

# **Parametrisierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln durch Niederschlag**

Zur Erlangung des akademischen Grades eines  
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN  
von der Fakultät für Physik der Universität (TH)  
Karlsruhe

genehmigte

DISSERTATION

von

Dipl.-Met. Rayk Rinke  
aus Delitzsch

Tag der mündlichen Prüfung:  
Referent:  
Korreferent:

04.Juli.2008  
Prof. Dr. Christoph Kottmeier  
Prof. Dr. Sarah Jones



# Zusammenfassung

Die vorliegende Dissertation liefert einen Beitrag zur genaueren Beschreibung des Auswaschens von Aerosolpartikeln infolge der Kollision der Partikel mit sedimentierenden Niederschlagstropfen im Rahmen numerischer Ausbreitungsmodelle. Studien verschiedener Autoren belegen, dass der Auswaschprozess in aktuellen Ausbreitungsmodellen unzureichend genau wiedergegeben wird. Die exakte physikalische Berechnung des Auswaschprozesses im Rahmen von numerischen Ausbreitungsmodellen ist bei der Betrachtung von polydispersen Aerosolpartikel- und Tropfengrößenverteilungen aufgrund der hohen Anforderungen an die Rechenleistung gegenwärtig nicht möglich.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher eine neue Parametrisierung für die Berechnung der zeitlichen Änderung einer Partikelgrößenverteilung infolge des Auswaschens formuliert. Zur Formulierung der Parametrisierungsgleichungen wurde die Momente Methode verwendet, d.h. die Parametrisierungsgleichungen wurden für die zeitliche Änderung der Momente einer polydispersen kontinuierlichen Partikelgrößenverteilung als Funktion der Momente abgeleitet. Berücksichtigt werden hierbei die Kollision beeinflussenden physikalischen Mechanismen Brownsche Partikelbewegung, Trägheitsimpaktion, Interzeption, Thermophorese, Diffusiophorese und die Anziehung infolge elektrischer Kräfte.

Die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Parametrisierung wurde in das regionale dreidimensionale Ausbreitungsmodell COSMO-ART implementiert. Dieses ermöglicht die Simulation der raum-zeitlichen Entwicklung der Partikelkonzentrationsverteilung. Mit dem so erweiterten Modellsystem wird die Wirkung des Auswaschprozesses auf die dreidimensionale Verteilung der Partikelkonzentration untersucht. Anschließend werden die optischen Eigenschaften insbesondere die Extinktion an Aerosolpartikeln behandelt. Auf Basis der simulierten Verteilungen der Extinktionskoeffizienten wird unter Verwendung verschiedener Verfahren die atmosphärische Sichtweite bestimmt. Hier zeigt sich, dass bei der Berechnung der Sichtweite die räumliche Variabilität des Extinktionskoeffizienten berücksichtigt werden muss. Schließlich wird exemplarisch untersucht, wie sich die durch das Auswaschen reduzierte Partikelkonzentration auf die Sichtweite auswirkt.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Einleitung</b> .....	<b>7</b>
<b>2 Grundlagen</b> .....	<b>13</b>
2.1 Das troposphärische Aerosol.....	13
2.2 Die numerische Modellierung von Aerosolprozessen .....	21
2.3 Aerosoldynamische Prozesse .....	25
<b>3 Das Modellsystem COSMO-ART</b> .....	<b>29</b>
3.1 Das Strömungsmodell .....	31
3.2 Die Ausbreitung gasförmiger Luftbeimengungen in COSMO-ART .....	35
3.3 Das Aerosolmodul MADE <sub>SOOT</sub> .....	37
3.4 Das Koordinatensystem.....	42
3.5 Numerische Lösung.....	43
3.6 Anfangszustand und Randbehandlung .....	45
<b>4 Das Auswaschen von Aerosolpartikeln infolge von Niederschlag</b> .....	<b>47</b>
4.1 Die Berechnung des Auswaschprozesses.....	48
4.1.1 Die Partikelverlustrate .....	48
4.1.2 Die Kollisionseffizienz.....	51
4.1.3 Diskussion der Kollisionseffizienz.....	60
4.1.4 Die Größenverteilung der Niederschlagstropfen.....	65
4.2 Modellierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln infolge von Niederschlag.....	67
4.2.1 Eine neue Parametrisierung des Auswaschprozesses.....	67
4.2.2 Realisierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln in einem Boxmodell .....	74
4.2.3 Untersuchung des Auswaschens im dreidimensionalen Modell COSMO-ART ....	93
<b>5 Modellierung ausgewählter optischer Eigenschaften</b> .....	<b>109</b>
5.1 Die Berechnung der Extinktion an Partikeln.....	110
5.2 Die Simulation der Sichtweite.....	115
5.3 Der Einfluss des Auswaschprozesses auf die Sichtweite.....	122
<b>6 Schlussbetrachtungen</b> .....	<b>125</b>

<b>Symbolverzeichnis .....</b>	<b>131</b>
<b>Abbildungsverzeichnis .....</b>	<b>137</b>
<b>Tabellenverzeichnis .....</b>	<b>143</b>
<b>Literaturverzeichnis.....</b>	<b>145</b>

# 1 Einleitung

Wohl eine der derzeit wichtigsten gesellschaftlichen sowie wissenschaftlich interdisziplinären Fragen ist, in wie weit die menschliche Lebensweise die Atmosphäre, das Klima und somit unseren Lebensraum beeinflusst. Die zunehmende Urbanisierung, Industrialisierung und das damit verbunden zunehmende Verkehrsaufkommen verändern infolge anthropogener Emissionen die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre. Global ist nach wie vor ein ungebremster Anstieg der anthropogenen Emissionen zu beobachten. Gründe dafür liegen in der starken Zunahme der Zahl anthropogener Emittenten, welche Emissionsminderungsmaßnahmen vielerorts kompensieren. In den letzten Jahrzehnten wurden große Anstrengungen unternommen, die Beeinflussung der Atmosphäre durch anthropogene Substanzen nachzuweisen und zu quantifizieren (z.B. Kaufmann et al., 2002). Beispielsweise geben Bäumer et al. (2007) Hinweise auf einen direkten Zusammenhang von Wochengängen verschiedener meteorologischer Variablen mit dem Wochenzyklus anthropogener Emissionen.

Lange Zeit beschäftigte sich die Wissenschaft mit den gasförmigen Luftbeimengungen. In der Mitte des letzten Jahrhunderts traten verstärkt Phänomene, wie z.B. der Photosmog oder der saure Regen auf. Nicht zuletzt die aus diesen Phänomenen resultierenden Folgen für die Ökosysteme, die menschlichen Lebensbedingungen und letztendlich für die Volkswirtschaft der Industriestaaten motivierten zu zahlreichen Untersuchungen der atmosphärischen Gasphase: Solche Untersuchungen trugen wesentlich zum heutigen Verständnis der Ausbreitung und Umwandlung gasförmiger Luftbeimengungen bei (z.B. Fiedler, 2000; Vogel et al., 2000; Jakobs et al., 2001; Kiilsholm et al., 2001). Aufgrund des geringen Massenanteils partikelförmiger Luftbeimengungen von  $10^{-9} - 10^{-7}$  wurde der Einfluss der in der Atmosphäre suspendierten flüssigen und festen Partikel, den Aerosolpartikeln, auf die atmosphärischen Prozesse lange Zeit unterschätzt (Horvath, 1996). Inzwischen belegen einige Studien einen signifikanten Einfluss der Aerosolpartikel auf eine Vielzahl chemischer und physikalischer atmosphärischer Prozesse auf regionaler bis hin zur globalen Ebene. Mit dem Ziel, den Einfluss der Partikel auf die Luftqualität sowie die Strahlungsbilanz der Erdatmosphäre im Rahmen der Klimaforschung besser zu verstehen, hat sich die atmosphärische Aerosolforschung zu einem nahezu eigenständigen Forschungsgebiet entwickelt.

Die Modifikation des Strahlungshaushaltes der Atmosphäre durch die Aerosolpartikel lässt sich am einfachsten an der Reduktion der Sichtweite in verschmutzten Luftmassen wahrnehmen. In einer reinen Atmosphäre, in der lediglich Streuung der solaren Strahlung an Luftmolekülen auftritt, beträgt die Sichtweite etwa 340 km. Eine Reduktion der Sichtweite ergibt sich aus der zusätzlichen Streuung und Absorption der Strahlung an Aerosolpartikeln.

Ein atmosphärischer Partikelmassengehalt typischer kontinentaler Aerosolpartikel von  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  reduziert die Sichtweite bis auf wenige 10 Kilometer (Horvath, 1996). Dabei spielen die Größenverteilung und chemische Zusammensetzung der Partikel eine entscheidende Rolle. Im Allgemeinen ist die Extinktion an Aerosolpartikeln am effektivsten, wenn deren Größe vergleichbar mit der Wellenlänge des Lichts ist. Da das Maximum der solaren Strahlung bei  $\sim 550 \text{ nm}$  (grünes Licht) liegt, streuen und absorbieren Partikel mit Durchmessern zwischen ca.  $100 \text{ nm}$  und  $1 \mu\text{m}$  die einfallende solare Strahlung effektiv und dominieren somit die Änderungen der Sichtweite (Hinds, 1982). Neben der Größe der Partikel ist für die Extinktionseigenschaften der Aerosolpartikel deren Hygroskopizität bedeutend, da diese sowohl das Wachstum als auch das Refraktionsverhalten bestimmt (Pruppacher und Klett, 1978).

Die Veränderung des Strahlungshaushaltes, infolge der Wechselwirkungen der Partikel mit der solaren Strahlung, ist unter klimatischen Gesichtspunkten äußerst bedeutsam. Um diese Veränderung im Gleichgewichtszustand des Strahlungshaushaltes der Erde durch externe Faktoren, wie z.B. die Emission von anthropogenen Substanzen, beschreiben zu können, wurde der Begriff des Strahlungsantriebes eingeführt. Die IPCC-Kommission der Vereinten Nationen (Intergovernmental Panel of Climate Change (UN)) definiert den synonymen Begriff „radiative forcing“ wie folgt (IPCC 1996, 2001, 2007):

*„Der Strahlungsantrieb (radiative forcing) des Oberflächen- Troposphärensystems, der durch Störung der Konzentration einer Substanz (z.B. durch die Veränderung der Treibhausgaskonzentrationen) hervorgerufen wird, ist definiert als die Veränderung des Nettostrahlungsflusses im kurz und langwelligen Spektralbereich an der Tropopause, bei konstant gehaltener Oberflächen- und Troposphärentemperatur (Temperaturen des ungestörten Zustands), aber nachdem die Stratosphärentemperatur sich der veränderten Strahlungsbilanz angepasst hat.“*

Die Relevanz der Aerosolpartikel im Bezug auf den Strahlungsantrieb besteht in ihren Extinktionseigenschaften sowie in ihrem Einfluss auf die Wolkenbildung. Die Streuung und Absorption der kurzwelligigen solaren Strahlung an Aerosolpartikeln wird im sogenannten direkten Aerosoleffekt zusammengefasst. Beim direkten Aerosoleffekt kann es in Abhängigkeit vom Verhältnis der gestreuten zur absorbierten Strahlung sowohl zu einer Erwärmung als auch Abkühlung der Atmosphäre kommen. Ruß und Mineralstaub sind jene Aerosolpartikel, die in der Atmosphäre Strahlung absorbieren. Ruß bildet dabei die wichtigste am weitesten verbreitete absorbierende Komponente und bewirkt einen positiven Strahlungsantrieb (z.B. Haywood und Shine, 1995). Sulfatpartikel, organische Partikel und „helle“ Partikel von Biomasse-Verbrennungen führen zu einem negativen Strahlungsantrieb. Für mineralische Stäube ergibt sich je nach Eisengehalt ein positiver oder auch ein negativer Strahlungsantrieb. Studien von z.B. Andreae (1995) ergeben einen anthropogenen Anteil des gesamten, vom atmosphärischen Aerosol verursachten direkten Strahlungsantriebs von bis zu 52 %. Insgesamt wird der durch anthropogene Luftbeimengungen verursachte direkte Strahlungsantrieb derzeit im Bereich von  $-0,1$  bis  $-0,9 \text{ Wm}^{-2}$  abgeschätzt (IPCC, 2007).

Der indirekte Aerosoleffekt umfasst den Einfluss von Aerosolpartikeln auf die Wolkenbildung. Aufgrund ihrer Fähigkeit als Kondensationskeime zu wirken, modifizieren sie die Tropfenanzahl und -größe von Wolken (z.B. Kirkevåg et al., 1999; Ackerman et al., 2000; Haywood und Boucher, 2000; Houghton et al., 2001; Yin et al., 2002). Die mikrophysikalischen und optischen Eigenschaften einer Wolke hängen stark von der Anzahl der Kondensationskeime ab. So verteilt sich bei einer höheren Anzahl zur Tropfenbildung verfügbarer Partikel die gleiche Flüssigwassermenge auf mehr Tropfen mit entsprechend kleineren Radien. Radke et al. (1989) zeigte den Einfluss von anthropogenen Partikelemissionen auf Wolken entlang von Schiffsrouten. Hiernach führen über dem Meer zusätzliche Partikelemissionen zu einer drastischen Erhöhung der Konzentration von Kondensationskeimen. Eine Vielzahl kleiner Tropfen streut die solare Strahlung effektiver als wenige große Tropfen. Bei gleichem Flüssigwassergehalt bedeutet dies, dass eine Wolke mit vielen kleinen Tropfen eine höhere Albedo und eine größere optische Dicke besitzt als eine Wolke mit weniger, dafür aber größeren Tropfen (Ghan, 1996). Der indirekte Aerosoleffekt führt zu einer Erhöhung der Albedo der Wolken und damit der planetaren Albedo und zieht eine Abkühlung nach sich. Der indirekte Strahlungsantrieb wird daher als negativ betrachtet (z.B. Charlson et al., 1992; Kiehl and Briegleb, 1993; Chuang et al., 1997). Wolken aus kleinen Tropfen neigen auch weniger zur Niederschlagsbildung. Ihre durchschnittliche Lebenszeit in der Atmosphäre ist somit länger, was global gesehen bei gleich bleibender Wolkenbildungsrate einen Anstieg des Wolkenbedeckungsgrades zur Folge hat. Zahlreiche Beobachtungen belegen inzwischen den Einfluss der Aerosolpartikel auf den Niederschlag (z.B. Rosenfeld, 1999, 2000).

Twomey (1993) unterscheidet zwei indirekte klimarelevante Effekte der Aerosolpartikel. Als erster indirekter Effekt wird der Einfluss der Partikel auf die optischen Eigenschaften (optische Dicke und Albedo) der Wolken bei konstantem Flüssigwassergehalt bezeichnet, auch Twomey-Effekt genannt. Der zweite indirekte Effekt beinhaltet den Einfluss der Partikel auf den Wolkenbedeckungsgrad und den Flüssigwassergehalt. Der sich aus dem Twomey-Effekt ergebende anthropogene Strahlungsantrieb wird aktuell im Bereich von ca.  $-0,3$  bis  $-1,8 \text{ Wm}^{-2}$  abgeschätzt (IPCC, 2007). Der Wertebereich spiegelt die Unsicherheiten verschiedener globaler Klimamodelle wieder. Viele, für die korrekte Beschreibung notwendigen Prozesse sind nach Art und Umfang unzureichend verstanden und somit nicht genau genug quantifizierbar (IPCC 2007). Dies trifft insbesondere auf den zweiten indirekten Effekt zu. Dieser kann nur mittels vollständig gekoppelter Modellsimulationen abgeschätzt werden. Die Wechselwirkung der Aerosolpartikel mit den meteorologischen Feldern und die sich ergebenden Rückkopplungen werden dabei mit in Betracht gezogen. Solche Modelle sind speziell auf der globalen Skala aufgrund von Verständnislücken in den einzelnen Prozessen und den hohen Anforderungen an die Rechenleistung derzeit nicht verfügbar.

Letztlich werden auch die chemischen Reaktionen in der Atmosphäre durch Veränderung der Strahlungsbedingungen in der Atmosphäre beeinflusst. Aus der von den Aerosolpartikeln ausgehenden Modifikation der atmosphärischen Strahlung folgt ein direkter Einfluss der Partikel auf die Photolysefrequenzen der gasförmigen Luftbeimengungen (Ruggaber et al., 1994; Liao et al., 1999). Dies bedeutet, dass Aerosolpartikel auch eine Auswirkung auf den

Haushalt der gasförmigen Spurenstoffe haben. Dieser kann ebenfalls durch an der Aerosoloberfläche ablaufende heterogene Reaktionen beeinflusst werden. In Frage kommende Prozesse sind dabei z.B. die heterogene Hydrolyse von  $N_2O_5$  an wässrigen Aerosolpartikeln (Dentener und Crutzen, 1993; Riemer, 2002) sowie die Reaktion von  $NO_2$ ,  $HNO_3$ ,  $N_2O_5$  und  $HOONO_2$  an Rußpartikeln (Saathoff et al., 2001). Eine weitere Verbindung zwischen Partikel- und Gasphase ergibt sich daraus, dass ein Großteil der Aerosolpartikel, die so genannten Sekundärpartikel, aus gasförmigen Vorläufersubstanzen gebildet werden. Neue chemische Reaktionswege entstehen auch durch Wechselwirkung der Aerosolpartikel mit Wolken- und Niederschlagstropfen. Partikel- wie gasförmige Substanzen können in den Tropfen gelöst und in der Nassphase oxidiert werden. Evaporieren die Tropfen, bleibt eine veränderte Aerosolverteilung zurück.

Neben der Bedeutung der Aerosolpartikel für die klimatischen und chemischen Prozesse beeinflussen die Partikel die Luftqualität und modifizieren somit die Lebensbedingungen von Pflanzen, Tieren und Menschen. Aktuelle epidemiologische Studien zeigen, dass durch atmosphärische Aerosolpartikel akute und langfristig negative gesundheitliche Effekte verursacht werden können (Pope und Dockery, 1996; Lippmann et al., 2000; Wichmann et al., 2000). Insbesondere der Anteil feiner Partikel mit Durchmessern kleiner als  $2,5 \mu m$  kann nach Ergebnissen von Pope et al. (2002) und Maynard und Maynard (2002) mit in belasteten Gebieten langfristig erhöhten Mortalitätsraten korreliert sein. Dies wird auf das unterschiedliche Depositionsverhalten von Partikeln verschiedener Größe zurückgeführt. Kleine Partikel können bis in die Lunge vordringen, während größere sich bereits im oberen Atemtrakt absetzen. Die genaue Wirkungsweise der Aerosolpartikel auf den menschlichen Organismus bleibt ein aktueller Forschungsgegenstand benachbarter Disziplinen. Aufgrund der Risiken für die menschliche Gesundheit hat die Europäische Kommission die Richtlinie (1999/30 EG) verabschiedet. Diese nennt Grenzwerte für die Partikelmasse, welche aktuell die Basis der operationellen Überwachung der Luftqualität in den Ländern der EU darstellen. Allerdings werden die Grenzwerte derzeit in den meisten Ländern überschritten und es bleibt offen, ob diese dauerhaft eingehalten werden können.

Um Fragestellungen bezüglich der Entwicklung unseres Klimas und der Luftqualität beantworten zu können, muss die atmosphärische Partikelphase in globalen wie regionalen Klima- bzw. Ausbreitungsmodellen berücksichtigt werden. Eine Vernachlässigung der Aerosolpartikel in diesen Modellen ist nach dem heutigen Wissensstand nicht mehr vertretbar. Allerdings ist eine Implementierung der Partikelphase in Eulerschen dreidimensionalen Modellen äußerst schwierig. Im Gegensatz zu Spurengasen, die durch ihre Konzentration beschrieben werden können, müssen bei der Modellierung atmosphärischer Partikel mehrere Parameter betrachtet werden. So spielen außer der chemischen Zusammensetzung die Größenverteilung, die Morphologie, der Phasenzustand und der Mischungszustand des Aerosols eine entscheidende Rolle für sein physikalisches und chemisches Verhalten. Die Vielzahl der zu beschreibenden Parameter stellt sehr hohe Anforderungen an die Rechenleistung. Daher ist eine Behandlung der Partikel in dreidimensionalen Transportmodellen aufgrund der derzeitigen vorhandenen Rechnerkapazitäten eingeschränkt

und teilweise nur stark vereinfacht möglich. Eine große Unsicherheit bei der Modellierung des atmosphärischen Aerosols ergibt sich aus den benötigten natürlichen und anthropogenen Emissionen gas- und partikelförmiger Substanzen. Um eine qualitativ hochwertige Simulation der Konzentrationen und chemischen Zusammensetzung atmosphärischer Partikel zu erreichen, werden ausführliche Informationen über emittierte Luftbeimengungen benötigt. Bei der Simulation von Zukunftsszenarien kommt erschwerend hinzu, dass die Emissionen z.B. von der demographischen und industriellen Entwicklung abhängen, welche nur schwer und ungenau prognostiziert werden können. Die Erfassung von Emissionsdaten, etwa aus der Ableitung von Satellitendaten, ist Gegenstand aktueller Forschungsarbeiten (z.B. Konovalov et al., 2006; Dentener et al., 2006).

