Fehlervarianzen der Beispielfelder	55
5.1	Jahresmittelwerte troposphärischer NO ₂ -Säulendichtefelder, Modell und GOME, lineare Farbskala	62
5.2	Relative Fehlervarianzen und -Kovarianzen der vier Säulendichtefelder	63
5.3	Wertebereiche der nicht festgelegten relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen	65
5.4	Jahresmittelwerte troposphärischer Säulendichtefelder, Modell und GOME, standardisiert, nicht betrachtete Gitterpunkte maskiert .	71
5.5	Einfluss einzelner Gitterpunkte auf Musterfehler der NO ₂ -Säulendichten	73
5.6	Häufigkeitsverteilung der standardisierten <i>Jackknife</i> -Änderungen der absoluten Fehlervarianzen der NO ₂ -Säulendichtefelder	74
5.7	Scatterplots der <i>Jackknife</i> -Änderungen der absoluten Fehlervarianzen der NO ₂ -Säulendichtefelder	75

5.8	Robuste Kombination der vier NO ₂ -Säulendichtefelder	78
5.9	Geographische Lokalisierung der Ausreißer	79
5.10	Auftragung der standardisierten NO ₂ -Säulendichte-Felder gegen die robuste Kombination, Einfärbung nach geographischer Breite .	80
5.11	Jahresmittelwert der troposphärischen NO ₂ -Säulen der GOME Aus- wertung von Boersma et al.	83
5.12	Korrelation GOME Boersma – optimale Kombination dieser Arbeit	85
6.1	Verhältnis gestörte Modellrechnung zu Standardrechnung	88
6.2	Verhältnis gestörte Modellrechnung zu Standardrechnung, ein- dimensional	89
6.3	Korrelationen zwischen modellierten NO ₂ -Säulen und geglätteten NO _x -Quellen	91
6.4	Kumulierte Häufigkeitsverteilungen unterschiedlich transformier- ter Quell- und Säulendichtefelder	94
6.5	Kumulierte Häufigkeitsverteilungen unterschiedlich transformier- ter modellierter und gemessener Säulendichten	98
6.6	Scatterplot Modell-Quellen gegen zugehörige entfaltete Säulen dop- pelt logarithmisch, Säulen original und potenziert	102
6.7	NO ₂ -Satellitensäulen und daraus konstruierte anthropogene NO _x - Quellen	105
7.1	Abschätzungen für anthropogene NO _x -Quellen: EDGAR 3 anthro- pogen, lichterbasierte und GOME-basierte Quellen	108
7.2	Relative Fehlervarianzen und -Kovarianzen der vier Emissionsfelder	109
7.3	Einfluss einzelner Gitterpunkte auf die Musterfehler der Quellfelder	112
7.4	Häufigkeitsverteilung der standardisierten <i>Jackknife</i> -Änderungen der absoluten Fehlervarianzen der Emissionsfelder	113
7.5	Scatterplots der <i>Jackknife</i> -Änderungen der absoluten Fehlervari- anzen der NO _x -Emissionsfelder	114
7.6	Geographische Lokalisierung der Ausreißer der Quellfelder	116
7.7	Anthropogene NO _x -Emissionsfelder: EDGAR, Kombinationsquel- le dieser Arbeit, GOME-basierte Quelle von Martin et al. [26] . .	118
7.8	Vergleich Ursprungsfelder und Kombination: Nordamerika	119
7.9	Vergleich Ursprungsfelder und Kombination: Europa	119
7.10	Vergleich Ursprungsfelder und Kombination: Nordost-Asien	120
7.11	Jahresmittelwerte troposphärischer Säulendichtefelder: Modellrech- nungen (ursprünglich und mit Kombinationsquelle), Satellitensäulen und Kombinationssäulen	123
A.1	<i>bootstrap</i> -Verfahren: schematische Darstellung	130