Trotz der Fortschritte der letzten Jahre weist auch der derzeitige Wissensstand bei bestimmten Aerosolprozessen immer noch erhebliche Lücken auf. Zum Beispiel stellt die Partikeldeposition eine große Unsicherheit in der Aerosolmodellierung dar (Raes et al., 2000). Speziell die Abscheidung von Aerosolpartikeln aus der Atmosphäre durch die nasse Deposition stellt einen wichtigen Prozess dar durch den die Atmosphäre gereinigt wird. Bei der nassen Deposition wird zwischen der Abscheidung von Aerosolpartikeln, die als Kondensationskeime Wolkentropfen bilden und im Weiteren zu Niederschlagstropfen anwachsen und somit durch das Abregnen von Wolken deponiert werden können, und dem Einsammeln von Aerosolpartikeln durch sedimentierenden Niederschlag unterschieden. Dabei bietet Letzteres die effizienteste Senke für atmosphärische Partikel (Andronache, 2003). Im Rahmen von dreidimensionalen Eulerschen Ausbreitungsmodellen ist eine exakte physikalische Berechnung des Auswaschprozesses bei der Betrachtung von polydispersen Aerosolpartikel- und Tropfengrößenverteilungen derzeit nicht möglich und muss in parametrisierter Form behandelt werden. Vergleiche simulierter mit gemessenen Partikelverlusten zeigen jedoch, dass die verwendeten Parametrisierungen den durch das Auswaschen verursachten Partikelverlust unterschätzen (Slinn, 1983). Diese Diskrepanz stellt die Motivation für diese Arbeit mit dem Ziel der Entwicklung einer neuen Parametrisierung des Auswaschprozesses dar.

Das vorrangige Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Untersuchung des Auswaschens von Aerosolpartikeln infolge der Kollision der Aerosolpartikel mit sedimentierenden Niederschlagstropfen. Der Zugang zu dem Auswaschprozess wird in parametrisierter Form gewählt. Obwohl die Abscheidung atmosphärischer Partikel infolge eines Niederschlagsereignisses von wesentlicher Bedeutung ist, existiert aktuell keine zufrieden stellende Parametrisierung zur Bestimmung ausgewaschener Partikelverteilungen als Funktion der Partikeleigenschaften und der Niederschlagstropfenverteilung. Zwar formulierten Jung et al. (2003) unter Verwendung der Momente der Partikel- und Tropfengrößenverteilung eine Parametrisierung, die diese Abhängigkeiten berücksichtigt, allerdings werden hier die Thermophorese durch Evaporation am Tropfen und Diffusiophorese sowie die Anziehung aufgrund elektrischer Ladung der Partikel und Tropfen vernachlässigt. Studien von Pruppacher und Klett (1988) und Andronache et al. (2003) zeigen jedoch die Bedeutung der phoretischen Prozesse für den Auswaschprozess insbesondere im

Partikelgrößenbereich zwischen  $0,1 \mu\text{m}$  und  $1 \mu\text{m}$ . In diesem Partikelgrößenbereich ist die Hauptmasse des atmosphärischen Aerosols angesiedelt und bestärkt somit die hohe Bedeutung phoretischer Prozesse. Einen Abriss über den derzeitigen Wissensstand bezüglich des Auswaschens von Aerosolpartikeln wird in Kapitel 4 gegeben.

Im Rahmen dieser Arbeit wird eine neue Parametrisierung entwickelt, die zum einen die Abhängigkeiten des Auswaschprozesses von der Aerosolpartikelverteilung und Niederschlagstropfenverteilung und zum anderen zusätzlich zu den die Partikel-Tropfen-Kollision beeinflussenden physikalischen Mechanismen wie Brownsche Partikelbewegung, Trägheitsimpaktion und Interzeption auch den Einfluss der phoretischen und elektrischen Prozesse berücksichtigen kann. Grundlage dieser Parametrisierung stellt die Beschreibung der Partikelverlusten mittels Partikel-Tropfen-Kollisionseffizienzen dar. Um eine die Rechenkapazität betreffend effiziente Berechnung des Auswaschprozesses zu gewährleisten, werden die Parametrisierungsgleichungen als Funktion der Momente der Partikel- sowie Tropfenverteilungsfunktion formuliert. Die in dieser Arbeit gegebene Parametrisierung kann in numerischen dreidimensionalen Ausbreitungsmodellen verwendet werden, um eine bessere und dennoch effiziente Berechnung des Auswaschens von Aerosolpartikeln zu realisieren.

Bezüglich der Untersuchungen des Auswaschprozesses werden zwei Schwerpunkte gesetzt. Der erste Schwerpunkt betrifft die Quantifizierung des Einflusses der phoretischen und elektrischen Prozesse auf den durch das Auswaschen verursachten Partikelverlust. Hierzu wird der Auswaschprozess in einem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Boxmodell untersucht. In den Boxmodellstudien wird auch die Bedeutung der Niederschlags-eigenschaften, insbesondere der Tropfenverteilung, mittels Sensitivitätsuntersuchungen quantifiziert. Im zweiten Schwerpunkt wird der Einfluss des Auswaschprozesses auf die dreidimensionalen atmosphärischen Partikelkonzentrationsfelder mit einem mesoskaligen numerischen Modell untersucht. Hierzu wird die Parametrisierung in das Modellsystem COSMO-ART implementiert, in dem bisher das Auswaschen von Aerosolpartikeln unberücksichtigt blieb. Eine Beschreibung des Modellsystems findet sich in Kapitel 3. Die Ergebnisse der Modellstudien sind in Kapitel 4.2 dargelegt.

Aus den berechneten dreidimensionalen Aerosolverteilungen werden anschließend die optischen Eigenschaften des Aerosols berechnet (Kapitel 5). Die Partikelextinktionskoeffizienten werden online im Modell unter Verwendung einer Parametrisierung nach Bäumer et. al (2004) bestimmt (Kapitel 5.1). Aus der Kenntnis der Extinktionskoeffizienten wird die atmosphärische Sichtweite nach einem Verfahren nach Koschmieder (1924) und nach der von Riemer (2002) gegebenen Methode der Kontrastreduktion eines Objektes bei Entfernung von einem Beobachter bestimmt. Die bestimmten Sichtweiten werden miteinander verglichen um die Stärken und Schwächen der beiden Verfahren zu verifizieren (Kapitel 5.2). Im letzten Teil der Arbeit soll der Einfluss des Auswaschens auf die atmosphärische Sichtweite untersucht werden (Kapitel 5.3).

## **2 Grundlagen**

Im folgenden Kapitel wird das atmosphärische Aerosol hinsichtlich seiner Eigenschaften seiner Veränderungen und seiner Bedeutung für die atmosphärischen Prozesse dargestellt. Weiter sollen die Prozesse, welche die physikalischen und chemischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln verändern, erläutert werden. Diese Prozesse werden als aerosoldynamische Prozesse bezeichnet. Im zweiten Teil des Kapitels wird eine Einführung in die Modellierung der Ausbreitung von Aerosolpartikeln gegeben. Eine umfassende Darstellung der Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols sowie des aktuellen Standes der Wissenschaft in diesem Forschungsbereich würde den Rahmen der vorliegenden Arbeit überschreiten. Es wird daher an dieser Stelle auf eine Reihe von Monographien verwiesen (Seinfeld und Pandis, 1998; Georgii und Warneck, 1999; Harrison und Van Grieken, 1998; Hobbs, 1993).

In der Atmosphäre wird im Allgemeinen zwischen troposphärischem Aerosol bis hin zu etwa 12 km Höhe und dem stratosphärischem Aerosol in Höhen zwischen etwa 12 km und 50 km unterschieden. Oberhalb der Stratosphäre sind die Eigenschaften und die Bedeutung des Aerosols noch weitgehend ungeklärt. Diese Unterscheidung ist durchaus gerechtfertigt, zum einen wegen der unterschiedlichen Charakteristika der beiden Aerosolklassen, zum anderen wird der Austausch der verschiedenen Luftbeimengungen der unterschiedlichen atmosphärischen Schichten durch die Tropopause erschwert und ist im Wesentlichen auf die tropischen Breiten begrenzt. Obwohl das stratosphärische Aerosol eine entscheidende Rolle beim Abbau der Ozonschicht spielt (Solomon et al., 1986; Solomon, 1990; Albritton et al., 1991), werden im Folgenden die für das Klima und die Luftqualität in unserem Lebensraum wesentlich wichtigeren troposphärischen Partikel behandelt.

### **2.1 Das troposphärische Aerosol**

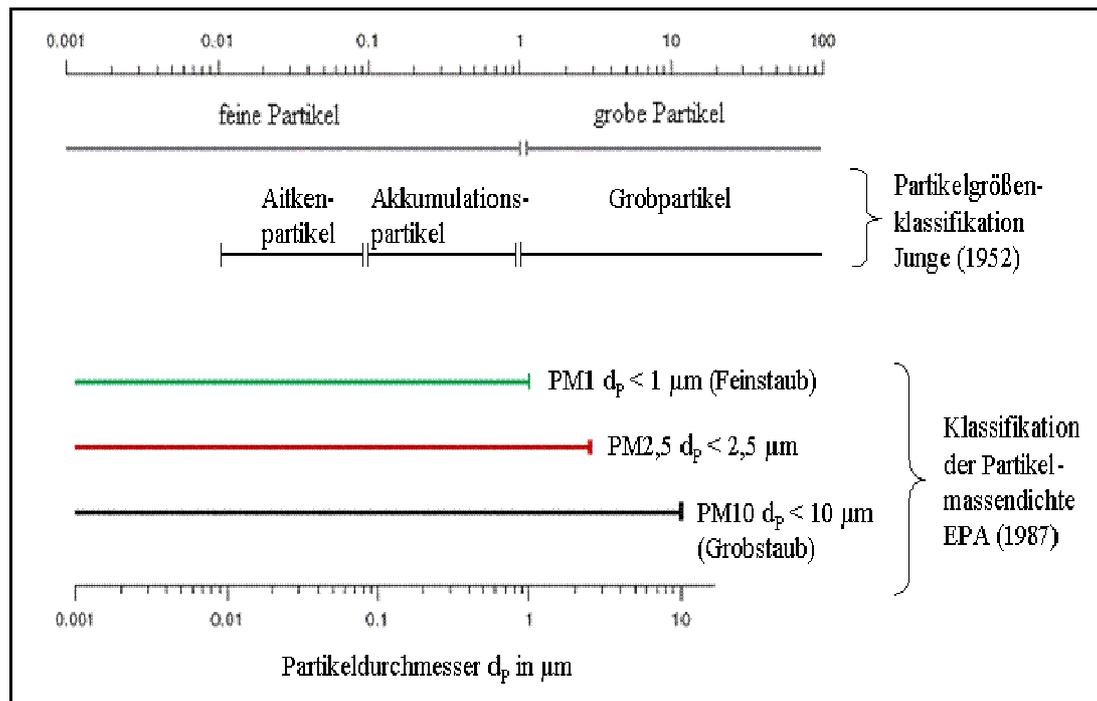
Ein Aerosol ist ein kompliziertes Mehrphasensystem, das sich aus einer Gas- und einer Partikelphase zusammensetzt, wobei Gas- und Partikelphase wiederum aus unterschiedlichen Spezies gebildet werden. So wird die Gasphase im Allgemeinen aus einem Gas- bzw. Gas-Dampf-Gemisch gebildet, während die Partikelphase ein Gemisch fester und flüssiger Partikel unterschiedlicher chemischer Komponenten ist. Im Fall des troposphärischen Aerosols handelt es sich also um luftgetragene Partikel.

Das troposphärische Aerosol ist gekennzeichnet durch eine hohe räumliche und zeitliche Variabilität seiner physikalischen und chemischen Eigenschaften. Diese werden bestimmt

durch den troposphärischen Aerosolkreislauf, der von einer Vielzahl von Quellen gespeist wird und über zahlreiche physikalische und chemische Transformationsprozesse bis zu verschiedenen Depositionsmechanismen reicht. In Gebieten, in denen weder anthropogene noch intensive biogene Quellen existieren, sind Partikelanzahlen zwischen  $10 \text{ cm}^{-3}$  -  $100 \text{ cm}^{-3}$  zu beobachten. Hierzu gehören die Polargebiete (Ito, 1993; Koponen et al., 2003) sowie die Atmosphäre über den Ozeanen (Heintzenberg et al., 2000; Koponen et al., 2002). Die Anzahldichte der Partikel in der kontinentalen Troposphäre liegt typischerweise zwischen  $1000 \text{ cm}^{-3}$  -  $10000 \text{ cm}^{-3}$ , wenngleich die Partikelkonzentrationen von den typischen Quellen der jeweiligen Region geprägt werden. Urbane Gebiete weisen aufgrund zahlreicher anthropogener Quellen die höchsten Anzahldichten auf. Typische Werte liegen hier zwischen  $5000 \text{ cm}^{-3}$  -  $50000 \text{ cm}^{-3}$  (Ruuskanen et al., 2001; Rosenbohm et al., 2005), wobei hier durchaus auch Partikelanzahldichten von mehr als  $10^5 \text{ cm}^{-3}$  auftreten können (Yli-Tuomia et al., 2005).

Eine eindeutige Klassifizierung des troposphärischen Aerosols ist aufgrund seiner Komplexität und Variabilität schwierig. Der geläufigste Parameter zur Charakterisierung der Aerosolpartikel ist der Partikeldurchmesser. Das atmosphärische Partikelspektrum ist über mehrere Größenordnungen des Durchmessers verteilt. Es reicht von Partikeln der Durchmesser einiger weniger Nanometern bis hin zu Partikeln der Durchmesser über  $100 \mu\text{m}$ . Eine Einteilung der troposphärischen Partikel bezüglich des Partikeldurchmessers wurde bereits von Junge (1952b) gegeben. Demnach setzt sich die gesamte Aerosolpopulation aus unterschiedlichen sich überlagernden Einzelpopulationen zusammen. Junge definierte dabei drei Klassen: den Aitkenpartikelbereich von  $0,01 \mu\text{m}$  bis  $0,1 \mu\text{m}$  Durchmesser, den Großpartikelbereich von  $0,1 \mu\text{m}$  bis  $1 \mu\text{m}$  Durchmesser und den Riesenpartikelbereich größer als  $1 \mu\text{m}$  Durchmesser. Whitby und Sverdrup (1973) griffen diese Vorstellung auf und definierten für die Aerosolwissenschaften grundlegende Begriffe. Sie führten für die drei von Junge gegebenen Partikelklassen der verschiedenen Durchmesserbereiche die heute üblichen Bezeichnungen Nukleationspartikelgrößenbereich, Akkumulationspartikelgrößenbereich und Grobpartikelgrößenbereich ein. Die von den Autoren gegebene Einteilung der Aerosolpartikel in drei Klassen gibt die atmosphärischen Verhältnisse in sehr idealisierter Form wieder. Neuere Messungen der Partikelanzahlgrößenverteilung erlauben die Unterscheidung von bis zu fünf Einzelpopulationen im Submikrometerbereich (Covert et al., 1996; Yuskiewicz et al., 1998) und bis zu zwei im Supermikrometerbereich (Heintzenberg et al., 1998).

Mit zunehmendem Interesse an Fragestellungen zur Luftqualität wurden Standards zur Klassifizierung der atmosphärischen Partikelbelastung festgelegt. Im Jahre 1987 führte die US-amerikanische Umweltschutzbehörde EPA (Environmental Protection Agency) den nationalen Luftqualität-Standard für den Partikelgehalt (kurz als PM-Standard bezeichnet) ein, der heute weltweit die Grundlage für die Festlegung von Grenzwerten und der operationellen Überwachung der atmosphärischen Partikelbelastung darstellt.



**Abbildung 2.1:** Gegenüberstellung verschiedener Größeneinteilungen atmosphärischer Aerosolpartikel.

In Abbildung 2.1 ist die Partikelklassifizierung nach dem PM-Standard sowie nach Junge (1952b) dargestellt. Die einzelnen Partikelgrößenbereiche zeichnen sich durch unterschiedliche Quellen und Senken aus. Bezüglich der Partikelbildungsmechanismen wird zwischen Primär- oder auch Dispersionspartikeln und Sekundärpartikeln unterschieden. Primärpartikel können infolge der direkten Emission von flüssigem und festem Material durch Dispersion und Aufwirbelung von der Erdoberfläche in die Atmosphäre gelangen. Verbrennungsprozesse sind eine zweite Gruppe von Partikelbildungsprozessen, die zu Primärpartikeln führen. Sekundärpartikeln werden aus gasförmigen Vorläufersubstanzen gebildet. Dabei werden bestehende Keime durch Kondensation vergrößert oder durch Nukleation völlig neue Partikel gebildet. Die unterschiedlichen Bildungsmechanismen begründen die zu beobachtende breite Partikelgrößenverteilung. Während das Primäraerosol eher zu Partikeln im Grobpartikelbereich führt, sind die durch Verbrennungsprozesse und die aus gasförmigen Vorläufersubstanzen entstandenen Partikel dem submikrometer Bereich zu zuordnen. In Tabelle 2.1 sind die wichtigsten troposphärischen Partikelquellen mit ihren globalen jährlichen Quellstärken aufgeführt (Seinfeld und Pandis, 1998). Die globale jährlich natürlich emittierte Gesamtmasse liegt um etwa eine Größenordnung höher als die anthropogen emittierte Gesamtmasse. Die zeitliche und räumliche Verteilung der Emissionen ist allerdings höchst variabel. Bei einer regional differenzierten Betrachtung der Emissionen können die anthropogenen Emissionen die natürlichen durchaus weit überragen. Während die natürlichen Emissionen stark von den lokalen Gegebenheiten wie Land-See Verteilung, Beschaffenheit der Erdoberfläche, Pflanzenbedeckung und aktuellen meteorologischen Parametern wie Windgeschwindigkeit, Temperatur und solare Einstrahlung abhängig sind, werden die anthropogenen

**Tabelle 2.1:** Jahresgemittelte globale Partikelquellstärken der wichtigsten partikelförmigen Luftbeimengungen (Seinfeld und Pandis, 1998)

Quelle	Bildungs- mechanismus	Globale Emissionen Tg Jahr <sup>-1</sup>
<b>natürlich:</b>		
	Primär	
Mineralstaub		1500
Seesalz		1300
vulkanischer Staub		30
biologisches Material		50
Sulfat aus:	Sekundär	
biogenen Gasemissionen		130
vulkanischem SO <sub>2</sub>		20
organisches Material aus biogenen VOCs		60
Nitrat aus NO <sub>x</sub> Emissionen		30
<b>gesamt natürlich</b>		3100
<b>anthropogen:</b>		
	Primär	
Industriestaub		100
Ruß		10
Sulfat aus:	Sekundär	
SO <sub>2</sub> Emissionen		190
Biomassen Verbrennung		90
organisches Material aus anthropogenen VOCs		50
Nitrat aus NO <sub>x</sub> Emissionen		10
<b>gesamt anthropogen</b>		450

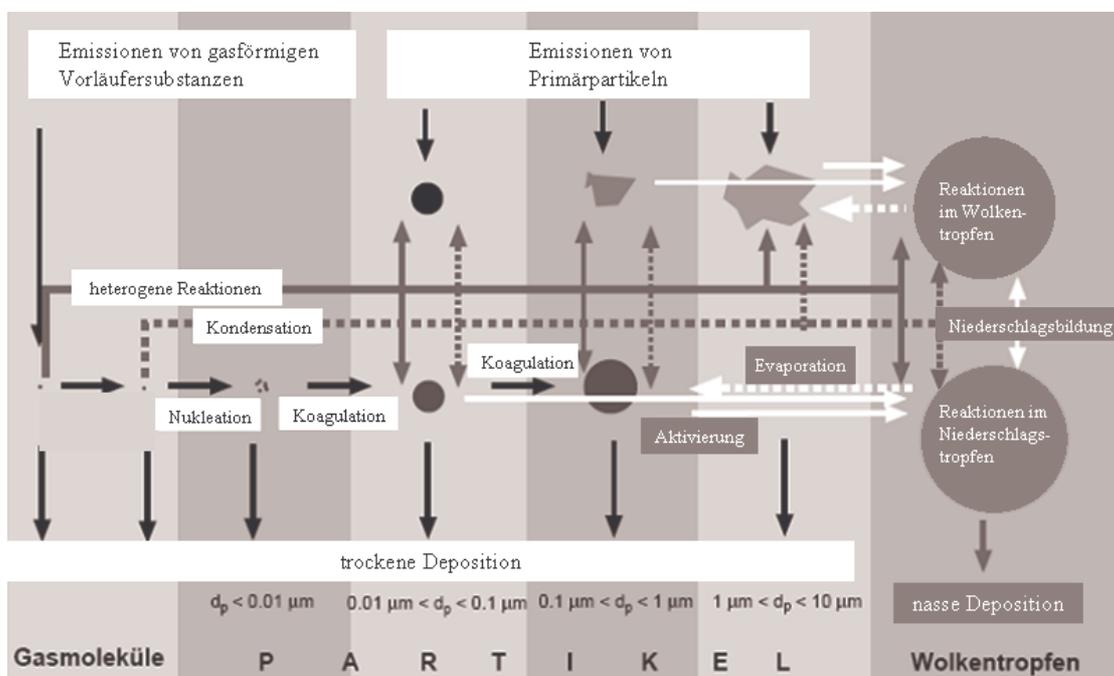
Emissionen von dem Grad der Urbanisierung, Industrialisierung und dem Verkehrsaufkommen maßgeblich bestimmt. So wird beispielsweise die Hauptmasse an natürlichen mineralischen Partikeln in den großen Wüstengebieten der Südhemisphäre und Zentralasiens emittiert, während die Hauptmasse an Seesalzpartikeln über den Ozeanen emittiert wird. Der anthropogene Sulfatanteil im Aerosol, welcher überwiegend sekundär aus SO<sub>2</sub> als Vorläufersubstanz gebildet wird, hat in den letzten Jahrzehnten über dem europäischen Kontinent stark abgenommen was durch die von der EU beschlossenen Emissionsminderungsmaßnahmen zu erklären ist. Im Gegensatz hierzu kann in Ländern wie China und Indien ein drastischer Anstieg des Sulfatanteils aufgrund der stark zunehmenden Industrialisierung in diesen Regionen beobachtet werden.

Die Eigenschaften, die die Partikel bei ihrer Entstehung haben, bleiben im Allgemeinen nicht erhalten. Die in der Atmosphäre suspendierten Partikel sind zahlreichen physikalischen und

chemischen Prozessen ausgesetzt, die ihre Größenverteilung und die chemische Zusammensetzung verändern. Diese Prozesse werden als aerosoldynamische Prozesse bezeichnet. Sie lassen sich im Allgemeinen klassifizieren als (Friedlander, 1977):

- Anreicherung/Abreicherung,
- externe Prozesse (Prozesse, die Partikelflüsse über Systemgrenzen bewirken wie z.B. Konvektion, Diffusion und die Wirkung externer Kräfte),
- interne Prozesse (Prozesse, welche keine Partikelflüsse über Systemgrenzen verursachen wie z.B. Koagulation, Kondensation und Evaporation).

Die das troposphärische Aerosol modifizierenden Prozesse sind in schematischer Form in Abbildung 2.2 dargestellt. Kondensationsprozesse führen zu einem Partikelwachstum und verändern die chemische Zusammensetzung der Partikel. Andererseits können flüchtige Substanzen auch wieder evaporieren und somit Partikelmasse und -radius verringern. Eine Beeinflussung der chemischen Zusammensetzung der Partikel ergibt sich auch aus an der Oberfläche der Partikel ablaufenden heterogenen Reaktionen reaktiver gasförmiger Substanzen (z.B. die heterogene Hydrolyse von  $\text{N}_2\text{O}_5$  an der Oberfläche flüssiger Aerosolpartikel (Riener, 2002). Durch den Aktivierungsprozess haben die Aerosolpartikel einen direkten Einfluss auf die Wolkenbildung. Umgekehrt beeinflussen Wolken ihrerseits die chemischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln, da innerhalb von Wolken zahlreiche chemische Umsetzungen stattfinden. Gasförmige Substanzen wie z.B.  $\text{SO}_2$  können in den Wolkentropfen gelöst und in der Nassphase oxidiert werden. Evaporiert der Tropfen, bleibt eine veränderte Aerosolverteilung zurück.

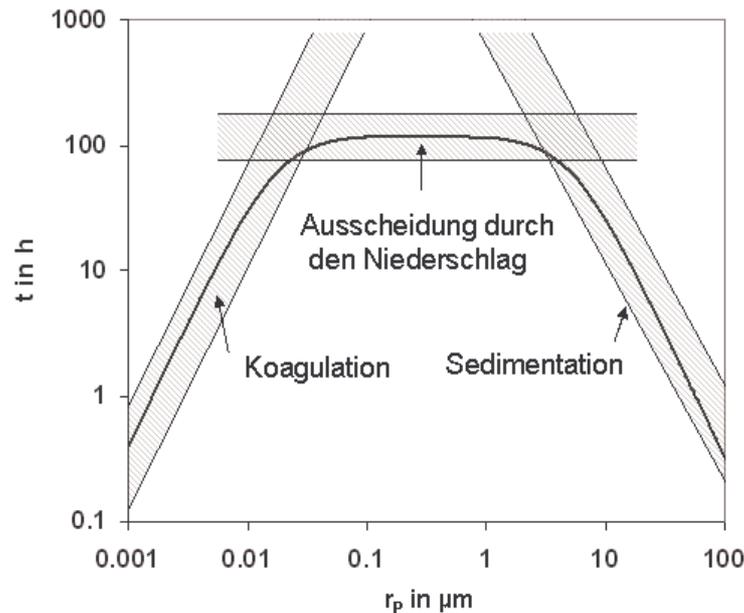


**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung der mikrophysikalischen Prozesse, die die Eigenschaften des troposphärischen Aerosols bestimmen.  $d_p$  bezeichnet hier den Durchmesser der Partikel (nach Raes et al., 2000).

Die Verweilzeit troposphärischer Partikel in der Atmosphäre ist durch Koagulationsprozesse sowie trockene und nasse Depositionsmechanismen limitiert. Die Koagulation aufgrund der Brownschen Partikelbewegung dominiert den Verlust sehr kleiner Partikel. Die Effektivität der Koagulation nimmt in einem Gemisch verschieden großer Partikel mit abnehmendem Partikeldurchmesser schnell zu (Junge, 1952a). Dieser Prozess bewirkt einen Massentransfer von kleinen zu großen Partikeln. Die Koagulation ist eine Senke für die Partikelanzahl. Die Gesamtaerosolmasse bleibt durch diesen Prozess unbeeinflusst. Ein weiterer effektiver Verlustmechanismus, der zu kleinen Partikeldurchmessern hin stark zunimmt und auf der Brownschen Partikelbewegung basiert, ist die Abscheidung der Partikel an Oberflächen (z.B. Biosphäre, Lithosphäre). Dieser Prozess ist Teil der trockenen Deposition. Bei sehr großen Partikeln ist der maßgebliche Verlustprozess die Sedimentation aufgrund der auf die Partikel wirkenden Gravitationskraft im Schwerfeld der Erde. Für Partikel im mittleren Größenbereich zwischen  $0,1 \mu\text{m}$  und  $1 \mu\text{m}$  sind weder Koagulation noch Sedimentation besonders effektiv. Auch die trockene Deposition durch Abscheidung an Oberflächen zeigt hier ein Minimum. Die Partikel sammeln sich in diesem Größenbereich an, weshalb auch vom Akkumulationsbereich gesprochen wird. Die Lebensdauer dieser Partikel wird vor allem durch die nasse Deposition begrenzt. Bei der nassen Deposition wird zwischen zwei Mechanismen unterschieden. Aktivierte und zu Wolkentropfen aufgewachsene Partikel können weiter durch verschiedene niederschlagsbildende Prozesse zu Niederschlagspartikeln anwachsen und zum Boden deponieren oder die Aerosolpartikel können mit sedimentierenden Niederschlagspartikeln kollidieren und werden so mit dem Niederschlag deponiert. Jener Verlustprozess, der aus der Kollision der Aerosolpartikel mit Niederschlagspartikeln resultiert, wird in der Literatur auch als Auswaschen bezeichnet. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Parametrisierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln entwickelt, welche in Kapitel 4 beschrieben wird. Eine grobe empirische Abschätzung der troposphärischen Verweilzeit der Partikel  $t_{\text{par}}$  in Abhängigkeit des Partikelradius  $r_p$  wurde von Jaenicke (1978) gegeben:

$$\frac{1}{t_{\text{par}}} = \frac{1}{\tau_{\text{wet}}} + \frac{1}{\tau_0} \left( \frac{r_p}{R_0} \right)^{-2} + \frac{1}{\tau_0} \left( \frac{r_p}{R_0} \right)^2 \quad (2.1)$$

Hier sind  $\tau_{\text{wet}}$  die partielle Verweilzeit für die nasse Deposition,  $\tau_0 = 1,28 \cdot 10^8 \text{ s}$  und  $R_0 = 0,3 \mu\text{m}$ . In Abbildung 2.3 ist die Verweilzeit der Partikel als Funktion des Radius nach der Näherungsformel (2.1) unter Verwendung eines Mittelwertes für den europäischen Kontinent  $\tau_{\text{wet}}$  von 5 Tagen dargestellt. Da die Hauptmasse der Aerosolpartikel im mittleren Größenbereich angesiedelt ist, stellt die mittlere Aufenthaltszeit für die Ausscheidung durch nasse Deposition von etwa 4 bis 6 Tagen gleichzeitig ein gutes Maß für die Aufenthaltszeit der Aerosolmasse überhaupt dar. Diese relativ kurze Verweilzeit verhindert die Durchmischung der Aerosolmasse in der Atmosphäre bis zum Grad einer homogenen Mischung. Dies erklärt unter anderem die zu beobachtenden starken Konzentrationsunterschiede je nach betrachteter Region. Allerdings ermöglicht die Aufenthaltszeit von einigen Tagen einen großräumigen und



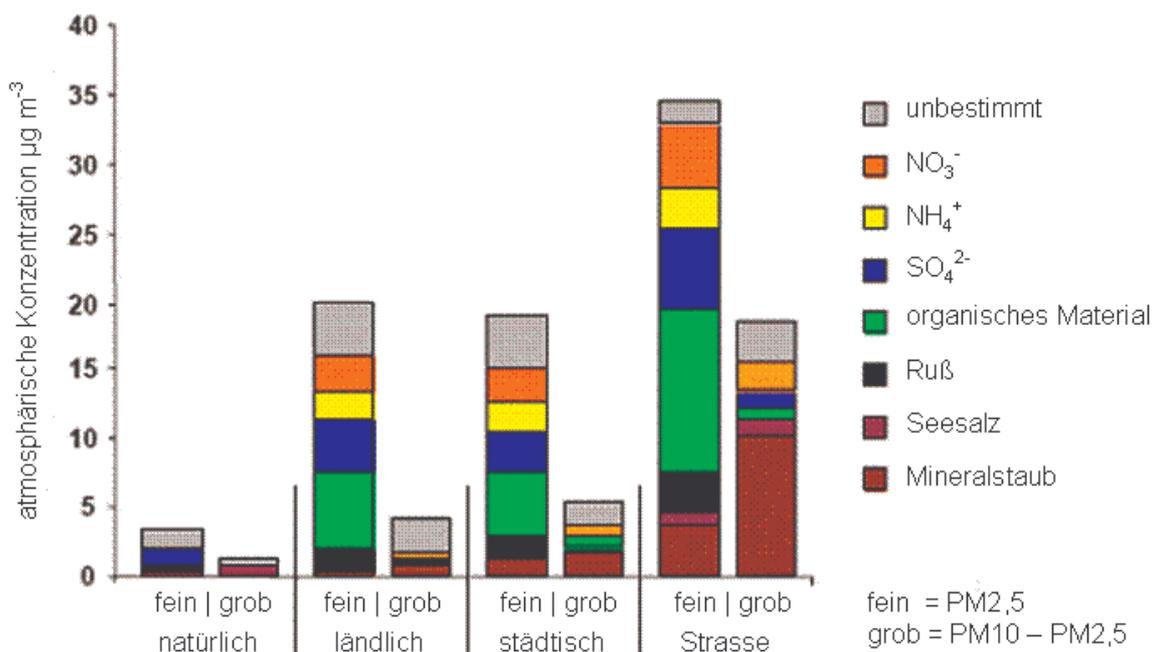
**Abbildung 2.3:** Berechnete troposphärische Verweilzeit von Aerosolpartikeln nach Gleichung (2.1) (schwarze Linie). Die schraffierten Bereiche markieren die in den verschiedenen Größenbereichen dominierenden Verlustprozesse.

interkontinentalen Transport der Aerosolpartikel und erklärt somit die zu beobachtenden, wenn auch in geringen Konzentrationen, anthropogenen Substanzen in ausgewiesenen Reinluftgebieten.

Die chemische Zusammensetzung des troposphärischen Aerosols spiegelt den starken Einfluss der Partikelquellen und die durchlaufenen Umwandlungsprozesse wieder. Während bei den Quellen nach natürlichen und anthropogenen unterschieden werden kann, liegen die Aerosolpartikel in der Troposphäre in einer Mischung verschiedener aus natürlichen und anthropogenen Quellen emittierter Substanzen vor. Dabei ist es äußerst schwierig den anthropogenen Anteil an der Aerosolmasse zu bestimmen. In den letzten Jahren wurden Studien zur Bestimmung des anthropogenen Anteils des Aerosols unter der Verwendung von Satellitendaten, Aerosolmodellen und Informationen aus Industrie, Landwirtschaft sowie Hausbrandpraktiken (Kaufman et al., 2002) erstellt. Bei der Charakterisierung der chemischen Zusammensetzung werden zwei verschiedene Mischungszustände unterschieden. Bei einer vollständig externen Mischung liegen die einzelnen Substanzen getrennt in verschiedenen Partikeln vor. Jedes einzelne Partikel besteht also aus einer reinen Substanz. Im Gegensatz dazu wird unter einer komplett internen Mischung ein Aerosol verstanden, bei dem jedes individuelle Partikel aus mehreren Substanzen besteht und die Massenverhältnisse der verschiedenen Substanzen nicht vom Radius abhängen. In der Troposphäre treten beliebige Zwischenstufen dieser beiden extremen Mischungszustände auf. Dabei führen die Emission von Primärpartikeln und die Nukleation zu einer externen Mischung. Durch Alterungsprozesse werden diese externen Mischungen in interne Mischungen überführt. Dabei können sich die physikalischen Eigenschaften der Partikel signifikant ändern. Dieses sogenannte Mischkernkonzept geht zurück auf Junge (1952a).

Die einzelnen chemischen Bestandteile des troposphärischen Aerosols sind bis heute noch nicht gänzlich bekannt. Eine Vielzahl von Feldstudien zeigte, dass die Zusammensetzung räumlich und zeitlich höchst variabel ist. Die Aerosolmasse im submikrometer Größenbereich besteht überwiegend aus Sulfat, Ammonium, Nitrat, Wasser sowie elementarem Kohlenstoff (Ruß) und organischen Substanzen. Wobei hier meist der vorwiegend aus Schwefeldioxid als Vorläufersubstanz sekundär gebildete Sulfatanteil dominiert. In ländlichen Gebieten ist oftmals ein erhöhter Ammoniumgehalt zu beobachten, bedingt durch landwirtschaftliche Aktivitäten. Das organische Material besteht aus einer Vielzahl unterschiedlicher Komponenten aus direkt emittierten und sekundär aus organischen Vorläufersubstanzen gebildeten Partikeln, wobei Polymere als zentraler Bestandteil klassifiziert wurden (Kalberer et al., 2004). Der organische Massenanteil liegt zwischen 10 % und 70 % der Gesamtmasse des feinen Aerosols (Turpin et al., 2000). Einen besonderen Stellenwert hat das Rußaerosol, da es die derzeit einzig bekannte Aerosolkomponente ist, die signifikant die solare Strahlung absorbiert.

Die chemische Zusammensetzung der Grobpartikel wird hauptsächlich von den Bestandteilen der direkt emittierten Partikel bestimmt. So werden hier Substanzen wie Natrium und Chlor aus den Emissionen von Seesalzpartikeln, Eisen, Silizium Kalzium und Aluminium aus der Emission von Erdkrustenmaterialien (Mineralstaub) sowie biogenes Material wie z.B. Pollen und Bakterien gefunden. Abbildung 2.4 zeigt die typische chemische Zusammensetzung sowie die Massenkonzentration der einzelnen Substanzen des feinen und groben troposphärischen Aerosols verschiedener Regime (nach Warnke, 2006).



**Abbildung 2.4:** Chemische Zusammensetzung und Massenkonzentration troposphärischer Aerosolpartikel in verschiedenen Regimen (nach Warnke, 2006).

## 2.2 Die numerische Modellierung von Aerosolprozessen

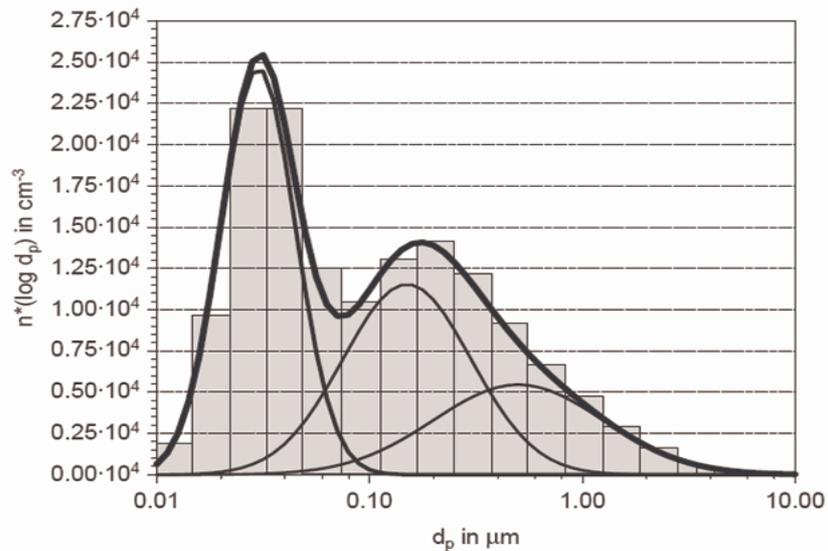
Das zunehmende Interesse am atmosphärischen Aerosol aufgrund seiner Bedeutung für verschiedene meteorologische und atmosphärenchemische Prozesse führte in den letzten Jahrzehnten zur Entwicklung einer Reihe von numerischen Modellen, welche die Simulation der Ausbreitung des Aerosols und der Wechselwirkungen zwischen Gasphase, Partikelphase und dem Zustand der Atmosphäre ermöglichen. Während die Beobachtungen atmosphärischer Luftbeimengungen auf wenige Parameter beschränkt und räumlich und zeitlich limitiert sind, ermöglichen aktuelle numerische Modelle die Untersuchung vieler Eigenschaften der Partikel sowie des Einflusses des Aerosols auf verschiedene atmosphärische Prozesse. Dabei kann das atmosphärische Aerosol auf der regionalen bis hin zur globalen Skala in sehr hohen räumlichen und zeitlichen Auflösungen simuliert werden. Der heutige Stand der Modelle ermöglicht die Simulation spezieller Episoden wie auch die Entwicklung des Aerosols auf langen (klimatologischen) Zeitskalen. Die ersten dreidimensionalen Eulerschen Aerosolausbreitungsmodelle basierten auf vorher simulierten meteorologischen Feldern, mit denen dann die Ausbreitungssimulationen angetrieben wurden. Eine Simulation der Wechselwirkungen zwischen Aerosol und dem Zustand der Atmosphäre war mit diesen Modellen nicht möglich. Um den aktuellen wissenschaftlichen Fragestellungen in der Klimamodellierung, der Luftqualitätsmodellierung sowie der numerischen Wetter- und der Luftqualitätsvorhersage zu genügen, ist eine vollständig gekoppelte Betrachtung der Wechselwirkungen zwischen meteorologischen Prozessen, der Gasphasenchemie, der Partikeldynamik und der Partikelchemie notwendig. Obwohl derzeit einige Partikelausbreitungsmodelle existieren, basieren nur wenige auf einer so genannten vollständigen online-gekoppelten Formulierung aller im Modell betrachteten dynamischen und chemischen Prozesse. Ausbreitungsmodelle werden als Online-Modelle bezeichnet, wenn zusätzlich zu den benötigten prognostischen Gleichungen zur Simulation meteorologischer Felder auch prognostische Gleichungen für die Ausbreitung von Luftbeimengungen und die chemischen Umwandlungen für jeden Zeitschritt vom Modell numerisch integriert werden. Im Gegensatz dazu stehen Offline-Modelle. Hier basiert die Simulation der Ausbreitung auf im Voraus beschriebenen meteorologischen Feldern. Die Simulation der Wechselwirkungen inklusive der auftretenden Rückkopplungen zwischen Aerosol und Meteorologie ist nur mit Online-Modellen realisierbar.

Um die raum-zeitliche Änderung einer Aerosolpopulation mit einem numerischen Modell beschreiben zu können, müssen zum einen die mikrophysikalischen und chemischen Transformationsprozesse und zum anderen die Größenverteilung des Aerosols in einer, was die Rechenzeit betrifft, effizienten Weise formuliert werden. Die derzeit am weitesten verbreitete Methode der Modellierung der Änderung der Aerosolgrößenverteilung ist die so genannte sektionale Technik (Dabdub et al., 1998; Sun und Wexler, 1998). Hier wird die Partikelgrößenverteilung in eine Reihe von Intervallen geteilt, innerhalb derer eine konstante Verteilungsfunktion angenommen wird. Das Modell löst dann für jedes Intervall die Gleichungen für z.B. die Änderung der Partikelanzahl im Intervall oder die Änderung der Partikelmasse im Intervall (Gelbard et al., 1980). Die Qualität der Lösung, allerdings auch der

Rechenaufwand, steigt dabei mit der Anzahl der verwendeten Intervalle. Gelbard und Seinfeld (1980) erweiterten diese Technik um die Behandlung der chemischen Zusammensetzung der Partikel. Die ersten Modelle, basierend auf der sektionalen Technik, verwendeten während einer Simulation feste Intervalle (Pilinis und Seinfeld, 1988). Durch die Verwendung sich an die während einer Simulation verändernde Partikelgrößenverteilung anpassenden Intervalle (Jacobsen, 1997a,b; Kim und Seinfeld, 1990) und die Verwendung verschiedener Intervalle für z.B. die Anzahlgrößenverteilung und die Massenverteilung (2-Momentenschema, Harrington und Kreideweis, 1998) konnte dieses Verfahren weiter optimiert werden.

Eine weitere Klasse von Aerosolmodellen nutzt die so genannte Momentenmethode. Hierbei werden die zeitliche Entwicklung spezieller integraler Momente der Partikelgrößenverteilung berechnet. Die Momente der Partikelgrößenverteilung stehen im Bezug zu charakteristischen Partikeleigenschaften (z.B. Gesamtpartikelanzahl, Gesamtpartikeloberfläche und Gesamtpartikelmasse). Diese Technik basiert auf der Annahme, dass die Aerosolpartikel kontinuierlich verteilt sind. Die Momentenmethode ermöglicht die Berechnung der charakteristischen Partikeleigenschaften ohne detaillierte Kenntnis der Partikelgrößenverteilung. Ein auftretendes Problem bei der Verwendung dieser Methode ist die Formulierung eines geschlossenen Gleichungssystems für die Momente der Partikelgrößenverteilung. Das Problem kann gelöst werden, in dem davon ausgegangen wird, dass die Aerosolverteilung sich aus einer Überlagerung verschiedener Einzelpopulationen, welche mittels analytischer Verteilungsfunktionen (z.B. einer Lognormalverteilung) beschrieben werden können, ergibt. Dieser so genannten modalen Technik liegt die Tatsache zugrunde, dass Aerosolverteilungen häufig aus der Überlagerung verschiedener Quellen resultieren. Die Bezeichnung modale Technik wurde von Whitby und Sverdrup (1973) geprägt. Die verwendeten, die Gesamtverteilung beschreibenden Einzelverteilungen, werden in diesem Zusammenhang in der englischsprachigen Literatur als „Modes“ bezeichnet (Seinfeld und Pandis, 1998; Jaenicke, 1988). Allgemein ist in der Mathematik der Begriff Mode für Einzelfunktionen gebräuchlich, durch deren Überlagerung eine Funktion approximiert wird. In der deutschsprachigen Literatur ist es ebenfalls üblich den Begriff „Mode“ für die Einzelverteilungen zu verwenden (Ackermann, 1997; Schell, 2000; Winkler, 2000). Ein Konflikt bezüglich der Nomenklatur ergibt sich dadurch, dass der Begriff „Mode“ oder „Modalwert“ in der Statistik eigentlich den Maximalwert einer Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung bezeichnet. Nun sind die Aerosolgrößenverteilungen ebenfalls Dichteverteilungen, und so würde sich als deutscher Begriff für Mode „Dichtemittel“ oder „Dichteschwerpunkt“ anbieten (Riemer, 2002). Um sich nicht von der gängigen Bezeichnung abzusetzen, wird jedoch in der vorliegenden Arbeit ebenfalls der Begriff Mode verwendet.