Tabellenverzeichnis

1	Hauptquellen für Stickoxide in der Troposphäre im CTM MOZART-2	2
1.1	Hauptunterschiede zwischen den verschiedenen GOME-Auswertungen	9
3.1	Gesamtinventar und Verteilung auf Nord- und Südhemisphäre der Jahresmittelwerte der modellierten sowie der von GOME gemessenen troposphärischen NO ₂ -Säulendichtefelder	30
3.2	Räumliche Korrelationskoeffizienten und Regressionskoeffizienten zwischen den betrachteten Feldern	34
4.1	Musterfehler der Beispielfelder	50
4.2	Korrelationskoeffizienten der Beispielfelder	50
4.3	Wichtungsfaktoren zur Kombination der Beispielfelder	51
4.4	Wichtungsfaktoren zur Kombination der Beispielfelder, robust berechnet	56
5.1	Räumliche Korrelationskoeffizienten der Säulendichtefelder	60
5.2	Bereiche für die Musterfehler der Säulendichtefelder	66
5.3	Mittelwert, Standardabweichung und Verhältnis von Mittelwert zu Standardabweichung der Säulendichtefelder	66
5.4	Bereiche der Wichtungsfaktoren für nicht skalierte und für standardisierte Säulendichtefelder zur Minimierung des Musterfehlers	67
5.5	Beispielfall: Musterfehler und Wichtungsfaktoren für Säulendichtefelder	69
5.6	Beispielfall: Korrelationskoeffizienten zwischen dem kombinierten Feld und den vier Einzelfeldern	70
5.7	Beispielfall: Robuste Schätzer für die relativen Fehlervarianzen und -Kovarianzen	76
5.8	Beispielfall: Konstruktion eines robusten Kombinationsfeldes	77
5.9	Korrelationskoeffizienten mit den troposphärischen NO ₂ -Säulen der GOME Auswertung von Boersma et al.	84
6.1	Globale Gesamtquellstärke: modellinterne NO _x -Emissionen und skalierte entfaltete GOME-Messungen	93

6.2	Offset und Rauschen für aus den Säulendichten konstruierte NO_x -Quellen	96
6.3	Offset und Rauschen relativ zur EDGAR-Modellrechnung	99
6.4	Varianzen der Säulendichtefelder, original und skaliert	100
6.5	Modell: Varianzen und Maxima der Quellen sowie der aus den zugehörigen Säulen zurückgewonnenen Quellen	101
6.6	Korrelationskoeffizienten zwischen anthropogener Quelle und unterschiedlich transformierter zugehöriger Modellrechnung	103
7.1	Räumliche Korrelationskoeffizienten der vier Emissionsfelder	109
7.2	Musterfehler und Wichtungsfaktoren zur optimalen Kombination der Quellfelder	110
7.3	Konstruktion eines robusten optimalen Emissionsfeldes	117
7.4	Räumliche Korrelationskoeffizienten der vier Emissionsfelder mit dem kombinierten Feld und mit der GOME- NO_x -Quelle von Martin et al.	121
7.5	Modellrechnung mit neuer Kombinationsquelle: Inventar und Varianz im Vergleich mit den anderen NO_2 -Säulendichtefeldern	124
7.6	Modellrechnung mit neuer Kombinationsquelle: räumliche Korrelationskoeffizienten mit den anderen NO_2 -Säulendichtefeldern	125