Die bei der modalen Technik verwendeten Einzelpopulationen unterscheiden sich dabei durch den jeweiligen Partikelgrößenbereich und/oder die chemische Zusammensetzung. Für die Formulierung der Änderung der Parameter der verwendeten Verteilungsfunktion für die einzelnen Moden wird dann die Momentenmethode genutzt (Wilck, 1998). Da die meisten Verteilungsfunktionen nur wenige Parameter zur Charakterisierung benötigen, ist eine relativ geringe Anzahl von Differentialgleichungen erforderlich, um die Änderung der Gesamtverteilung zu beschreiben, sofern wenige Einzelverteilungen ausreichen, um die Gesamtgrößenverteilung anzunähern. Eine ausführliche Gegenüberstellung der sektionalen



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung der Näherung einer Aerosolpartikelpopulation (dicke schwarze Linie) mittels der modalen Technik unter Verwendung dreier überlagernder Einzelpopulationen (dünne schwarze Linien) und der sektionalen Technik (graue Säulen) nach Riemer (2002).

und der modalen Technik geben Whitby et al. (1991). In Abbildung 2.5 ist in schematischer Form die näherungsweise Beschreibung einer Partikelgrößenverteilung mittels der beiden verschiedenen Methoden dargestellt.

Die ersten dreidimensionalen online gekoppelten Aerosolausbreitungsmodelle wurden von Pilinis und Seinfeld (1988) in den USA und von Baklanov (1988) in der damaligen Sowjetunion entwickelt. Während Pilinis und Seinfeld das Aerosol in drei Sektionen betrachteten, nutzte Baklanov eine einfache Bulkformulierung zur Beschreibung des Aerosols. Ein umfassendes Modellsystem wurde von Jacobson (2001a) entwickelt. Das Modellsystem GATOR-GCMM vereinigt das globale Modell GATORG (Jacobson, 2000; Jacobson 2001c) und das regionale Modell GATORM (Jacobson et al., 1996; Jacobson, 1997a; Jacobson, 1997b) zu einem genesteten Modell, in dem Gas- und Partikelphase sowie meteorologische Prozesse und Strahlungsprozesse vollständig gekoppelt betrachtet werden. Allerdings wird hier in dem meteorologischen Modell auch auf der kleinsten Skala einem hydrostatischen Ansatz gefolgt.

Der Großteil der Aerosolausbreitungsmodelle basiert auf dem sektionalen Ansatz (Lurmann et al., 1997; Meng et al., 1998; Sun und Wexler, 1998; Wexler et al., 1994; Liao und Seinfeld, 2005). Binkowski und Shankar (1995) folgen mit ihrem Modell dem modalen Ansatz. In all diesen Modellen steht die Modellierung der Gas- und Partikelphase für das Gebiet von Nordamerika im Mittelpunkt. Grell et al. (2005) und Fast et al. (2006) entwickelten mit dem WRF/Chem ein Modell, mit dem Luftqualitätsvorhersagen ermöglicht werden.

Ackermann et al. (1998) betreiben im Rahmen des EURAD-Projekts Ausbreitungsstudien und Luftqualitätsvorhersagen für Europa. Ein weiteres europäisches Ausbreitungsmodell, das die Vorhersage atmosphärischer Luftbeimengungen ermöglicht, ist das Modell CHIMERE

(Bessagnet et al., 2004). Ein Modell für die Partikelausbreitung über dem asiatischen Kontinent wurde von Uno et al. (2001, 2003) erstellt. Für Anwendungen auf dem australischen Kontinent entwickelten Manins et al. (2007) ein Modell. Einen Vergleich verschiedener aktueller nordamerikanischer Ausbreitungsmodelle ist bei Zhang (2008) zu finden. In Tabelle 2.2 wird ein Überblick über aktuelle Aerosolausbreitungsmodelle gegeben.

**Tabelle 2.2:** Überblick ausgewählter mesoskaliger und globaler nordamerikanischer und europäischer Ausbreitungsmodelle (Stern et al., 2008; Zang, 2008).

<b>Modellsystem (Skala)</b>	<b>meteorologisches Modell</b>	<b>Aerosol- repräsentation</b>	<b>Referenz</b>
<b>Nordamerika:</b> WRF/Chem (meso)	WRF	sektional oder modal (8 Sektionen oder 3 Moden)	Grell et al. (2005); Fast et al. (2006); Zhang et al. (2004)
CAM3 (global)	CCM2, CCM1	modal (4 Moden)	Rasch et al. (1995, 2006)
MIRAGE2 (global)	CAM2, CCM2	modal (4 Moden) oder eine variable Einzelverteilung	Ghan et al. (2001a, b) Zhang et al. (2002) Easter et al. 2004
GATOR- GCMOM (global-urban)	MMTD, GCMM, GCMOM	sektional (17-30 Sektionen)	Jacobson (1994, 1997a, b, 2001c, 2002), Jacobson et al. (2004)
<b>Europa:</b> COSMO-ART (meso)	COSMO	modal (11 Moden + Pollen)	Vogel B. et al. (2006) Vogel H. et al. (2007)
LM-MUSCAT (meso)	LM	modal (2 Moden)	Wolke et al. (2004a, b)
CHIMERE (meso)	MM5	sektional (6 Klassen)	Bessagnet et al. (2004)
EURAD (meso)	MM5	modal (3 Moden)	Memmesheimer et al. (2004)
LOTOS- EUROS (meso)	aus Beobachtungen abgeleitet	modal (2 Moden)	Schaap et al. (2007)
REM- CALGRID (meso)	aus Beobachtungen abgeleitet	modal (2 Moden)	Stern et al. (2006), Beekmann et al. (2007)

## 2.3 Aerosoldynamische Prozesse

Als aerosoldynamische Prozesse werden Prozesse bezeichnet, welche die physikalischen und chemischen Eigenschaften von Aerosolen verändern. Das Problem einer Berechnung der Einflüsse der aerosoldynamischen Prozesse auf das Aerosolpartikel-spektrum ergibt sich aus der Größenverteilung der Partikel über mehrere Größenordnungen. Eine diskrete Formulierung ist daher in der Praxis selten anwendbar. Da die Aerosolpartikel im Allgemeinen aus einer großen Anzahl von Monomeren zusammengesetzt sind, kann die Anzahldichte einer Aerosolpopulation durch eine kontinuierliche Verteilungsfunktion  $n(d_p)$  beschrieben werden:

$$n(d_p)dd_p = \text{Anzahl der Partikel pro Volumeneinheit Luft} \\ \text{im Größenbereich zwischen } d_p \text{ und } d_p+dd_p.$$

Die Gesamtanzahldichte  $N_p$  der Partikel ergibt sich dann aus der Integration von 0 bis  $\infty$ :

$$N_p = \int_0^{\infty} n(d_p)dd_p \quad (2.2)$$

Unter der Annahme kugelförmiger Partikel lassen sich Größenverteilungsdichtefunktionen für die Oberfläche  $n_s(d_p)$  und für das Volumen  $n_v(d_p)$  definieren. Die Gesamtoberflächendichte  $S_p$  und die Gesamtvolumendichte  $V_p$  ergeben sich dann analog der Gesamtanzahldichte durch Integration über die Verteilung:

$$S_p = \int_0^{\infty} n_s(d_p)dd_p = \int_0^{\infty} \pi d_p^2 n(d_p)dd_p \quad (2.3)$$

$$V_p = \int_0^{\infty} n_v(d_p)dd_p = \int_0^{\infty} \frac{\pi}{6} d_p^3 n(d_p)dd_p \quad (2.4)$$

Definiert man das k-te Moment  $M_k$  der Verteilung  $n(d_p)$

$$M_k = \int_0^{\infty} d_p^k n(d_p)dd_p \quad (2.5)$$

so ist die Gesamtanzahldichte gleich dem nullten Moment und die Aerosoloberflächendichte sowie die Aerosolvolumendichte dem Zweiten bzw. dem Dritten Moment der Verteilung proportional:

$$N_p = M_0 \quad (2.6)$$

$$S = \pi M_2 \quad (2.7)$$

$$V = \frac{\pi}{6} M_3 \quad (2.8)$$

In der Literatur existieren verschiedene aus semi-empirischen Ansätzen resultierende Verteilungsdichtefunktionen zur Charakterisierung der Größenverteilung von Aerosolpartikeln. Eine häufig verwendete Approximation des Aerosolpartikelspektrums wurde von Whitby (1978) vorgeschlagen. Demnach kann eine Aerosolpartikelpopulation durch mehrere sich überlagernde logarithmische Normalverteilungen angenähert werden. Die Größenverteilungsdichtefunktion für die Partikelanzahl eines Modes L ist somit definiert als:

$$n_L(d_p) = \frac{N_{P,L}}{\sqrt{2\pi \ln \sigma_{g,L}}} \exp\left(-\frac{(\ln d_p - \ln d_{g,L})^2}{2 \ln^2 \sigma_{g,L}}\right) \frac{1}{d_p}. \quad (2.9)$$

Hier bedeuten  $N_{P,L}$  die Gesamtanzahldichte der Partikel im Mode L,  $\sigma_{g,L}$  die geometrische Standardabweichung der Verteilung und  $d_{g,L}$  der mittlere geometrische Durchmesser. Für die dimensionslose geometrische Standardabweichung gilt:

$$\ln \sigma_{g,L} = \left( \frac{1}{N_{P,L}} \int_0^\infty n_L(d_p) (\ln d_p - \ln d_{g,L})^2 dd_p \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (2.10)$$

In der Praxis wird oftmals die Verteilung als Funktion des Logarithmus des Durchmessers dargestellt, da der Wertebereich für den Partikeldurchmesser über mehrere Zehnerpotenzen variiert:

$$n_L^*(\ln d_p) = \frac{N_{P,L}}{\sqrt{2\pi \ln \sigma_{g,L}}} \exp\left(-\frac{(\ln d_p - \ln d_{g,L})^2}{2 \ln^2 \sigma_{g,L}}\right). \quad (2.11)$$

Der Vorteil der Approximation des Partikelspektrums mit den angeführten Lognormalverteilungen liegt unter anderem darin, dass die Partikelpopulation nicht nur bezüglich der Anzahldichte durch die Lognormalverteilungen approximiert werden kann. Die Approximation gilt ebenfalls für die Verteilungsdichtefunktion der Oberfläche und des Volumens der einzelnen Moden. Die geometrische Standardabweichung bleibt dabei für alle drei Verteilungen erhalten. Für die Mediandurchmesser der Oberflächendichte- und Volumendichteverteilung gilt ausgehend vom mittleren geometrischen Durchmesser  $d_{g,L}$  für die Anzahldichteverteilung:

$$\ln d_{g,L,k} = \ln d_{g,L} + k \ln^2 \sigma_{g,L} \quad (2.12)$$

mit  $k = 2$  für die Oberflächendichteverteilung und  $k = 3$  für die Volumendichteverteilung. Die zeitliche Änderung der Größenverteilung des Aerosols kann nun aus der zeitlichen Änderung der die Lognormalverteilung festlegenden drei Parameter  $N_{P,L}$ ,  $d_{g,L}$  und  $\sigma_{g,L}$  für die einzelnen Moden berechnet werden. Dabei besteht das Problem, dass bei der gleichzeitigen Betrachtung von mehreren Prozessen (z.B. der Koagulation und der Diffusion) die

Gleichungen für die zeitliche Änderung der Parameter  $d_{g,L}$  und  $\sigma_{g,L}$  nicht formuliert werden können (Whitby et al., 1991). Dieses Problem kann umgangen werden, in dem ausgenutzt wird, dass die drei Parameter der Verteilungsfunktion aus der Berechnung von drei beliebigen Momenten der Verteilung bestimmt werden können. Wird die Lognormalverteilung nach Gleichung (2.11) in die Gleichung für die Momente (2.5) für die Verteilungsfunktion eingesetzt, so ergibt sich für das k-te Moment  $M_{k,L}$  der Lognormalverteilung eines Modes L:

$$M_{k,L} = \int d_p^k n_L^*(\ln d_p) d(\ln d_p) = N_{p,L} d_{g,L}^k \exp\left(\frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_{g,L}\right) \quad (2.13)$$

Sind drei beliebige Momente der Verteilung bekannt, beispielsweise das Nullte, Zweite und Dritte Moment, so können die drei Parameter der Verteilungsfunktion berechnet werden aus:

$$N_{p,L} = M_{0,L} \quad (2.14)$$

$$d_{g,L} = M_{0,L}^{-5/6} M_{2,L}^{3/2} M_{3,L}^{-2/3} \quad (2.15)$$

$$\ln^2 \sigma_{g,L} = \frac{1}{3} \ln\left(M_{0,L} M_{3,L}^2 / M_{2,L}^3\right). \quad (2.16)$$

Das Problem der Berechnung der zeitlichen Änderung der Größenverteilung der Aerosolpartikel wird nun also in die Berechnung der zeitlichen Änderung der Momente der Verteilungsfunktion überführt.

Der Einfluss der aerosoldynamischen Prozesse auf die das physikalische Verhalten von Aerosolen charakterisierende Größenverteilung kann mathematisch über die kontinuierliche Aerosoldynamikgleichung beschrieben werden. Nach Friedlander (1977) ist die Aerosoldynamikgleichung für eine kontinuierliche Verteilungsfunktion  $n(v_p)$ , wobei hier die unabhängige Variable  $v_p$  das Volumen eines Partikels ist und

$$n(v_p)dv_p = \text{die Anzahl der Partikel pro Volumeneinheit Luft} \\ \text{mit einem Partikelvolumen zwischen } v_p \text{ und } v_p + dv_p$$

gegeben durch:

$$\begin{aligned}
\frac{\partial n(\mathbf{v}_p)}{\partial t} = & \underbrace{-\nabla \cdot \mathbf{v} n(\mathbf{v}_p)}_{\text{Advektion}} - \underbrace{\nabla \cdot \mathbf{c}_p(\mathbf{v}_p) n(\mathbf{v}_p)}_{\text{äußere Kräfte}} + \underbrace{\nabla \cdot D_{\text{PAR}}(\mathbf{v}_p) \nabla n(\mathbf{v}_p)}_{\text{Diffusion}} \\
& + \underbrace{\frac{1}{2} \int_0^{v_p} \beta(\mathbf{v}_p - \tilde{\mathbf{v}}_p, \tilde{\mathbf{v}}_p) n(\mathbf{v}_p - \tilde{\mathbf{v}}_p) n(\tilde{\mathbf{v}}_p) d\tilde{\mathbf{v}}_p - \int_0^\infty \beta(\mathbf{v}_p, \tilde{\mathbf{v}}_p) n(\mathbf{v}_p) n(\tilde{\mathbf{v}}_p) d\tilde{\mathbf{v}}_p}_{\text{Koagulation}} \\
& + \underbrace{\left[ \frac{\partial}{\partial t} n(\mathbf{v}_p) \right]}_{\text{Partikelwachstum}} + \underbrace{\dot{n}_s(\mathbf{v}_p)}_{\text{Quellen / Senken}}
\end{aligned} \tag{2.17}$$

Hier bedeuten dick gedruckte Symbole Vektoren.  $\mathbf{v}$  ist die Strömungsgeschwindigkeit der Luft,  $\mathbf{c}_p(\mathbf{v}_p)$  die Driftgeschwindigkeit der Partikel aufgrund äußerer Kräfte,  $D_{\text{Par}}(\mathbf{v}_p)$  der Diffusionskoeffizient des Partikels,  $\beta$  die Koagulationsfunktion und  $\dot{n}_s(\mathbf{v}_p)$  der Gewinn oder Verlust an Partikeln durch Quellen und Senken.

Aus der Aerosoldynamikgleichung (2.17) kann eine Gleichung für die zeitliche Änderung der Momente abgeleitet werden. Hierzu muss die Gleichung in Abhängigkeit des Durchmessers  $d_p$  ausgedrückt, mit  $d_p^k$  multipliziert und über  $d_p$  integriert werden (Friedlander, 1977). Für die zeitliche Änderung der Momente  $M_k$  ergibt sich dann, wobei hier der Index  $L$  für die einzelnen Moden an dieser Stelle ausser Acht gelassen wird:

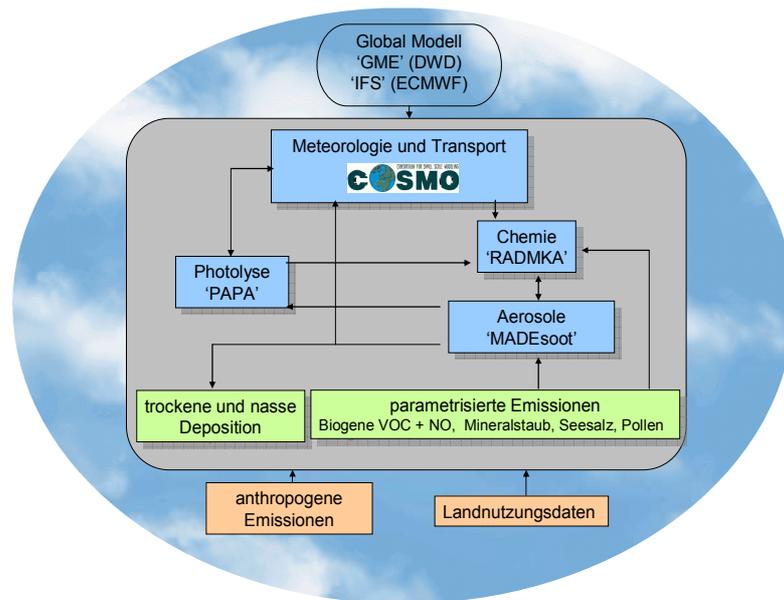
$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t} M_k = & -\nabla \cdot \mathbf{v} M_k - \nabla \cdot \int_0^\infty d_p^k c(d_p) n(d_p) dd_p + \nabla \cdot \int_0^\infty d_p^k D_{\text{par}}(d_p) \nabla n(d_p) dd_p \\
& + \frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty (d_{p1}^3 + d_{p2}^3)^{k/3} \beta(d_{p1}, d_{p2}) n(d_{p1}) n(d_{p2}) dd_{p1} dd_{p2} \\
& - \frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty (d_{p1}^k + d_{p2}^k) \beta(d_{p1}, d_{p2}) n(d_{p1}) n(d_{p2}) dd_{p1} dd_{p2} \\
& + \int_0^\infty \frac{dd_p^k}{dv_p} \frac{d}{dt} (v_p) n(d_p) dd_p + \int_0^\infty d_p^k \dot{n}_s(d_p) dd_p
\end{aligned} \tag{2.18}$$

Für sphärische Partikel gilt hier:

$$\frac{dd_p^k}{dv_p} = \frac{6}{\pi} \frac{dd_p^k}{dd_p^3} = \frac{2k}{\pi} d_p^{k-3} \tag{2.19}$$

### 3 Das Modellsystem COSMO-ART

Die Simulationen im Rahmen dieser Arbeit wurden mit dem am Institut für Meteorologie und Klimaforschung in Zusammenarbeit mit dem Deutschen Wetterdienst entwickelten Modellsystem COSMO-ART (**C**onsortium for **S**mall scale **M**odelling - **A**erosols and **R**eactive **T**race **G**ases) durchgeführt. Das Modell COSMO-ART ermöglicht das Studium der Wechselwirkungen zwischen meteorologischen Feldern und Gas- und Partikelphasenspezien mittels vollständig online gekoppelter Simulationen der zeitlichen und räumlichen Entwicklung atmosphärischer Parameter wie z.B. der Temperatur und der Feuchte als auch der Konzentrationsverteilung wichtiger reaktiver gasförmiger Substanzen und der Größenverteilung sowie chemischen Zusammensetzung der atmosphärischen Aerosolpartikel. Für die Berechnung des Transportes einschließlich der hochreichenden Konvektion meteorologischer Variablen wie Temperatur und Feuchte sowie den Konzentrationen von Gas- und Partikelphasenspezien werden identische numerische Methoden verwendet. Eine weitere Besonderheit dieses Modellsystems ergibt sich aus der modularen Struktur, die eine Optimierung des Modells für verschiedene Fragestellungen zulässt. Abbildung 3.1 zeigt eine schematische Darstellung des Modellsystems. Das COSMO-Modell, welches eine internationale Weiterentwicklung des Lokal Modells (LM) ist und zusammen mit dem Global Modell (GME) den derzeitigen Kern des numerischen Wettervorhersagesystems des Deutschen Wetterdienstes bildet, liefert den meteorologischen Antrieb des Modellsystems. Neben dem Einsatz als Vorhersagemodell dient das COSMO-Modell auch zur Untersuchung atmosphärenwissenschaftlicher Fragestellungen auf der Meso- $\beta$ - und Meso- $\gamma$ -Skala. Speziell bei der Anwendung auf der Meso- $\gamma$ -Skala sind nichthydrostatische Effekte nicht mehr zu vernachlässigen (Doms et al. 2005). Daher handelt es sich bei dem COSMO-Modell um ein nichthydrostatisches, vollkompressibles Ausschnittsmodell. Um die Berechnung der Ausbreitung von Luftbeimengungen zu ermöglichen, wurde das COSMO-Modell um prognostische Gleichungen für die Konzentrationen der einzelnen betrachteten Substanzen erweitert. Die chemischen Umwandlungen sowie die Verlust- und Quellterme reaktiver gasförmiger Luftbeimengungen werden mit dem Gasphasenmechanismus RADMKA (Stockwell et al. 1990) berechnet. Die dafür benötigten Photolysefrequenzen werden nach einem Verfahren nach Bangert (2007) unter Berücksichtigung der aktuellen Wolkenbedeckung bestimmt. Die Modifikationen der Aerosolpartikelgrößenverteilung sowie der chemischen Zusammensetzung der Partikel wird in dem Modul MADEsoot (Ackermann et al., 1998; Riemer, 2002) berechnet. Bei der Deposition der Luftbeimengungen wird zwischen trockener und nasser Deposition unterschieden. Die trockene Deposition der gasförmigen Luftbeimengungen wird mittels eines Referenzblatt-Modells parametrisiert (Bär



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung des Modellsystems COSMO-ART

und Nester, 1992). Für die Partikel wird die trockene Deposition unter Berücksichtigung der Sedimentation und der Brownschen Diffusion nach Slinn (1980) berechnet. Die Berechnung der nassen Deposition der Partikel ist Gegenstand dieser Arbeit und wird im Späteren näher erläutert. Bäumer (2004) entwickelte auf der Basis von Mie-Rechnungen sowie der modellspezifischen Repräsentation der Partikelverteilung eine Parametrisierung der optischen Eigenschaften der Aerosolpartikel (Extinktionskoeffizient, Einfachstreueralbedo und Phasenfunktion). Diese Parametrisierung ermöglicht in effizienter Weise im COSMO-ART Modell die Online-Simulation der Wechselwirkungen zwischen den Aerosolpartikeln und dem Strahlungshaushalt der Atmosphäre.

Wichtige Eingabegrößen stellen die Emissionen von Gasphasen und Partikelphasenspezien dar. Die anthropogenen Emissionen werden im Voraus berechnet und stehen als Eingabedaten zur Verfügung (Pregger et al., 2007). Hier wird zwischen Flächenquellen und Punktquellen unterschieden. Während Substanzen aus Flächenquellen in der untersten Modellschicht emittiert werden, wird für die Emissionen aus Punktquellen eine Überhöhung in Abhängigkeit von der aktuellen Windgeschwindigkeit und der Quellstärke berechnet. Die Emissionen biogener gasförmiger organischer Verbindungen werden in Abhängigkeit von der Landnutzung, den aktuellen Temperaturen und Strahlungsflüssen parametrisiert (Vogel et al., 1995). Weitere auf Basis der Schubspannungsgeschwindigkeit parametrisierte Emissionen sind jene von Mineralstaubpartikeln (Hoose, 2004; Vogel et al., 2006) und Seesalzpartikeln (Lundgren, 2006).

Der Anfangszustand der meteorologischen Felder wird aus Analysen eines antreibenden Modells (z.B. GME, IFS) generiert. Für die Gasphasen und Partikelphasenspezien werden Startkonzentrationen vorgegeben. Für die benötigten Randwerte der meteorologischen Felder, Gasphasenspezien und Partikelphasenspezien kann COSMO-ART in ein größerskaliges Modell oder in größerskalige COSMO-ART Simulationen genestet werden.

Das COSMO–ART Modell findet bereits unterschiedlichste Anwendung. So können zum Beispiel Fragestellungen auf der regionalen Skala zur Luftchemie, der Klimawirksamkeit spezieller partikulärer Luftbeimengen wie dem Rußaerosol (Bäumler et al., 2008) oder der Ausbreitung von Pollen (Vogel et al., 2006), Mineralstaub (Hoose, 2004) und Seesalz (Lundgren, 2006) untersucht werden.

### 3.1 Das Strömungsmodell

Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über die Grundgleichungen des COSMO-Modells gegeben. Für eine ausführliche Darstellung der Herleitung der Modellgleichungen sei hier auf die Modellbeschreibung von Doms und Schättler (2002) verwiesen. Die physikalische Grundlage des COSMO-Modells sind die ursprünglichen, d.h. ungefilterten Eulerschen Gleichungen der Hydro-Thermodynamik. Auf Basis dieser Gleichungen kann folgender Satz prognostischer Gleichungen abgeleitet werden (Doms und Schättler, 2002):

- die Bewegungsgleichung

$$\rho \frac{d\mathbf{v}}{dt} = -\nabla p + \rho \mathbf{g} - 2\boldsymbol{\Omega} \times (\rho \mathbf{v}) - \nabla \cdot \mathbf{t} , \quad (3.1)$$

- die Drucktendenzgleichung

$$\frac{dp}{dt} = -\frac{c_{pd}}{c_{vd}} p \nabla \cdot \mathbf{v} + \left( \frac{c_{pd}}{c_{vd}} - 1 \right) Q_h , \quad (3.2)$$

- die thermische Energiegleichung

$$\rho c_p \frac{dT}{dt} = \frac{dp}{dt} + Q_h , \quad (3.3)$$

- die Bilanzgleichung für die verschiedenen Phasen des Wassers

$$\rho \frac{dq^x}{dt} = -\nabla \cdot \mathbf{J}^x + I^x . \quad (3.4)$$

Die in den Gleichungen (3.1), (3.2), (3.3) und (3.4) auftretende Dichte feuchter Luft  $\rho$  wird aus folgender diagnostischen Gleichung bestimmt:

$$\rho = p \{ R_d [ 1 + (R_v / R_d - 1) q^v - q^l - q^f ] T \}^{-1} . \quad (3.5)$$

In den Gleichungen (3.1)-(3.5) werden Vektoren durch dick gedruckte Symbole und Tensoren durch unterstrichene Symbole hervorgehoben. Vektorprodukte werden mit dem Symbol  $\times$  und Skalarprodukte mit dem Symbol  $\cdot$  gekennzeichnet. Der Index  $x$  in Gleichung (3.4) steht für die verschiedenen Phasen des Wassers, mit  $x = v$  für den Wasserdampf,  $x = l$  für das Flüssigwasser und  $x = f$  für die Eisphase. Weiter bedeuten in den Gleichungen:

$t$	die Zeit,
$T$	die Temperatur,
$p$	der Druck,
$\mathbf{v}$	der baryzentrische Geschwindigkeit (relativ zur rotierenden Erde),
$\mathbf{g}$	die Erdbeschleunigung,
$q^x = \rho^x/\rho$	das Massenmischungsverhältnis der verschiedenen Phasen des Wassers mit $x = l, v, f$ ,
$\rho^x$	die Partialdichte der verschiedenen Phasen des Wassers,
$I^x$	die Quellen und Senken der verschiedenen Phasen des Wassers,
$\mathbf{J}^x$	der diffusive Fluss der verschiedenen Phasen des Wassers,
$R_d$	die Gaskonstante trockener Luft,
$R_v$	die Gaskonstante des Wasserdampfes,
$c_{pd}$	die spezifische Wärmekapazität des Wasserdampfes bei konst. Druck,
$c_{vd}$	die spezifische Wärmekapazität des Wasserdampfes bei konst. Volumen,
$\underline{\mathbf{t}}$	der Reibungsspannungstensor,
$\underline{\boldsymbol{\Omega}}$	die konstante Winkelgeschwindigkeit der Erdrotation,
$\nabla$	der Nabla Operator,
$d/dt = \partial/\partial t + \mathbf{v} \cdot \nabla$	das totale (Lagrange) Differential,
$\partial/\partial t$	die lokale (Eulersche) Zeitableitung,
$Q_h$	diabatische Erwärmungsrate aufgrund von Strahlungsflüssen und Phasenumwandlungen.

Um die kleinskaligen turbulenten Fluktuationen, die durch das mesoskalige COSMO-Modell nicht aufgelöst werden können, in dem Gleichungssystem zu berücksichtigen, wird die sogenannte Reynoldsmittelung (Reynolds, 1895) verwendet. Dabei werden die atmosphärischen Variablen in einen vom Modell auflösbaren Mittelwert und eine vom Modell nichtauflösbare turbulente Fluktuation aufgespalten. Für jede Variable  $\Psi$  gilt

$$\Psi = \overline{\Psi} + \Psi', \quad (3.6)$$

wobei

$$\overline{\Psi} = \frac{1}{\Delta V \Delta t} \iint \Psi \, dt \, dV, \quad (3.7)$$

das über das vom numerischen Gitter aufgespannte Volumenelement  $\Delta V = \Delta x \Delta y \Delta z$  und dem numerischen Zeitschritt  $\Delta t$  gebildete Mittel der Variable  $\Psi$  repräsentiert. Gemäß der Reynoldskonvention gilt für die turbulente Fluktuation  $\Psi'$ :

$$\overline{\Psi'} = 0. \quad (3.8)$$

Für die Mittel der Geschwindigkeit, der Enthalpie sowie der Massenmischungsverhältnisse der einzelnen Komponenten der feuchten Luft wird im COSMO-Modell außerdem das von Hesselberg (1926) vorgeschlagene, mit der Dichte des betreffenden Mediums gewichtete Mittel verwendet. Hierbei gilt

$$\Psi = \hat{\Psi} + \Psi'', \quad (3.9)$$

mit dem gewichteten Mittel  $\hat{\Psi}$

$$\hat{\Psi} = \frac{\overline{\rho\Psi}}{\rho} \quad (3.10)$$

und der Bedingung für die turbulente Fluktuation  $\Psi''$

$$\hat{\Psi}'' = 0 \quad (3.11)$$

Diese Zerlegungen werden für die atmosphärischen Variablen in das Gleichungssystem (3.1)-(3.5) eingesetzt. Die Gleichungen werden anschließend gemittelt und mit den Vereinfachungen:

- alle molekularen Flüsse mit Ausnahme der diffusiven Flüsse flüssiger und fester Formen des Wassers werden vernachlässigt,
- die spezifische Wärme feuchter Luft wird durch die spezifische Wärme trockener Luft ersetzt,
- die Druckänderungen verursacht durch Änderungen in den Wasserkonzentrationsfeldern aufgrund von Phasenübergängen werden vernachlässigt,

ergeben sich die folgenden prognostischen Gleichungen für die Mittelwerte der atmosphärischen Variablen

$$\overline{\rho} \frac{d\hat{\mathbf{v}}}{dt} = -\nabla \overline{p} + \overline{\rho} \mathbf{g} - 2\overline{\boldsymbol{\Omega}} \times (\overline{\rho} \hat{\mathbf{v}}) - \nabla \cdot \overline{\mathbf{T}}, \quad (3.12)$$

$$\frac{d\overline{p}}{dt} = -\frac{\hat{c}_{pd}}{\hat{c}_{vd}} \overline{p} \nabla \cdot \hat{\mathbf{v}} + \left( \frac{\hat{c}_{pd}}{\hat{c}_{vd}} - 1 \right) \overline{Q_h}, \quad (3.13)$$

$$\bar{\rho} \hat{c}_{pd} \frac{\hat{d}\hat{T}}{dt} = \frac{\hat{d}\bar{p}}{dt} + \bar{Q}_h, \quad (3.14)$$

$$\bar{\rho} \frac{\hat{d}\hat{q}^v}{dt} = -\nabla \cdot \mathbf{F}^v - (\bar{I}^1 + \bar{I}^f), \quad (3.15)$$

$$\bar{\rho} \frac{\hat{d}\hat{q}^{l,f}}{dt} = -\nabla \cdot (\mathbf{J}^{l,f} + \mathbf{F}^{l,f}) + \bar{I}^{l,f}, \quad (3.16)$$

und die diagnostische Gleichung für die mittlere Dichte feuchter Luft

$$\bar{\rho} = \bar{p} \left[ R_d (1 + (R_v/R_d - 1) \hat{q}^v - \hat{q}^l - \hat{q}^f) \hat{T} \right]^{-1}. \quad (3.17)$$

Der Differentialoperator  $\hat{d}/dt$  bedeutet hier das Lagrangesche Differential unter Beachtung der gewichtet gemittelten baryzentrischen Geschwindigkeit  $\hat{\mathbf{v}}$ :

$$\frac{\hat{d}}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla. \quad (3.18)$$

Die gemittelte diabatischen Erwärmungsrate  $\bar{Q}_h$  wird aus folgender Beziehung bestimmt

$$\bar{Q}_h = \hat{L}_v \bar{I}^1 + \hat{L}_s \bar{I}^f - \nabla \cdot \bar{\mathbf{R}} - \nabla \cdot \mathbf{H}, \quad (3.19)$$

wobei hier  $L_v$  und  $L_s$  die bei der Referenztemperatur  $T_0$  konstante latente Verdampfungswärme und Sublimationswärme darstellen. Die gemittelten Kovarianzen der subskaligen turbulenten Fluktuationen sind in den Gleichungen (3.12)-(3.16) und (3.19) in Form des Reynoldsschen Spannungstensor

$$\underline{\mathbf{T}} = \overline{\rho \mathbf{v}'' \mathbf{v}''}, \quad (3.20)$$

des turbulenten Flusses des Wasserdampfes

$$\mathbf{F}^v = \overline{\rho \mathbf{v}'' q^{v''}}, \quad (3.21)$$

der turbulenten Flüsse des Flüssigwassers und des Eises

$$\mathbf{F}^{l,f} = \overline{\rho \mathbf{v}'' q^{l,f''}}, \quad (3.22)$$

sowie dem turbulenten Fluss fühlbarer Wärme

$$\mathbf{H} = c_{pd} \overline{\rho \mathbf{v}'' T}, \quad (3.23)$$

enthalten. Diese turbulenten Flüsse werden im COSMO-Modell mittels sogenannter Parametrisierungsschemata als Funktion der jeweiligen vom Modell auflösbaren mittleren Größe berechnet. Eine ausführliche Darstellung der verwendeten Parametrisierungsschemata findet sich bei Doms und Schättler (2002).

### 3.2 Die Ausbreitung gasförmiger Luftbeimengungen in COSMO-ART

Grundlage der Berechnung der räumlichen und zeitlichen Änderung der Konzentrationen gasförmiger Luftbeimengungen bildet eine zusätzliche, im COSMO-Modell implementierte Massenerhaltungsgleichung für die Massenmischungsverhältnisse der einzelnen Substanzen unter der Berücksichtigung chemischer Umwandlungen. In der Literatur werden diese Bilanzgleichungen auch als Diffusionsgleichungen bezeichnet. Ausgehend von der Diffusionsgleichung für die Partialdichte  $\rho_i$  einer Luftbeimengung  $i$  unter Vernachlässigung der molekularen Flüsse

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} = -\nabla \cdot (\rho_i \mathbf{v}_i) + P_i - L_i \quad (3.24)$$

kann unter Verwendung des Massenmischungsverhältnisses  $\Psi_i$  einer Substanz  $i$

$$\Psi_i = \frac{\rho_i}{\rho} \quad (3.25)$$

die Diffusionsgleichung für das Massenmischungsverhältnis formuliert werden

$$\frac{\partial (\Psi_i \rho)}{\partial t} = -\nabla \cdot (\Psi_i \rho \mathbf{v}) + P_i - L_i. \quad (3.26)$$

In den Gleichungen (3.24) und (3.26) bedeuten  $P_i$  und  $L_i$  den Gewinn bzw. Verlust der Substanz  $i$  infolge chemischer Reaktionen. Die Massenmischungsverhältnisse der einzelnen Substanzen werden analog der Behandlung der atmosphärischen Variablen des Strömungsmodells (Vgl. Kap. 3.1) in einen vom Modell auflösbaren Ensemblemittelwert  $\hat{\Psi}_i$  und eine nicht auflösbare turbulente Fluktuation  $\Psi_i''$  aufgespalten, wobei für den Mittelwert das von Hesselberg vorgeschlagene gewichtete Mittel verwendet wird. Es gilt

$$\Psi_i = \hat{\Psi}_i + \Psi_i'' , \quad (3.27)$$

mit

$$\hat{\Psi}_i = \frac{\overline{\Psi_i \rho_i}}{\rho}, \quad (3.28)$$

und der Bedingung für die turbulente Fluktuation  $\Psi''$

$$\hat{\Psi}_i'' = 0. \quad (3.29)$$

Die Zerlegung der Massenmischungsverhältnisse wird in die Diffusionsgleichung (3.26) eingesetzt. Die Gleichung wird anschließend Reynolds-gemittelt. Es ergibt sich folgende Gleichung für den Mittelwert des Massenmischungsverhältnisses einer Substanz  $i$

$$\frac{\partial(\bar{\rho}\hat{\Psi}_i)}{\partial t} = -\nabla \cdot (\bar{\rho}\hat{\mathbf{v}}\hat{\Psi}_i) - \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_i} + \bar{P}_i - \bar{L}_i, \quad (3.30)$$

wobei hier

$$\mathbf{F}^{\Psi_i} = \overline{\rho \mathbf{v}'' \Psi_i''} \quad (3.31)$$

den turbulenten Fluss des Massenmischungsverhältnisses der Substanz  $i$  repräsentiert, welcher in Analogie zum turbulenten Fluss des Wasserdampfes mit einem Parametrisierungsschema als Funktion des mittleren Massenmischungsverhältnisses bestimmt wird (Vgl. Doms und Schättler, 2002).

Die Emissionen von gasförmigen Luftbeimengungen fließen in die Gleichung (3.30) als Randbedingung ein. Bei den chemischen Produktions- und Verlusttermen  $P_i$  und  $L_i$  werden nur die mittleren Größen mitgeführt. Diese werden mit dem Gasphasenchemiemodul RADMKA (Stockwell et al., 1990; Hass, 1991) bestimmt. Aus Kapazitätsgründen können nicht alle bekannten Substanzen und Reaktionen explizit berücksichtigt werden. Daher werden nur jene für die chemischen Umwandlungen in der Troposphäre relevanten Substanzen und Reaktionen behandelt. Während die anorganischen Substanzen explizit berücksichtigt werden, werden die organischen Verbindungen abhängig von ihrer Molekülstruktur in einer überschaubaren Anzahl von Modellsubstanzen zusammengefasst und in einer kondensierten Form behandelt. Bei Riemer (1997) wird eine anschauliche Beschreibung der Zusammenfassung der Substanzen gegeben. Alle transportierten Substanzen und berücksichtigten Reaktionen sind im Anhang aufgeführt. Eine tabellarische Aufstellung der jeweils auf- und abbauenden Reaktionen für jede Substanz gibt Schwartz (1996) an.

### 3.3 Das Aerosolmodul $\text{MADE}_{\text{SOOT}}$

Die zeitliche Änderung der Aerosolpartikelgrößenverteilung sowie die chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel werden in dem Aerosolmodul  $\text{MADE}_{\text{SOOT}}$  berechnet. Eine detaillierte Beschreibung dieses Moduls kann Riemer (2002) entnommen werden.  $\text{MADE}_{\text{SOOT}}$  basiert auf grundlegenden Arbeiten von Whitby et al. (1991) und auf dem von Binkowski und Shankar (1995) im Rahmen des Modellsystems Models-3 für Nordamerika entwickelten Aerosolmodells. Für die Anwendung auf dem europäischen Kontinent implementierten Ackermann et al. (1998), im Rahmen des EURAD Modellsystems, zusätzlich zu der vorhandenen Behandlung von Ammonium, Sulfat und Wasser die reversible Bildung von Ammoniumnitrat-aerosol und dessen Einfluss auf die Aerosoldynamik. Die Berücksichtigung sekundärer organischer Substanzen wurde von Schell (2001) realisiert. Riemer (2002) erweiterte  $\text{MADE}_{\text{SOOT}}$  um die Substanz Ruß (elementarer Kohlenstoff) und ermöglichte somit die Simulation der Alterung von Rußpartikeln. Weitere zusätzlich implementierte Partikelspezies, die im Rahmen dieser Arbeit unberücksichtigt bleiben, sind Mineralstaubpartikel (Hoose, 2004), Seesalzpartikel (Lundgren, 2006) und Pollen (Vogel, 2006).

Dem Modul  $\text{MADE}_{\text{SOOT}}$  liegt die Momentenmethode zugrunde, d.h. die aerosoldynamischen Gleichungen werden für spezielle Momente der Partikelverteilung gelöst. Zur Schließung des Gleichungssystems wird der modale Ansatz verfolgt. Die Aerosolpopulation wird mittels mehrerer sich überlagernder Einzelverteilungen (Moden) beschrieben, wobei jede dieser einzelnen Moden mittels einer kontinuierlichen Verteilungsfunktion, hier einer Lognormalverteilung (Gleichung 2.9), approximiert wird. Die Summe über die einzelnen Verteilungen ergibt dann wieder die Gesamtpartikelverteilung. Die einzelnen Verteilungsfunktionen werden jeweils durch die drei Parameter Mediandurchmesser  $d_{g,L}$ , Gesamtanzahldichte der Partikel  $N_{p,L}$  und geometrische Standardabweichung  $\sigma_{g,L}$  eindeutig festgelegt.

Wie in Abschnitt 2.4 beschrieben, können durch die Kenntnis von drei beliebigen Momenten der Einzelverteilungen die drei Parameter der Verteilung bestimmt werden. Die Berechnung der zeitlichen Änderung der Anzahldichte einer Aerosolpopulation wird somit auf die Lösung der prognostischen Gleichungen für die Momente zurückgeführt. In dem Modul  $\text{MADE}_{\text{SOOT}}$  wird die geometrische Standardabweichung in den Verteilungsfunktionen konstant gehalten. Diese Vorgehensweise reduziert die zu lösenden prognostischen Gleichungen pro Mode auf zwei, was den Rechenaufwand deutlich reduziert. Der Nachteil besteht allerdings darin, dass die Veränderung der Breite einer Mode nicht berücksichtigt werden kann. Diese Vereinfachung ist vertretbar, da die berechneten Konzentrationsverteilungen mittlere Verhältnisse für ein relativ großes Gittervolumen darstellen und somit kleinskalige Prozesse außer Acht gelassen werden.