Literaturverzeichnis

- [1] Beirle, S., U. Platt, M. Wenig, T. Wagner (2004), Highly resolved global distribution of tropospheric NO₂ using GOME narrow swath mode data *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 4, 1665–1689, www.atmos-chem-phys.org/acpd/4/1665/, SRef-ID: 1680-7375/acpd/2004-4-1665
- [2] Beirle, S., U. Platt, M. Wenig, T. Wagner (2003), Weekly cycle of NO₂ by GOME measurements: a signature of anthropogenic sources *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 2225–2232, www.atmos-chem-phys.org/acp/3/2225/
- [3] Bey, I., D. J. Jacob, R. M. Yantosca, J. A. Logan, B. D. Field, A. M. Fiore, Q. Li, H. Y. Liu, L. J. Mickley, M. G. Schultz (2001), Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 106, 23,073–23,096
- [4] Boersma, K., F., H. J. Eskes, E. J. Brinksma (2004), Error analysis for tropospheric NO₂ retrieval from space, *J. Atmos. Sci.*, 109, D04311, doi:10.1029/2003JD003962
- [5] Burrows, J. P., et al. (1995a), The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission Concept and First Scientific Results, *J. Atmos. Sci.*, 56, 151–175
- [6] Chin, M., R. B. Rood, S.-J. Lin, J. F. Muller, A. M. Thomson (2000), Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Model description and global properties, *J. Geophys. Res.*, 105, 24,671–24,687
- [7] Chipperfield, M. P. (1999), Multiannual Simulations with a Three-Dimensional Chemical Transport Model, *J. Geophys. Res.*, 104, 1781–1805
- [8] Dentener, F., M. van Weele, M. Krol, S. Houweling, P. van Velthoven (2002), Trends and interannual variability of methane emissions derived from 1979 – 1993 global CTM simulations, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2 249–287
- [9] Doll, C. N. H., J.-P. Muller, C. D. Elvidge (2000), Night-time Imagery as a Tool for Global Mapping of Socioeconomic Parameters and Greenhouse Gas Emissions, *Ambio Vol. 29, No. 3*, 157–162
- [10] Dubach L., C. Ng. (1988), NSSDC's Compendium of Meteorological Space Programs, Satellites, and Experiments, March 1988.

-
- [11] Efron, B. (1982), The Jackknife, the Bootstrap and Other Resampling Plans Regional Conference Series in Applied Mathematics, Society for Industrial and Applied Mathematics
- [12] Elvidge, C. D., M. L. Imhoff, K. E. Baugh, V. R. Hobson, I. Nelson, J. Safran, J. B. Dietz, B. T. Tuttle (2001), Night-time lights of the world: 1994 – 1995, *ISPRS J. Photogram. Remote Sens.* *56*, 81–99
- [13] de Haan, J. F., P. B. Bosma, J. W. Hovenier (1987), The adding method for multiple scattering calculations of polarized light, *Astron. Astrophys.* *183*, 371–391
- [14] Hartung, J., Statistik, R. Oldenbourg Verlag München Wien
- [15] Holton, J. R., An Introduction to Dynamic Meteorology, Academic Press
- [16] Horowitz, L. W., S. Walters, D. L. Mauzerall, L. K. Emmons, J. P. Rasch, C. Granier, T. Tie, J.-F. Lamarque, M. G. Schultz, G. S. Tyndall, J. J. Orlando, G. P. Brasseur (2003), A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: description and evaluation of MOZART, version 2, *J. Geophys. Res.*, *108*, (D24), 4784, doi:10.1029/2002JD002853
- [17] IPCC (1995), IPCC Guidelines for Greenhouse Gas Inventories-Volume 1: greenhouse gas inventory reporting instructions, Intergovernmental Panel on Climate Change, Geneva
- [18] IPCC (2001), Climate Change 2001: The Scientific Basis
- [19] D. J. Jacob et al. (1997), Evaluation and intercomparison of global atmospheric transport models using Rn-222 and other short-lived tracers, *J. Geophys. Res.*, *102*, (D5), 5953–5970
- [20] Jänich, K, Lineare Algebra, Springer-Verlag
- [21] Knutsson, H., C. Westin (1993), Normalized and differential convolution, methods for interpolation and filtering of incomplete and uncertain data, *IEEE Trans. Pattern Anal. Machine Intelligence*, *3*, 515–523
- [22] Koelemeijer, R. B. A., P. Stammes, J. W. Hovenier, J. F. de Haan (2001), A fast method for retrieval of cloud parameters using oxygen A-band measurements from Global Ozone Monitoring Experiment, *J. Geophys. Res.* *106*, 3475–3490
- [23] Lauer, A., M. Dameris, A. Richter, J. B. Burrows (2002), Tropospheric NO₂-columns: A comparison between model and retrieved data from GOME measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, *2*, 67–78
- [24] Leue, C., M. Wenig, T. Wagner, O. Klimm, U. Platt, B. Jähne (2001), Quantitative analysis of NO_x-emissions from Global Ozone Monitoring Experiment satellite image sequences, *J. Geophys. Res.*, *106*, 5493–5505