Die Gesamtpartikelpopulation wird mit insgesamt sechs einzelnen Moden angenähert. Die Moden unterscheiden sich dabei in den Parametern der jeweiligen Verteilungsfunktion und der chemischen Zusammensetzung. In Tabelle 3.1 sind die verschiedenen Moden mit dem sie repräsentierenden Größenbereich, ihrer chemischen Zusammensetzung, der geometrischen Standardabweichung und dem initialisierten Mediandurchmesser aufgeführt.

**Tabelle 3.1:** Übersicht der in  $\text{MADE}_{\text{SOOT}}$  verwendeten Moden mit ihrer chemischen Zusammensetzung, Mischungszustand und den Parametern der die Moden beschreibenden Lognormalverteilungen Mediandurchmesser  $d_{g,L}$  und Standardabweichung  $\sigma_{g,L}$  (SOA bedeutet hier sekundäres organisches Aerosol).

Signatur	Größenbereich	chemische Zusammensetzung	$d_{g,L}$	$\sigma_{g,L}$
i	Aitkenbereich	$\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , SOA (intern gemischt)	0,01 $\mu\text{m}$	1,7
im	Akkumulationsbereich	$\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , SOA, Ruß (intern gemischt)	0,08 $\mu\text{m}$	1,7
j	Akkumulationsbereich	$\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , SOA (intern gemischt)	0,07 $\mu\text{m}$	2,0
jm	Akkumulationsbereich	$\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{H}_2\text{O}$ , SOA, Ruß (intern gemischt)	0,08 $\mu\text{m}$	2,0
s	Akkumulationsbereich	Ruß, $\text{SO}_4^{2-}$ , $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ (extern gemischt)	0,08 $\mu\text{m}$	1,8
c	Großpartikelmode	direkte PM10 Emissionen (ausgenommen Ruß)	1,0 $\mu\text{m}$	2,5

In dem Modul  $\text{MADE}_{\text{SOOT}}$  werden für jede Mode prognostische Gleichungen für die Partikelanzahldichte, die dem nullten Moment entspricht und für die Partikelmasendichte der Einzelsubstanzen, die dem dritten Moment proportional ist, gelöst. Beide Größen, das nullte Moment  $M_{0,L}$  und das dritte Moment  $M_{3,L}$ , der Index L steht hier für die jeweilige betrachtete Mode, werden normiert in der Form:

$$\Psi_{0,L} = \frac{M_{0,L}}{N} \quad (3.32)$$

und

$$\Psi_{3,L} = \frac{M_{3,L}}{\rho} \quad (3.33)$$

betrachtet. Dabei wird das nullte Moment mit der Gesamtteilchenanzahldichte N unter Berücksichtigung der Luftmoleküle und das dritte Moment mit der Dichte der feuchten Luft  $\rho$  in normiert.

Die prognostischen Gleichungen für die Momente können aus der Aerosoldynamikgleichung (2.17) unter Verwendung der Definition der integralen Momente (2.4) und durch Separation

Koagulationsterme nach Gewinn und Verlust abgeleitet werden (eine ausführliche Herleitung findet man bei Whitby et al. (1991)).

Analog der Behandlung der hydro-thermodynamischen Gleichungen (3.1)-(3.5) und der Diffusionsgleichung für die gasförmigen Luftbeimengungen (3.26) wird die Reynoldsmittelung angewendet. Für die aerosoldynamischen Prozesse werden nur die Terme der gemittelten Größen mitgeführt. Der Diffusionsterm in der Aerosoldynamikgleichung (2.17) wird gegenüber der turbulenten Diffusion vernachlässigt. Die Reynoldsgemittelten Bilanzgleichungen für das normierte nullte Moment  $\Psi_{0,L}$  der jeweiligen Moden lauten schließlich:

- für die Moden i und im

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,i}}{\partial t} = & -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,i} - \bar{\mathbf{v}}_{\text{sed},0,i} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,i}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_{0,i}} \\ & - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,ii} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,ij} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,iim} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,ijm} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,is} + \bar{\mathbf{Nu}}_0 \quad , \end{aligned} \quad (3.34a)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,im}}{\partial t} = & -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,im} - \bar{\mathbf{v}}_{\text{sed},0,im} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,im}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_{0,im}} \\ & - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,imim} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,imjm} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,imj} + \bar{\mathbf{Ca}}_{0,is} \quad , \end{aligned} \quad (3.34b)$$

- für die Moden j und jm

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,j}}{\partial t} = & -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,j} - \bar{\mathbf{v}}_{\text{sed},0,j} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,j}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_{0,j}} \\ & - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,jj} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,jim} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,jjm} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,js} \quad , \end{aligned} \quad (3.34c)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,jm}}{\partial t} = & -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,jm} - \bar{\mathbf{v}}_{\text{sed},0,jm} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,jm}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_{0,jm}} \\ & - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,jmjm} + \bar{\mathbf{Ca}}_{0,jmi} + \bar{\mathbf{Ca}}_{0,js} \quad , \end{aligned} \quad (3.34d)$$

- für die Rußmode s

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,s}}{\partial t} = & -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,s} - \bar{\mathbf{v}}_{\text{sed},0,s} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,s}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_{0,s}} \\ & - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,ss} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,is} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,js} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,ims} - \bar{\mathbf{Ca}}_{0,jms} \quad , \end{aligned} \quad (3.34e)$$

- und die Grobpartikelmode c

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{0,c}}{\partial t} = -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,c} - \bar{v}_{\text{sed},0,c} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,c}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_{0,c}}. \quad (3.34f)$$

In den Gleichungen bedeuten:

$\bar{v}_{\text{sed},0,L}$	die gemittelte Sedimentationsgeschwindigkeit für das nullte Moment in der Mode L mit $L = i, im, j, jm, s, c$ ,
$\bar{Ca}_{0,ii}, \bar{Ca}_{0,ij}, \bar{Ca}_{0,ss},$ $\bar{Ca}_{0,imim}, \bar{Ca}_{0,ijjm}$	die gemittelte lokalzeitliche Änderung des nullten Momentes der Mode L infolge intramodaler Koagulation,
$\bar{Ca}_{0,ij}, \bar{Ca}_{0,iim}, \bar{Ca}_{0,is},$ $\bar{Ca}_{0,jim}, \bar{Ca}_{0,jjm}, \bar{Ca}_{0,js},$	die gemittelte lokalzeitliche Änderung des nullten Momentes der Mode L infolge intermodaler Koagulation,
$\bar{Nu}_{0,L}$	die gemittelte lokalzeitliche Änderung des nullten Momentes infolge Nukleation,
$\mathbf{F}^{\Psi_{0L}}$	der turbulente Fluss für das nullte Moment der Mode L.

Der Prozess der Kondensation taucht in den Gleichungen für die nullten Momente nicht auf, weil sich dadurch nur das dritte Moment ändert. Sekundär durch Nukleation gebildete Partikel werden einzig in der rußfreien Aitkenmode i berücksichtigt. Die Emissionen von Primärpartikeln fließen als Randbedingung in das Gleichungssystem ein. Die trockene Deposition stellt eine zusätzliche untere Randbedingung für die Bilanzgleichungen. Der Partikelverlust verursacht durch die nasse Deposition wird additiv in den Gleichungen berücksichtigt, wie im anschließenden Kapitel 4 gezeigt werden wird.

Die Reynoldsgemittelten Bilanzgleichungen für das normierte dritte Moment  $\Psi_{3,L}$  der jeweiligen Moden lauten:

- für die Moden i und im

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{3,i}}{\partial t} = & -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{3,i} - \bar{v}_{\text{sed},3,i} \frac{\partial \hat{\Psi}_{3,i}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_{3,i}} \\ & - \bar{Ca}_{3,ij} - \bar{Ca}_{3,iim} - \bar{Ca}_{3,ijm} - \bar{Ca}_{3,is} + \bar{Co}_{3,i} + \bar{Nu}_3 \end{aligned}, \quad (3.35a)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{3,im}}{\partial t} = & -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{3,im} - \bar{v}_{\text{sed},3,im} \frac{\partial \hat{\Psi}_{3,im}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\Psi_{3,im}} \\ & - \bar{Ca}_{3,ijm} - \bar{Ca}_{3,imj} + \bar{Ca}_{3,is} + \bar{Co}_{3,im} \end{aligned}, \quad (3.35b)$$

- für die Moden j und jm

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{3,j}}{\partial t} = -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{3,j} - \bar{v}_{\text{sed},3,j} \frac{\partial \hat{\Psi}_{3,j}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\hat{\Psi}_{3,j}} , \quad (3.35c)$$

$$- \bar{\text{Ca}}_{3,jim} - \bar{\text{Ca}}_{3,jjm} - \bar{\text{Ca}}_{3,jjs} + \bar{\text{Co}}_{3,j}$$

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{3,jm}}{\partial t} = -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{3,jm} - \bar{v}_{\text{sed},3,jm} \frac{\partial \hat{\Psi}_{3,jm}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\hat{\Psi}_{3,jm}} , \quad (3.35d)$$

$$+ \bar{\text{Ca}}_{3,jmi} + \bar{\text{Ca}}_{3,jjs} + \bar{\text{Co}}_{3,jm}$$

- für die reine Rußmode s

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{3,s}}{\partial t} = -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{3,s} - \bar{v}_{\text{sed},3,s} \frac{\partial \hat{\Psi}_{3,s}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\hat{\Psi}_{3,s}} , \quad (3.35e)$$

$$- \bar{\text{Ca}}_{3,iss} - \bar{\text{Ca}}_{3,jjs} - \bar{\text{Ca}}_{3,ims} - \bar{\text{Ca}}_{3,jms}$$

- und die Grobpartikelmode c

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{3,c}}{\partial t} = -\hat{\mathbf{v}} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{3,c} - \bar{v}_{\text{sed},3,c} \frac{\partial \hat{\Psi}_{3,c}}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \mathbf{F}^{\hat{\Psi}_{3,c}} . \quad (3.35f)$$

In den Gleichungen bedeuten:

$\bar{v}_{\text{sed},3,L}$	die gemittelte Sedimentationsgeschwindigkeit für das dritte Moment in der Mode L mit $L = i, im, j, jm, s, c$ ,
$\bar{\text{Ca}}_{3,ii}, \bar{\text{Ca}}_{3,ij}, \bar{\text{Ca}}_{3,ss},$ $\bar{\text{Ca}}_{3,imim}, \bar{\text{Ca}}_{3,jmjm}$	die gemittelte lokalzeitliche Änderung des dritten Momentes der Mode L infolge der intramodalen Koagulation,
$\bar{\text{Ca}}_{3,ij}, \bar{\text{Ca}}_{3,iim}, \bar{\text{Ca}}_{3,is},$ $\bar{\text{Ca}}_{3,jim}, \bar{\text{Ca}}_{3,jjm}, \bar{\text{Ca}}_{3,js},$	die gemittelte lokalzeitliche Änderung des dritten Momentes der Mode L infolge der intermodalen Koagulation,
$\bar{\text{Co}}_{3,i}, \bar{\text{Co}}_{3,im}, \bar{\text{Co}}_{3,j}, \bar{\text{Co}}_{3,jm}$	die gemittelte lokalzeitliche Änderung des dritten Momentes infolge Kondensation,
$\bar{\text{Nu}}_{3,L}$	die gemittelte lokalzeitliche Änderung des dritten Momentes infolge Nukleation,
$\mathbf{F}^{\hat{\Psi}_{3,L}}$	der turbulente Fluss für das dritte Moment der Mode L.

In der reinen Rußmode s und der Grobpartikelmode c werden die Kondensationsprozesse vernachlässigt da angenommen wird, dass reine unbeschichtete Rußpartikel hydrophob sind. Weiter treten in den Gleichungen für das dritte Moment keine intramodale Koagulationsterme auf, da diese keine Veränderung der dritten Momente bewirken. Die in den Gleichungen (3.34) und (3.35) auftretenden turbulenten Flüsse  $\mathbf{F}^{\hat{\Psi}_{k,L}}$  der Form:

$$\mathbf{F}^{\Psi_{k,l}} = \overline{\rho \mathbf{v}'' \Psi''_{k,L}} \quad (3.36)$$

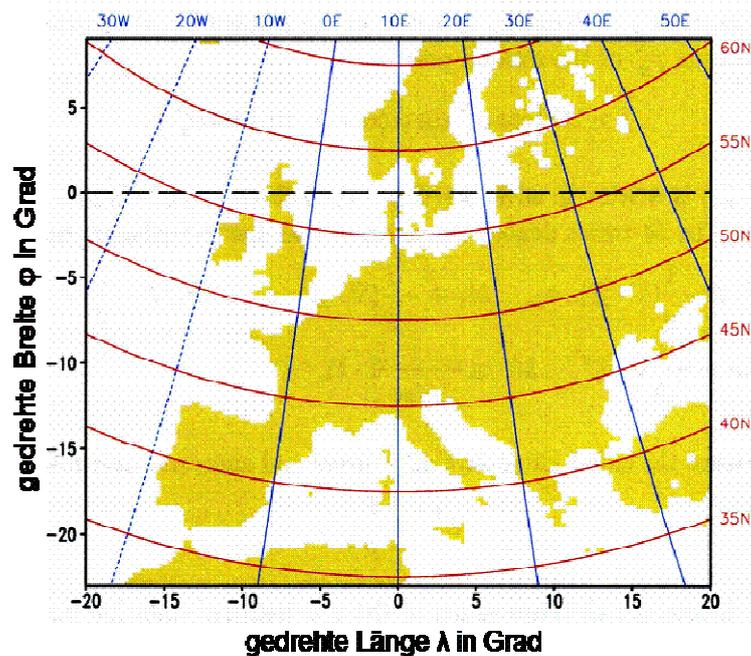
müssen in Analogie zu den turbulenten Flüssen in der Diffusionsgleichung (3.30) und in der Bilanzgleichung für den Wasserdampf (3.15) parametrisiert werden.

Eine detaillierte Beschreibung der Formulierung der einzelnen aerosoldynamischen Prozesse wie Nukleation, Kondensation, Koagulation und Sedimentation im Modul MADE<sub>SOOT</sub> kann Riemer (2002) entnommen werden. Für die Behandlung der Aerosolchemie sei an dieser Stelle ebenfalls auf die Arbeit von Riemer (2002) verwiesen.

### 3.4 Das Koordinatensystem

Im COSMO-ART Modell werden sphärische Koordinaten in den horizontalen Richtungen verwendet. Dies bedeutet, dass alle prognostischen Gleichungen transformiert werden müssen. Für eine ausführliche Darstellung der Transformationen sei hier auf Doms und Schättler (2002) verwiesen. Die Begründung der Verwendung sphärischer Koordinaten liegt in der Anwendung des Modellsystems über Flächen von typischerweise mehreren Millionen Quadratkilometern, auf denen die Krümmung der Erdoberfläche berücksichtigt werden muss. Bei der Verwendung von geographischen sphärischen Koordinaten treten zwei Probleme, verursacht durch die Konvergenz der Meridiane, auf. Zum einen stellen die geographischen Pole, wenn sie sich im Modellgebiet befinden, eine Singularität dar und zum anderen verändert sich die horizontale Auflösung in Breitenrichtung bei Entfernung vom Äquator. Eine Möglichkeit der Umgehung dieser Probleme, die in COSMO-ART Anwendung findet, ist die Rotation des Koordinatensystems. Das Koordinatensystem wird so gedreht, dass der Äquator und der Nullmeridian durch das Simulationsgebiet verlaufen Abbildung (3.2). Mit diesem Vorgehen kann das „Polproblem“ umgangen werden und die Konvergenz der Meridiane wird minimiert.

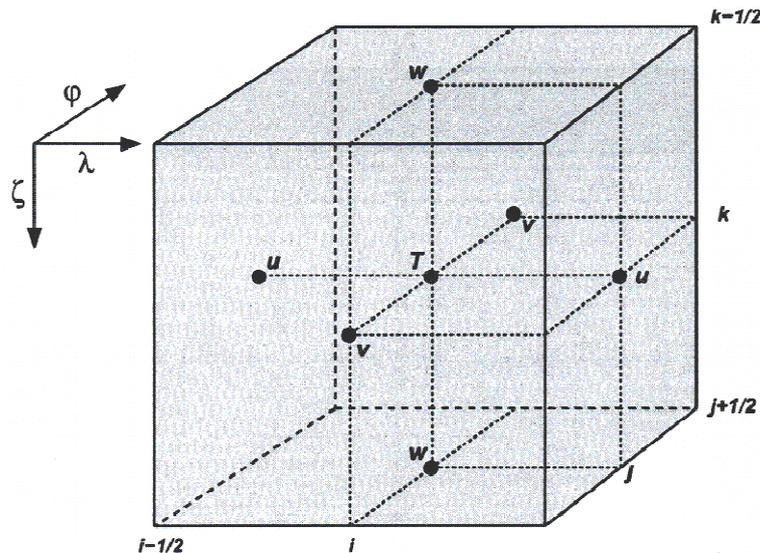
In der Vertikalen wird eine zeitunabhängige, geländefolgende Koordinate genutzt. Die Vertikalkoordinate wird mittels einer eindeutigen, ansonsten aber beliebigen Transformationsbeziehung beschrieben  $z = f(\lambda, \varphi, \zeta)$ . Um die diskrete Formulierung der Modellgleichungen unabhängig von der Vertikalkoordinate zu halten, wird zuerst das z-System in ein geländefolgendes  $\bar{\zeta}$  System abgebildet. Durch beliebige Vorgabe von  $\bar{\zeta}$  erfolgt die vertikale Einteilung des Gitters. In einem zweiten Schritt wird  $\bar{\zeta}$  unter Verwendung einer monotonen Funktion  $\bar{\zeta} = m(\zeta)$  auf die Koordinate  $\zeta$  des Rechengitters abgebildet. Im COSMO-ART Modell kann zwischen drei verschiedenen Vertikalkoordinaten  $\bar{\zeta}$  gewählt werden: (1) eine Koordinate basierend auf dem Referenzdruck, (2) eine auf Galchen Höhen basierende Koordinate und (3) eine Höhen basierende SLEVE (aus dem engl. *Smooth Level Vertical*) Koordinate.



**Abbildung 3.2:** Dargestellt sind die Koordinaten des gedrehten Gitters mit der geographischen Länge (blau) und Breite (rot) im ungedrehten Gitter. Der Äquator im gedrehten Gitter mit einem Pol (geographische Koordinaten  $32,5^\circ$  S und  $10,0^\circ$  O) ist durch die gestrichelte Linie gekennzeichnet. Der Nullmeridian des gedrehten Gitters ist identisch dem  $10^\circ$  Meridian im geographischen Gitter (nach Doms und Schättler, 2002).

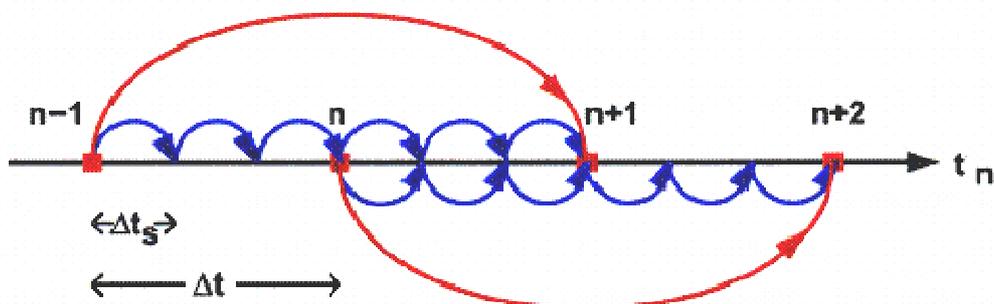
### 3.5 Numerische Lösung

Die prognostischen Gleichungen (3.12)-(3.16), (3.30), (3.33) und (3.35) sind im Allgemeinen nicht analytisch lösbar. Um diese Differentialgleichungen numerisch lösen zu können, müssen sie in Differenzgleichungen überführt werden. Dazu werden im Modell COSMO-ART die räumlichen Differentialoperatoren durch finite Differenzen approximiert. Die zeitliche Integration erfolgt ebenfalls in diskreter Form mit einem festen Zeitschritt  $\Delta t$ . Für die räumliche Diskretisierung werden konstante Maschenweiten  $\Delta\lambda$ ,  $\Delta\phi$  und  $\Delta\zeta$  verwendet. Die Anordnung der Variablen erfolgt in den horizontalen Richtungen auf einem Arakawa-C Gitter. In vertikaler Richtung wird eine Lorenz-Gitter-Einteilung gewählt. Alle Skalare, wie z.B. die Temperatur, der Druck, die Massenmischungsverhältnisse und die Aerosolpartikelanzahlen sind in der Mitte des elementaren Gittervolumens  $\Delta V = \Delta\lambda\Delta\phi\Delta\zeta$  definiert und sind repräsentativ für das gesamte Gittervolumen. Die Geschwindigkeitskomponenten sind auf den jeweiligen Stirnflächen eines Gittervolumens definiert. Abbildung 3.3 zeigt die Anordnung der Variablen auf dem verwendeten Gitter.



**Abbildung 3.3:** Gittervolumen mit der Anordnung der prognostischen Variablen auf einem Arakawa-C/Lorenz Gitter. T repräsentiert hier alle skalaren Variablen. (Doms und Schättler, 2002)

Die Differentialoperatoren wie Gradient, Divergenz und Laplaceoperator werden in horizontaler und vertikaler Raumrichtung mittels zentrierten Differenzen formuliert. Die zeitliche Integration der Modellgleichungen erfolgt nach dem Leapfrog-Verfahren auf drei Zeitebenen. Aufgrund der vorausgesetzten Kompressibilität sind Phänomene wie Schallwellen und hochfrequente Schwerewellen Bestandteil der Lösung. Die hohe Phasengeschwindigkeit dieser Wellen bedingt aus Stabilitätsgründen einen sehr kleinen numerischen Zeitschritt. Um dennoch die Gleichungen effizient numerisch integrieren zu können, werden die Gleichungen in langsame und schnelle Terme getrennt. Für diejenigen Terme die langsame Prozesse, wie z.B. die Advektionsterme enthalten, erfolgt die zeitliche Vorwärtsrechnung mit dem Leapfrog-Verfahren von dem Zeitpunkt  $t-\Delta t$  auf den Zeitpunkt  $t+\Delta t$ . Die Terme mit den schnellen Prozessen werden im Zeitintervall von  $2\Delta t$  mit einem kleineren für die Wellen stabilen Zeitschritt integriert  $\Delta t_s = \Delta t/n$  (Abbildung 3.4).

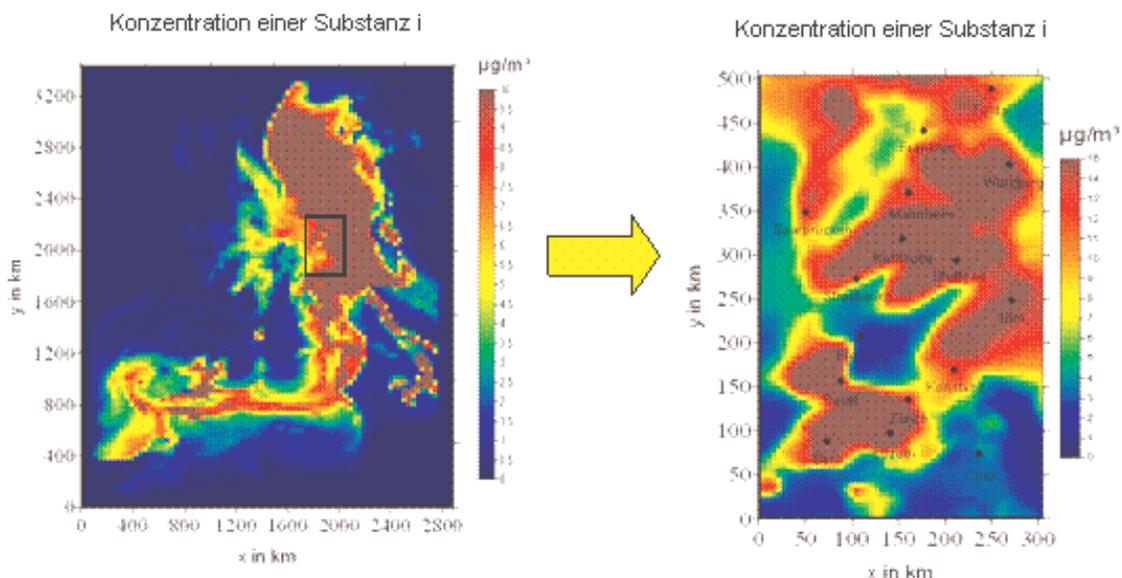


**Abbildung 3.4:** Klemp und Wilhelmson (1978) Algorithmus zur Trennung der langsamen und schnellen Prozesse bei der zeitlichen Integration (Doms und Schättler, 2002)

### 3.6 Anfangszustand und Randbehandlung

Als Ausschnittmodell werden für das Modell COSMO-ART Anfangs- und Randdaten benötigt. Der Anfangszustand für die meteorologischen Variablen kann durch Interpolation der Analysen eines antreibenden Modells (z.B. GME, IFS) generiert werden. Für die Gasphasenspezien wird ein homogenes Startkonzentrationsfeld vorgegeben. Die Partikelphase wird mit Startwerten für das Nullte und Dritte Moment und die mittleren Durchmesser der Lognormalverteilungen initialisiert. Der Anfangszustand für die Gas- und Partikelphase ist aufgrund der Bestimmung der realen Werte schlecht definiert. Daher wird eine Einschwingzeit des Modells benötigt. Hier werden 24 h angesetzt.

Für den seitlichen Antrieb des Modells kann das COSMO-ART Modell in ein größerskaliges Modell oder in größerskalige COSMO-ART Simulationen mit niedrigerer Auflösung für die meteorologischen Variablen die Gasphasenspezien und die Partikelphasenspezien Einweg genestet werden. Für das Nesten COSMO-ARTs in COSMO-ART werden vorab Simulationen niedrigerer Auflösung in einem größeren Modellgebiet, welches das interessierende Modellgebiet beinhaltet, erstellt. Die so generierten Konzentrationsfelder stehen dann als seitliche Randwerte für höher aufgelöste Simulationen in kleineren Modellgebieten zur Verfügung Abbildung (3.4). Als obere Randbedingung wird eine Rayleigh Dämpfungsschicht eingeführt. Für die unteren Randbedingungen der Temperatur und Feuchte ist das Modell COSMO-ART mit dem Bodenvegetationsmodell TERRA gekoppelt. Die unteren Randbedingungen für die Gasphase und Partikelphase sind die trockene Deposition sowie die Emissionen gasförmiger und partikelförmiger Luftbeimengungen.



**Abbildung 3.4:** Der seitliche Antrieb der Simulationen für die Gasphase und Partikelphase im kleinen Modellgebiet (rechts) wird bereitgestellt aus simulierten Konzentrationsfeldern eines höher aufgelösten Modelllaufes.



## 4 Das Auswaschen von Aerosolpartikeln infolge von Niederschlag

Wie eingangs erwähnt stellt das Auswaschen von in der Atmosphäre suspendierten Partikeln infolge der Wechselwirkung von Aerosolpartikeln und Niederschlagspartikeln eine wichtige Partikelsenke dar und ist einer der Hauptprozesse, in dem die Atmosphäre gereinigt und die Balance zwischen Quellen und Senken aufrecht erhalten wird. Daher ist es notwendig, das Auswaschen bei der Simulation der Ausbreitung von Aerosolpartikeln zu berücksichtigen.

Zum generellen Verständnis dieses Phänomens ist eine vollständig gekoppelte Betrachtung der meteorologischen, der gaschemischen, der aerosolphysikalischen und aerosolchemischen sowie der wolken- und niederschlagsmikrophysikalischen Prozesse erforderlich. Eine Reihe von Autoren untersuchte in theoretischen und numerischen Arbeiten, mit Hilfe von mikrophysikalischen Partikelmodellen auf der Basis der Beschreibung der Partikel-Tropfen-Kollisionen, das Einsammeln von Partikeln durch Tropfen (beispielsweise Dana und Hales, 1976; Wang und Pruppacher, 1977; Slinn, 1977, 1983; Herbert, 1978; Beheng und Herbert, 1986; Herbert und Beheng, 1986; Flossman, Hall und Pruppacher, 1985, 1988). Es zeigte sich, dass das Auswaschen zum Einen von einer Vielzahl physikalischer Prozesse beeinflusst wird (Slinn, 1977) und zum Anderen stark abhängig von der Partikelverteilung sowie dem Niederschlagsereignis, speziell der Tropfenverteilung und Niederschlagsintensität ist (Mircea und Stefan, 1998).

Mikrophysikalische Partikelmodelle sind aufgrund der hohen Komplexität und des großen Rechenaufwandes ungeeignet, um in Lagrangeschen und Eulerschen Ausbreitungsmodellen Anwendung zu finden. In der Literatur existiert daher eine Reihe von Parametrisierungen des Auswaschprozesses basierend auf der Bestimmung der Partikelanzahlverlustrate. Dabei werden die Anzahlverlustraten oft als Konstante (Berge, 1990) oder als Funktion der Niederschlagsrate (Seinfeld und Pandis, 1998) berücksichtigt.

Eine Methode der Bestimmung der Anzahlverlustraten ist, diese aus experimentell in Labor- oder Feldstudien ermittelten Daten abzuleiten (z.B. Radke et al., 1980; Laakso et al., 2003; Chate und Pranesha, 2004). Feldmessungen zeigen eine hohe Variabilität der Anzahlverlustrate in Abhängigkeit des Niederschlagsereignisses. Chate und Pranesha (2004) ermittelten Verlustraten von  $1 \cdot 10^{-5}$  bis  $8 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  für Ereignisse mit Niederschlagsraten zwischen  $1 \text{ mm h}^{-1}$  und  $46 \text{ mm h}^{-1}$ .

Das Problem der Parametrisierung des Auswaschens nach der genannten Methodik, unter Verwendung von Niederschlagsraten, besteht darin, dass es nicht möglich ist die ausgewaschene Partikelverteilung als Funktion der Partikeleigenschaften und der Tropfenverteilung explizit zu berücksichtigen. Ein Ansatz für die Parametrisierung des Auswaschprozesses unter Berücksichtigung der Partikeleigenschaften und der Tropfen-

verteilung wurde von Jung (2003) gegeben. Jung betrachtete allerdings wenige klassische physikalische Prozesse und vernachlässigte in seiner Arbeit phoretische und elektrische Effekte, welche den Auswaschprozess in dem Partikelgrößenbereich von 0,1  $\mu\text{m}$  bis 1  $\mu\text{m}$  dominieren (Slinn, 1983; Pruppacher und Klett, 1988).

Das folgende Kapitel untergliedert sich in zwei Abschnitte. Im ersten Teil soll gezeigt werden, wie das Auswaschen von Aerosolpartikeln in parametrisierter Form unter Berücksichtigung der Partikeleigenschaften und der Tropfenverteilung sowie der physikalischen Prozesse, Brownsche Diffusion, Interzeption, Impaktion, Thermophorese, Diffusiophorese und der Coulombschen Wechselwirkung elektrisch geladener Partikel berechnet werden kann. Hierzu wird ein Modell zur parametrisierten Berechnung des Auswaschens basierend auf der Methode der integralen Momente entwickelt. Im zweiten Teil wird das Auswaschen zunächst mit einem nulldimensionalen Boxmodell untersucht werden, um dann weiter im dreidimensionalen mesoskaligen Modellsystem COSMO-ART Berücksichtigung zu finden.

## 4.1 Die Berechnung des Auswaschprozesses

Im Folgenden wird gezeigt, wie der Auswaschprozess mittels Partikelverlustraten mathematisch beschrieben werden kann. Die Berechnung der Partikelverlustraten basiert dabei auf der Beschreibung des Auswaschprozesses mit sogenannten Kollisionseffizienzen. Dabei wird für jeden die Partikel-Tropfen-Kollisionen beeinflussenden physikalischen Prozess eine Kollisionseffizienz definiert.

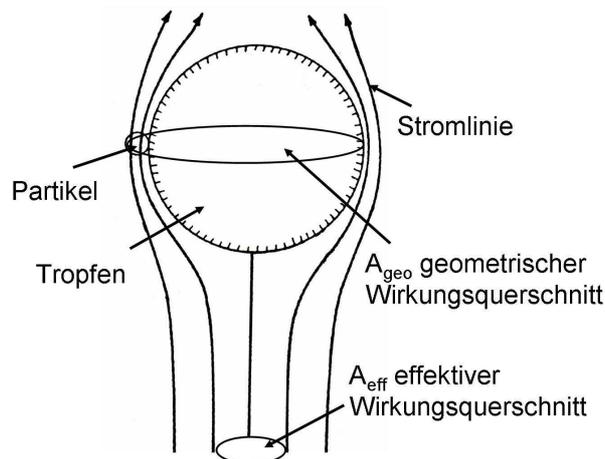
### 4.1.1 Die Partikelverlustrate

Den folgenden Betrachtungen liegt zugrunde, dass Aerosolpartikel sowie Niederschlagstropfen als kugelförmig angesehen werden können. Weiter wird das Strömungsfeld im Nahbereich der Niederschlagstropfen als laminar vorausgesetzt.

Für die Berechnung der lokalzeitlichen Änderung einer Partikelanzahldichte  $n(d_p)$  infolge des Auswaschens durch Niederschlag wird folgender Ansatz gewählt (z.B. Seinfeld und Pandis, 1998):

$$\frac{\partial n(d_p)}{\partial t} = -\lambda(d_p)n(d_p) \quad (4.1)$$

$\lambda(d_p)$  bedeutet hier die vom Partikeldurchmesser  $d_p$  abhängige Partikelverlustrate in  $\text{s}^{-1}$  infolge des Auswaschprozesses. Um die Verlustrate abzuleiten, betrachtet man einen durch die Atmosphäre fallenden Niederschlagstropfen. Dieser spannt bei seinem Fall einen Zylinder auf. Wird davon ausgegangen, dass der Tropfen alle sich in diesem Zylinder befindenden



**Abbildung 4.1:** Schematische Darstellung zur Interpretation der Kollisionseffizienz

Partikel einsammelt, so kollidiert der Tropfen des Durchmessers  $D_D$  und der Fallgeschwindigkeit  $v_t(D_D)$  mit allen Aerosolpartikeln des Durchmessers  $d_p$  und der Fallgeschwindigkeit  $v_{Par}(d_p)$ , die sich mit ihrem geometrischen Mittelpunkt in dem Kollisionszylinder des Durchmessers  $D_D + d_p$  und des Volumens pro Zeiteinheit  $V_{Koll}$

$$V_{Koll}(d_p, D_p) = \frac{\pi}{4} (D_D + d_p)^2 |v_t(D_d) - v_{Par}(d_p)| \quad (4.2)$$

befinden. Der Querschnitt dieses Zylinders  $A_{geo} = \pi (D_D + d_p)^2$  wird allgemein als geometrischer Wirkungsquerschnitt bezeichnet.

Das Problem dieser vereinfachten Betrachtung besteht darin, dass der fallende Tropfen eine Störung des ihn umgebenden Strömungsfeldes verursacht. Die Stromlinien divergieren im Nahbereich des Tropfens (Abbildung 4.1). Bei Annäherung der Aerosolpartikel an den Tropfen werden die Partikeltrajektorien abgelenkt. Dies führt dazu, dass nicht alle Aerosolpartikel im geometrischen Wirkungsquerschnitt mit dem Tropfen kollidieren. Weitere Beeinflussungen der Partikeltrajektorien ergeben sich aus einer Vielzahl von physikalischen Prozessen, die den spezifischen Eigenschaften der Partikel und Tropfen (z.B. elektrische Ladung, Beweglichkeit, Durchmesser) sowie dem Zustand der Atmosphäre (z.B. Turbulenz, Wasserdampfättigung) zuzuordnen sind.

Die Prognose der Partikeltrajektorien ist ein kompliziertes strömungsdynamisches Problem. Eine oft angewandte Methode, um die die Partikel-Tropfen-Kollisionen beeinflussenden Prozesse in der Berechnung der Partikelverlustrate zu berücksichtigen, ist die Verwendung der so genannten Kollisionseffizienz  $E$ . Eine Möglichkeit der Interpretation der Kollisionseffizienz eines Tropfens ist in (Abbildung 4.1) veranschaulicht. Wird eine Fläche  $A_{eff}$  in einiger Entfernung zum Tropfen im vom Tropfen unbeeinflusstem Strömungsfeld betrachtet, in dem alle sich befindenden Partikel mit dem Tropfen des geometrischen Wirkungsquerschnittes  $A_{geo}$  kollidieren, so kann die Kollisionseffizienz definiert werden als

$E = A_{\text{eff}}/A_{\text{geo}}$ .  $A_{\text{eff}}$  wird in der Literatur auch als effektiver Wirkungsquerschnitt bezeichnet. Eine Kollisionseffizienz des Betrages Eins bedeutet dabei, dass alle Partikel, die sich in dem Kollisionszylinder Gleichung (4.2) befinden, mit dem Tropfen kollidieren. Der effektive Wirkungsquerschnitt wäre in diesem Fall gleich dem geometrischen Wirkungsquerschnitt. Die Kollisionseffizienz kann unter bestimmten Bedingungen größer als Eins sein, beispielsweise wenn elektrische Wechselwirkungen zwischen Partikeln und Tropfen auftreten. Im Allgemeinen gilt jedoch  $0 < E < 1$ .

Die Anzahl an Kollisionen  $N_{\text{Koll}}$  pro Zeiteinheit zwischen Partikeln der Durchmesser im Intervall  $[d_p, d_p + dd_p]$  und einem Tropfen des Durchmessers  $D_D$  ist unter Berücksichtigung von Gleichung (4.2) und mit der Kollisionseffizienz gegeben durch:

$$N_{\text{Koll}} = \frac{\pi}{4} (D_D + d_p)^2 |v_t(D_D) - v_{\text{par}}(d_p)| E(d_p, D_D) n(d_p) dd_p. \quad (4.3)$$

Um die tatsächliche Anzahl der von einem Tropfen eingesammelten Partikel zu bestimmen, muss zusätzlich beachtet werden, dass Partikel, die mit dem Tropfen kollidieren, nicht zwangsläufig an ihm haften bleiben. Das Abprallen von Partikeln bei der Kollision mit einem Tropfen kann über die Retentionseffizienz  $\varepsilon$  berücksichtigt werden.

Die Anzahl aller von einer Tropfenanzahldichte  $n(D_D)$  eingesammelten Partikel pro Zeiteinheit und pro Volumeneinheit ergibt sich durch Integration der Gleichung (4.2) über die Größenverteilung der Tropfen und der Berücksichtigung der Retentionseffizienz  $\varepsilon$ :

$$R_{\text{Koll}}(d_p) = n(d_p) dd_p \int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} (D_D + d_p)^2 |v_t(D_D) - v_{\text{par}}(d_p)| \varepsilon E(d_p, D_D) n(D_D) dD_D. \quad (4.4)$$

Im Allgemeinen gilt, dass die Tropfen einen um mehrere Größenordnungen größeren Durchmesser haben als die Aerosolpartikel. Des Weiteren kann die Fallgeschwindigkeit der Aerosolpartikel gegenüber der Fallgeschwindigkeit der Regentropfen vernachlässigt werden. Daraus ergeben sich folgende Approximationen in Gleichung (4.4) Seinfeld und Pandis (1998):

$$D_D \gg d_p \rightarrow (D_D + d_p)^2 \approx D_D^2, \quad (4.5)$$

$$v_t(D_D) \gg v_{\text{par}}(d_p) \rightarrow v_t(D_D) - v_{\text{par}}(d_p) \approx v_t(D_D). \quad (4.6)$$

Unter Berücksichtigung dieser Approximationen ergibt sich für Gleichung (4.4):

$$R_{\text{Koll}}(d_p) = n(d_p) dd_p \int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} D_D^2 v_t(D_D) \varepsilon E(d_p, D_D) n(D_D) dD_D. \quad (4.7)$$

Die zeitliche Änderung einer Partikelverteilung lässt sich nun schreiben als:

$$-\frac{\partial n(d_p)}{\partial t} = n(d_p) \int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} D_D^2 v_t(D_D) \varepsilon E(d_p, D_D) n(D_D) dD_D. \quad (4.8)$$

Aus dem Vergleich der Gleichungen (3.1) und (3.8) erhält man für die Verlustrate  $\lambda(d_p)$ :

$$\lambda(d_p) = \int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} D_D^2 v_t(D_D) \varepsilon E(d_p, D_D) n(D_D) dD_D. \quad (4.9)$$

Experimentelle Studien von Weber (1969) sowie Pruppacher und Klett (1978) zeigten, dass die Wahrscheinlichkeit des Abprallens der Aerosolpartikel nach Kollision mit einem Regentropfen gering ist. Die Retentionseffizienz kann daher in guter Näherung Eins gesetzt werden.

#### 4.1.2 Die Kollisionseffizienz

Die theoretische Bestimmung der Kollisionseffizienz erweist sich als außerordentlich schwierig. Begründet ist dies zum Einen in der Verteilung der Aerosolpartikel über mehrere Größenordnungen und zum Anderen in der Vielzahl physikalischer Prozesse, welche die Partikel-Tropfen-Kollisionen beeinflussen.

Weitere Schwierigkeiten ergeben sich aus der turbulenten Struktur des Strömungsfeldes im Nahbereich eines Tropfens, verursacht durch z.B. Tropfenoszillation, Wirbelablösung und der Entstehung von Wellen. Die Wirkung der atmosphärischen Turbulenz auf die Partikel-Tropfen-Kollisionen ist noch weitgehend ungeklärt. Eine allgemeine Diskussion zum Einfluss der Turbulenz auf die Partikel-Tropfen-Kollision kann Pruppacher und Klett (1978) entnommen werden. Turbulente Effekte sollen im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter diskutiert werden.

Eine Möglichkeit die verschiedenen die Partikel-Tropfen-Kollisionen beeinflussenden Prozesse zu identifizieren, ergibt sich aus der Bestimmung der dimensionslosen Kennzahlen, welche in den zur Berechnung der Partikel-Tropfen-Kollisionen benötigten Gleichungen auftreten, wenn diese in dimensionsloser Form aufgeschrieben werden. Im Folgenden soll ein kurzer Überblick über diese Methodik gegeben werden. Für eine ausführliche Betrachtung sei an dieser Stelle auf die Arbeiten von Slinn (1977, 1983) verwiesen.

Um die Gleichungen für die Berechnung der Partikel-Tropfen-Kollisionen abzuleiten, können prinzipiell zwei unterschiedliche Herangehensweisen gewählt werden. Eine Möglichkeit ergibt sich aus der Betrachtung der Bewegung einzelner Partikel um einen Tropfen und der Bestimmung der Partikeltrajektorien. Eine zweite Möglichkeit ist die Betrachtung der Partikel-Tropfen-Kollisionen in einem kontinuierlichen Partikelstrom im Nahbereich eines Tropfens. Fuchs (1964) sowie Slinn und Shen (1971) zeigten, dass beide Formulierungen einander äquivalent sind.

Die grundlegenden Gleichungen in ihrer dimensionslosen Form, wobei alle in den Gleichungen enthaltenen Geschwindigkeiten mit der Tropfenfallgeschwindigkeit  $v_t(D_D)$  und die langenbehafteten Groen mit dem Tropfendurchmesser  $D_D$  entdimensioniert wurden, sind in der Form wie sie von Slinn (1983) angegeben wurden:

1. Die Bewegungsgleichung fur eine inkompressible Stromung fur stationare Bedingungen, d.h. einem Koordinatensystem fest zu einem unbeschleunigten Tropfen:

$$\mathbf{v}^* \cdot \nabla \mathbf{v}^* = -\frac{1}{Eu} \nabla p^* + \frac{1}{Re} \nabla^2 \mathbf{v}^* \quad (4.10)$$

Hier sind  $p^*$  der dynamische Druck und  $\mathbf{v}^*$  die dimensionslose Geschwindigkeit der Stromung. Die in Gleichung (4.10) auftretenden dimensionslosen Kennzahlen sind die Reynoldszahl  $Re$ , das Verhaltnis aus spezifischer Impulskonvektion zu spezifischer Impulsdiffusion

$$Re = \frac{D_D v_t(D_D) \rho_{air}}{2\mu_{air}} \quad (4.11)$$

sowie die Eulerzahl  $Eu$ , das Verhaltnis aus dynamischem Druck zu statischem Druck  $p_0$

$$Eu = \frac{\rho_{air} v_t^2(D_D)}{p_0} \quad (4.12)$$

$\rho_{air}$  und  $\mu_{air}$  kennzeichnen die Dichte und dynamische Viskositat der Luft.