-
- [25] Martin, R. V., et al. (2002), An improved retrieval of tropospheric nitrogen dioxide from GOME *J. Geophys. Res.*, 107,(D20) 4437, doi:10.1029/2001JD001027
- [26] Martin, R. V., D. J. Jacob, K. Chance, T. P. Kurosu, P. I. Palmer, M. J. Evans (2003), Global inventory of nitrogen oxide emissions constrained by space-based observations of NO₂-columns, *J. Geophys. Res.*, 108, 4537, doi:10.1029/2003JD003453
- [27] Nüß, J. H., A. Richter, B.-M. Sinnhuber, F. Wittrock, J. P. Burrows, U. Niemeier, C. Granier, J.-F. Müller, N. Savage, K. S. Law, J. A. Pyle, J. G. J. Olivier, R. Koelmeijer (2004), Improvement of GOME NO₂-Retrieval, Poster EGU
- [28] Olivier, J. G. J., J. J. M. Berdowski, J. A. H. W. Peters, J. Bakker, A. J. H. Visschedijk, J.-P. J. Bloos (2001), Applications of EDGAR. Including a description of EDGAR 3.0: reference database with trend data for 1970–1995. RIVM, Bilthoven. RIVM report no. 773301 001 / NOP report no. 410200051
- [29] Olivier, J. G. J., J. P. J. Bloos, J. J. M. Berdowski, A. J. H. Visschedijk and A. F. Bouwman (1999), A 1990 global emission inventory of anthropogenic sources of carbon monoxide on 1° × 1° developed in the framework of EDGAR/GEIA. *Chemosphere: Global Change Science: 1*, 1-17.
- [30] Petritoli, A., P. Bonasoni, G. Giovanelli, F. Ravegnani, I. Kostadinov, D. Bortoli, A. Weiss, D. Schaub, A. Richter, F. Fortezza (2004) First comparison between ground-based and satellite-borne measurements of tropospheric nitrogen dioxide in the Po basin *J. Geophys. Res.*, 109, D15307, doi: 10.1029/2004JD004547
- [31] Platt, U., D. Perner, H. W. Pätz (1979), Simultaneous measurements of atmospheric CH₂O, O₃ and NO₂ by differential optical absorption, *J. Geophys. Res.*, 84, 6329–6335
- [32] Press, W. H., S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, B. P. Flannery (1997), Numerical Recipes in C, The Art of Scientific Computing, Cambridge University Press
- [33] Price, C., J. Penner, M. Prather (1997), NO_x from lightning, 1, Global distribution based on lightning physics, *J. Geophys. Res.*, 102, 5929-5041
- [34] Richter, A., J. B. Burrows (2002), Tropospheric NO₂ from GOME measurements, *Adv. Space Res.*, 29, 1673–1683
- [35] Rozanov, V., D. Diebel, R. J. D. Spurr, J. P. Burrows (1997), GOMETRAN: A radiative transfer model for the satellite project GOME – the plane parallel version, *J. Geophys. Res.*, 102, 16683

- [36] Savage, N. H., K. S. Law, J. A. Pyle, A. Richter, H. Nüß, J. P. Burrows (2004), Using GOME NO₂ satellite data to examine regional differences in TOMCAT model performance, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 4, 2569–2613 www.atmos-chem-phys.org/acpd/4/2569 SRef-ID: 1680-7375/acpd/2004-4-2569
- [37] Spivakovsky, C. M. , J. A. Logan, S. A. Montzka, Y. J. Balkanski, M. Foreman-Fowler, D. B. A. Jones, L. W. Horowitz, A. C. Fusco, C. A. M. Brenninkmeijer, M. J. Prather, S. C. Wofsy and M. B. McElroy (2000), Three-dimensional climatological distribution of tropospheric OH: Update and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 105, 8931–8980
- [38] Spurr, R. J. D., T. P. Kurosu, K. V. Chance (2001), A linearized discrete ordinate radiative transfer model for atmospheric remote sensing retrieval, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 68, 689–735
- [39] von Storch, H., F. W. Zwiers (1999), Statistical Analysis in Climate Research, Cambridge University Press
- [40] Velders, G. J. M., C. Granier, R. W. Portmann, K. Pfeilsticker, M. Wenig, T. Wagner, U. Platt, A. Richter, J. B. Burrows (2001), Global tropospheric NO₂ column distributions: Comparing 3-D model calculations with GOME measurements, *J. Geophys. Res.*, 106, 12,643–12,660
- [41] WMO (1957), Meteorology – A three-dimensional science: Second session of the commission for aerology, *WMO Bulletin*, vol. IV, 4, 134–138
- [42] <http://www.rivm.nl/env/int/coredata/edgar/>
- [43] <http://geiacenter.org/>
- [44] <http://satellite.iup.uni-heidelberg.de>

Danksagung

Bei Prof. Dr. Andreas Wahner möchte ich mich für die Betreuung dieser Arbeit bedanken und für die Möglichkeit, unter seiner Anleitung auch als Physikerin im Fach Meteorologie promovieren zu können. Für die Übernahme des Koreferats geht mein Dank an Prof. Dr. Michael Kerschgens.

Den Satellitengruppen vom Institut für Umweltphysik an der Uni Bremen und vom Institut für Umweltphysik an der Uni Heidelberg möchte ich ganz herzlich für die Bereitstellung ihrer Auswertungen der Satellitenmessungen des GOME-Instrumentes danken und für die gute Zusammenarbeit. Ebenfalls bedanken möchte ich mich bei Chris Elvidge (NGDC, Boulder) für die Bereitstellung der OLS-Aufnahmen der Welt bei Nacht.

Besonderer Dank gebührt Dr. Franz Rohrer für die gute Betreuung und zahlreiche ausgiebige Diskussionen, die stets erhellend und fruchtbar waren und sehr zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ganz herzlich möchte ich mich auch bei Dr. Olaf Stein bedanken: Für die Durchführung der MOZART-Modellrechnungen, Rat und Tat in wissenschaftlichen und anderen Fragen, die kritische Durchsicht dieses Manuskripts und nicht zuletzt die gute Atmosphäre in unserem Büro.

Weiterhin möchte ich mich bei Reimar Bauer bedanken für unzählige Tips bei der Arbeit mit IDL, sowie bei Helga London, die bei Rechner-, Drucker- oder Beamerproblemen stets Zeit hatte.

Bei meiner Mit-Doktorandin Andrea Schaub bedanke ich mich für die rechtzeitige Erinnerung an einige Punkte aus der Promotionsordnung.

Den Mitgliedern der NO_x-Gruppe im Besonderen sowie auch allen weiteren Institutsmitarbeitern möchte ich für die freundliche Arbeitsatmosphäre danken; den „Casinogängern“ auch für die Geduld, wenn ich beim Mittagessen mal wieder als Letzte fertig wurde.

Nicht zuletzt gilt mein Dank meinem Mann Bernd, der mich stets unterstützt hat, während der gemeinsamen Fahrten von Aachen nach Jülich und zurück viel Fachfremdes zu hören bekam, Teile des Manuskripts korrekturgelesen hat, und mich insbesondere während der Zeit meines Zusammenschreibens fürsorglich bekoht hat.

Diese Arbeit wurde durch das Bundesministerium für Forschung und Technologie im Rahmen des deutschen Atmosphärenforschungsprogramms AFO-2000 unter dem Projekt ISOTROP (Integration von Satelliten- und Modelldaten zur Untersuchung der chemischen Zusammensetzung der Luft in der oberen Troposphäre) finanziert, auch dafür möchte ich mich bedanken.

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft



Jül-4160
Januar 2005
ISSN 0944-2952