2. Die Diffusionsgleichung fur die Partikel:

$$\mathbf{v}^* \cdot \nabla \mathbf{n} = \nabla \left( \frac{1}{Pe} \nabla \mathbf{n} - \mathbf{v}_{par}^* \mathbf{n} \right) \quad (4.13)$$

Hier bedeuten  $\mathbf{v}_{par}^*$  die dimensionslose Partikeldriftgeschwindigkeit und  $\mathbf{n}$  die Partikelanzahldichte. Die in Gleichung (4.13) enthaltene dimensionslose Pecletzahl  $Pe$  stellt das Verhaltnis des konvektiven zum diffusiven Stofftransport dar

$$Pe = \frac{D_D v_t(D_D)}{D_{diff}} = Re Sc \quad (4.14)$$

Sc symbolisiert die Partikel-Schmidtzahl, welche sich unter Verwendung des Diffusionskoeffizienten der Partikel  $D_{\text{diff}}$  berechnen lässt aus

$$Sc = \frac{\mu_{\text{air}}}{\rho_{\text{air}} D_{\text{diff}}}, \quad (4.15)$$

mit dem Diffusionskoeffizienten nach Einstein (1905):

$$D_{\text{diff}} = \frac{k_b T_{\text{air}} C_C}{3\pi\mu_{\text{air}} d_p}. \quad (4.16)$$

In Gleichung (4.16) bedeuten  $k_b$  die Boltzmannkonstante und  $T_{\text{air}}$  die Lufttemperatur. Der in Gleichung (4.16) auftretende Cunninghamkorrekturfaktor  $C_C$  berücksichtigt die an der Oberfläche kleiner Partikel (Partikel mit Durchmessern kleiner als  $1 \mu\text{m}$ ) von null verschiedenen Geschwindigkeiten der Gasmoleküle. Die Haftbedingung für die Gasmoleküle an der Partikeloberfläche kann somit nicht mehr aufrecht erhalten werden, es tritt ein Schlupf (Slip) an der Oberfläche auf resultierend in einer Verminderung der Widerstandskraft. Friedlander (1977) formulierte folgende Gleichung zur Berechnung von  $C_C$  als Funktion der mittleren freien Weglänge in Luft  $\lambda_{\text{air}}$  und dem Partikeldurchmesser  $d_p$

$$C_C = 1 + 2,493 \frac{\lambda_{\text{air}}}{d_p} + 0,84 \frac{\lambda_{\text{air}}}{d_p} \exp(-0,435 \frac{d_p}{\lambda_{\text{air}}}). \quad (4.17)$$

3. Die Bewegungsgleichung für die Partikel in der approximierten Form:

$$\mathbf{u}^*(d_p) \cdot \nabla \mathbf{u}^*(d_p) = -\frac{\mathbf{v}_{\text{Par}}^*(d_p)}{St} + \frac{D_D}{v_t^2(D_D)} \mathbf{F}. \quad (4.18)$$

$\mathbf{u}^*(d_p)$  repräsentiert hier den dimensionslosen Geschwindigkeitsvektor der Partikel, der Summe aus Strömungsgeschwindigkeit  $\mathbf{v}^*$  und Partikeldriftgeschwindigkeit  $\mathbf{v}_{\text{Par}}^*$ . Auf die Partikel wirkende externe Kräfte, wie beispielsweise elektrostatische Kräfte, sind in dem Symbol  $\mathbf{F}$  zusammengefasst. Die dimensionslose Stokeszahl St, das Verhältnis der Widerstandskraft zur Reibung, berechnet sich aus

$$St = \frac{2\tau_{\text{par}} v_t(D_D)}{D_D}, \quad (4.19)$$

mit der Partikelrelaxationszeit  $\tau_{\text{par}}$ , welche ein Maß zur Charakterisierung des Trägheitsverhaltens der Partikel darstellt:

$$\tau_{\text{Par}} = \rho_p d_p^2 / (18 \mu_{\text{air}}). \quad (4.20)$$

In Gleichung (4.20) ist  $\rho_p$  die Partikeldichte.

Zwei weitere dimensionslose Größen, die nicht explizit in den Gleichungen (4.10), (4.13) und (4.18) enthalten sind, aber dennoch bei der dimensionslosen Betrachtung des Partikel-Tropfen-Kollisionsprozesses auftreten, sind das Verhältnis des Partikeldurchmessers zum Tropfendurchmesser  $\Phi = d_p/D_D$  und das Verhältnis der dynamischen Viskositäten für Wasser und Luft  $W = \mu_w/\mu_{\text{air}}$ . Letzteres findet zusätzlich Beachtung bei Berücksichtigung von im Tropfen auftretenden Zirkulationen und deren Wirkung auf das Strömungsfeld im Nahbereich eines Tropfens.

Die dimensionslosen Gleichungen (4.10), (4.13) und (4.18) zeigen, dass die Kollisionseffizienz von einer Vielzahl von Parametern abhängen kann. Nach der dimensionslosen Betrachtung kann davon ausgegangen werden, dass die Kollisionseffizienz  $E$  eine Funktion von sechs dimensionslosen Kennzahlen ist

$$E = E(\text{Re}, \text{Eu}, \text{Sc}, \Phi, W, \text{St}), \quad (4.21)$$

der Reynoldszahl  $\text{Re}$ , der Eulerzahl  $\text{Eu}$ , der Partikel-Schmidtzahl  $\text{Sc}$ , der Stokeszahl  $\text{St}$ , dem Verhältnis aus Partikeldurchmesser und Tropfendurchmesser  $\Phi$  sowie dem Verhältnis der dynamischen Viskositäten für Wasser und Luft  $W$ .

Slinn entwickelte basierend auf den angeführten dimensionslosen Betrachtungen, auf den Abhängigkeiten (4.21) und unter Verwendung experimentell ermittelter Daten eine semiempirische Formel zur Berechnung der Kollisionseffizienz. Jene soll im Folgenden vorgestellt werden. Für eine ausführliche Betrachtung sei auf die Arbeiten von Slinn (1977, 1983) verwiesen. Als dominierende die Partikel-Tropfen-Kollisionen beeinflussenden physikalische Prozesse gab Slinn die Brownsche Diffusion, die Interzeption und die Trägheitsimpaktion an. Diese Prozesse werden im Folgenden erläutert.

Als Brownsche Partikelbewegung wird in Anlehnung zur Brownschen Molekularbewegung die in einem beliebigen Aerosolvolumen zu beobachtende ungerichtete mikroskopische Partikelbewegung bezeichnet. Diese Partikelbewegung ist in dem Impulsaustausch zwischen den dispergierten Partikeln und den sich statistisch bewegenden Gasmolekülen begründet. Treten Konzentrationsgradienten innerhalb des betrachteten Aerosolvolumens auf, so bewirkt die mikroskopisch ungerichtete Partikelbewegung einen makroskopischen Nettopartikelfluss von hohen zu niedrigen Konzentrationen hin. Dieser Effekt wird als Brownsche Diffusion bezeichnet. Aerosolpartikel können aufgrund dieser ungeordneten Partikelbewegung in Kontakt mit den Regentropfen kommen. Die Kollisionseffizienz wird hierdurch erhöht. Je kleiner dabei die Partikel sind, desto größer ist der Einfluss der Brownschen Diffusion auf die

Partikel-Tropfen-Kollisionen. Der Beitrag der Brownschen Diffusion zur Kollisionseffizienz ist nach Slinn (1977, 1983) gegeben durch:

$$E_{BD}(d_p, D_D) = \frac{1}{ReSc} \left( 1 + 0,4 Re^{\frac{1}{2}} Sc^{\frac{1}{3}} + 0,16 Re^{\frac{1}{2}} Sc^{\frac{1}{2}} \right). \quad (4.22)$$

Eine weitere Beeinflussung der Partikel-Tropfen-Kollisionen ergibt sich aus der geometrischen Größe der Partikel. Aerosolpartikel, welche den im Nahbereich eines Regentropfens stark gekrümmten Stromlinien folgen, ohne von ihnen abzuweichen, kollidieren aufgrund ihrer geometrischen Größe mit dem Tropfen, wenn der Abstand des Tropfens zu der Stromlinie auf der sich die Partikel mit ihrem Mittelpunkt befinden maximal die Hälfte des Partikeldurchmessers beträgt. Dieser Kollisionsmechanismus wird als Interzeption bezeichnet. Der Beitrag der Interzeption zur Kollisionseffizienz ist nach Slinn (1977, 1983) gegeben durch:

$$E_{Int}(d_p, D_D) = 4 \Phi \left( W + (1 + Re^{\frac{1}{2}}) \Phi \right). \quad (4.23)$$

Des Weiteren wird die Anzahl der Partikel-Tropfen-Kollisionen zusätzlich erhöht durch Partikel, die aufgrund ihrer Trägheit den gekrümmten Stromlinien nicht folgen können und demzufolge mit dem Tropfen kollidieren. Dieser von der Masse des Partikels abhängige Effekt wird als Trägheitsimpaktion bezeichnet. Der Einfluss der Impaktion auf das Einsammeln der Aerosolpartikel wird umso bedeutender, je größer die Aerosolpartikel sind. Es ist der dominierende Kollisionsmechanismus für Partikel, deren Durchmesser größer als 1  $\mu\text{m}$  beträgt. In klassischen Parametrisierungen des Auswaschens wird oftmals die Impaktion als einziger Auswaschmechanismus betrachtet. Der Einfluss der Trägheitsimpaktion auf die Kollisionseffizienz ist gegeben durch (Slinn, 1977, 1983):

$$E_{Imp}(d_p, D_D) = \left( \frac{\rho_w}{\rho_p} \right)^{\frac{1}{3}} \left( \frac{St - S^*}{St - S^* + \frac{2}{3}} \right)^{\frac{3}{2}}. \quad (4.24)$$

$S^*$  symbolisiert hier die kritische Stokeszahl, welche als untere Grenze der Impaktion angesehen werden kann. Dabei gilt: für Stokeszahlen  $St$  unter der kritischen Stokeszahl  $S^*$  findet keine Impaktion statt. Für die kritische Stokeszahl gab Slinn folgende empirische Formel an:

$$S^* = \frac{1,2 + \frac{1}{12} \ln(1 + Re)}{1 + \ln(1 + Re)}. \quad (4.25)$$

Experimentelle Laborstudien bestätigten eine gute Übereinstimmung der aus den Gleichungen (4.22) bis (4.24) abgeleiteten Kollisionseffizienzen für Partikel der Durchmesser kleiner als  $0,1 \mu\text{m}$  und für Partikel der Durchmesser größer als  $1 \mu\text{m}$ . Im mittleren Größenbereich zeigten die experimentell ermittelten Effizienzen zum Teil große Abweichungen von den berechneten. Auch aus Feldmessungen der Verlustrate abgeleitete Effizienzen können für Partikel im mittleren Größenbereich nicht erklärt werden (z.B. Dana und Hales, 1976). Es ist daher anzunehmen, dass die bisher betrachteten physikalischen Prozesse nicht ausreichen, das Phänomen des Auswaschens zu beschreiben.

Einige Autoren (z.B. Davenport und Peters, 1978; Pruppacher und Klett, 1988, Andronache, 2003) zeigten, dass unter Berücksichtigung phoretischer Effekte wesentlich bessere Übereinstimmungen der berechneten Kollisionseffizienzen mit in Labormessungen ermittelten erzielt werden können. Phoretische Effekte resultieren vor allem aus Evaporation oder Kondensation am Tropfen. Tritt Evaporation am Tropfen auf, so bewirkt diese zum Einen aufgrund der Energie, die beim Phasenübergang von flüssigem Wasser zu Wasserdampf verbraucht wird, eine Abkühlung des Tropfens relativ zu der ihn umgebenden Luft, zum Anderen einen effektiven Wasserdampfstrom weg vom Tropfen. Analog bewirkt Kondensation am Tropfen eine Erwärmung des Tropfens relativ zu der ihn umgebenden Luft und einen relativen Wasserdampfstrom hin zum Tropfen. Im Nahbereich des Tropfens treten somit Temperaturgradienten in der Luft und Konzentrationsgradienten im Wasserdampfgebiet auf.

Diese auftretenden Gradienten verursachen Wechselwirkungen zwischen den Partikeln und dem sie umgebenden Gas. Es resultieren radiometrische Effekte, welche die Partikelbewegung beeinflussen. Je nach Art des in der Gasphase vorhandenen Gradienten wird die aus den auftretenden Kräften resultierende Partikelbewegung als Thermophorese (Temperaturgradient) oder Diffusiophorese (Konzentrationsgradient) bezeichnet. Phoretische Kräfte sind sehr klein und für makroskopische Objekte unbedeutend. Sie üben jedoch aufgrund der hohen Beweglichkeit speziell submikroner Aerosolpartikel eine signifikante Wirkung auf das Verhalten von Aerosolen aus.

Die thermophoretische Kraft für kleine Partikel, d.h. für Partikel der Durchmesser wesentlich kleiner als die mittlere freie Weglänge des umgebenden Gases, resultiert aus dem Impulsaustausch zwischen Partikeln und den sie umgebenden Gasmolekülen. Diese Asymmetrie des Impulsaustausches erklärt sich dadurch, dass auf den „heißen“ Seiten der Partikel die thermischen Molekülgeschwindigkeiten und damit verbundenen kinetischen Energien der Gasmoleküle höher sind als auf kalten Seiten der Partikel.

Für große Partikel wird die thermophoretische Kraft durch mikroskopische Gasströmungen an der Partikeloberfläche hervorgerufen. Zwischen Partikeloberfläche und der die Partikel umgebenden Luft entwickeln sich Temperaturgradienten, welche eine Gasströmung von kalten zu warmen Bereichen entlang der Partikeloberfläche verursachen. Daraus resultiert eine Kraft auf die Partikel in Richtung der „kalten“ Bereiche. In diesem Partikelgrößenbereich sind auch die Auswirkungen der Partikel auf das Temperaturfeld im umgebenden Gas und damit die Materialeigenschaften (insbesondere die Wärmeleitfähigkeit) der Partikel zu

berücksichtigen. Nach Waldmann und Schmitt (1966) werden bei der mathematischen Beschreibung der Partikelgeschwindigkeit  $v_{\text{Therm}}$ , resultierend aus der auf die Partikel wirkenden thermophoretischen Kraft, mehrere Bereiche unterschieden. Diese können mittels der Knudsenzahl  $Kn$ , dem Verhältnis des Durchmessers der Partikel  $d_p$  zur mittleren freien Weglänge  $\lambda_{\text{air}}$ , quantifiziert werden:

- freimolekularer Bereich für  $d_p \ll \lambda_{\text{air}}$  ( $Kn \gg 1$ ),
- Übergangsbereich für  $d_p \approx \lambda_{\text{air}}$  ( $Kn \approx 1$ ),
- Kontinuumsbereich für  $d_p \gg \lambda_{\text{air}}$  ( $Kn \ll 1$ ).

Davenport und Peters (1978) gaben eine Gleichung zur Berechnung des Beitrages der Thermophorese zu den Partikel-Tropfen-Kollisionen für alle drei Größenbereiche an. Dabei gingen die Autoren von folgender Approximation der Kollisionseffizienz aus:

$$E_i = \frac{4v_i(d_p)}{v_t(D_D)}, \quad (4.26)$$

wobei hier  $v_i(d_p)$  die Partikeldriftgeschwindigkeit resultierend aus der auf die Partikel wirkenden Kraft des jeweiligen betrachteten physikalischen Prozess repräsentiert. Der Beitrag der Thermophorese zur Kollisionseffizienz  $E_{\text{Therm}}$  lässt sich somit berechnen aus (Davenport und Peters, 1978):

$$E_{\text{Therm}}(d_p, D_D) = \frac{4\alpha_{\text{Therm}}(2 + 0,6\text{Re}^{1/2}\text{Pr}^{1/3})(T_{\text{air}} - T_S)}{5 p v_t(D_D) D_D}. \quad (4.27)$$

In Gleichung (4.27) sind  $T_{\text{air}}$  die Temperatur der Luft,  $T_S$  die Temperatur an der Tropfenoberfläche und  $p$  der Luftdruck. Die dimensionslose Prandtlzahl für Luft  $Pr$  berechnet sich aus:

$$Pr = \frac{c_{\text{Pair}} \mu_{\text{air}}}{k_{\text{air}}}. \quad (4.28)$$

Hier symbolisieren  $k_{\text{air}}$  die Wärmeleitfähigkeit der Luft und  $c_{\text{Pair}}$  die spezifische Wärmekapazität der Luft bei konstantem Druck. Das Symbol  $\alpha_{\text{Therm}}$  repräsentiert in Gleichung (4.27) den thermophoretischen Koeffizient, welcher je nach zu unterscheidendem Größenbereich unterschiedlich definiert ist. Eine derartige Unterscheidung ist vom physikalischen Standpunkt aus betrachtet zwar durchaus sinnvoll, erweist sich jedoch bei der Berücksichtigung thermophoretischer Effekte in komplexen mathematischen Modellen als unpraktisch. Untersuchungen von Talbot (1980) ergaben eine für den gesamten Partikelgrößenbereich gültige Beziehung für den thermophoretischen Koeffizienten. Demnach kann der thermophoretische Koeffizient berechnet werden aus:

$$\alpha_{\text{Therm}} = 2c_s \frac{k^* + c_t \text{Kn}}{(1 + 3c_m \text{Kn})(1 + 2k^* + 2c_t \text{Kn})} C_c. \quad (4.29)$$

In Gleichung (4.28) sind  $k^* = k_{\text{air}}/k_p$  das Verhältnis der Wärmeleitfähigkeit von Luft  $k_{\text{air}}$  zur Wärmeleitfähigkeit der Partikel  $k_p$  und  $c_m$ ,  $c_s$ ,  $c_t$  Konstanten, die nach Batchelor und Shen (1985) die folgenden Werte annehmen:

$$c_m = 1,146 \quad , \quad c_s = 1,147 \quad , \quad c_t = 2,20.$$

Auf Aerosolpartikel wirkende diffusiophoretische Kräfte treten auf, wenn Evaporation oder Kondensation am Tropfen auftreten. Wird ein evaporierender Tropfen betrachtet, so existiert ein Nettowasserdampfstrom weg von der Tropfenoberfläche. Die Wasserdampfkonzentration nimmt mit zunehmender Entfernung vom Tropfen ab und es entstehen Wasserdampfkonzentrationsgradienten. Gleichzeitig müssen sich Luftmoleküle hin zum Tropfen bewegen um die Wassermoleküle zu ersetzen. In diesem molekularen Strom suspendierte Aerosolpartikel kollidieren mit den Wassermolekülen und werden vom Tropfen weggedrängt, gleichzeitig werden die Partikel aufgrund der Kollisionen mit den Luftmolekülen zum Tropfen hin gedrängt. Da die Luftmoleküle „massiver“ sind als die Wassermoleküle ergibt sich ein Nettopartikelstrom hin zum Tropfen, der eine Erhöhung der Kollisionseffizienz bewirkt. Eine Gleichung für die Berechnung der von der Diffusiophorese beeinflussten Partikel-Tropfen-Kollisionen wurde von Davenport und Peters (1978) abgeleitet. Demnach ist, basierend auf der Approximation der Kollisionseffizienz nach Gleichung (4.26), der Beitrag der Diffusiophorese zur Kollisionseffizienz  $E_{\text{Diff}}$  gegeben durch (Davenport und Peters, 1978):

$$E_{\text{Diff}}(d_p, D_D) = \frac{4\beta_{\text{Diff}} \left(2 + 0,6\text{Re}^{1/2} S_{\text{cw}}^{1/3}\right) \left(\frac{p_{0s}}{T_s} - \frac{p_{0\text{air}} \text{RH}}{T_{\text{air}}}\right)}{v_t(D_D) D_D}. \quad (4.30)$$

$S_{\text{cw}}$  symbolisiert hier die Schmidtzahl für den Wasserdampf in Luft

$$S_{\text{cw}} = \frac{\mu_{\text{air}}}{\rho_{\text{air}} D_w}, \quad (4.31)$$

mit  $D_w$  dem Diffusionskoeffizient für den Wasserdampf. Weiterhin bedeuten in Gleichung (4.30) RH die Relative Feuchte und  $p_{0s}$  und  $p_{0\text{air}}$  die Wasserdampfdrücke bei den Temperaturen  $T_s$  und  $T_{\text{air}}$ . Der diffusiophoretische Koeffizient  $\beta_{\text{Diff}}$  berechnet sich aus:

$$\beta_{\text{Diff}} = \frac{T_{\text{air}} D_w}{p} \left(\frac{M_w}{M_{\text{air}}}\right)^{1/2}. \quad (4.32)$$

Hier sind  $M_W$  und  $M_{\text{air}}$  die Molekulargewichte des Wassers und der Luft.

Wie schon erwähnt, ergibt sich eine zusätzliche Beeinflussung der Partikeltrajektorien und somit der Partikel-Tropfen-Kollisionen durch Auftreten elektrischer Kräfte. Diese Kräfte resultieren aus elektrischer Ladung der Partikel und Tropfen und/oder aus der Präsenz eines äußeren elektrischen Feldes. Davis (1964) erarbeitete eine Formel zur Bestimmung der auf einen Partikel wirkenden elektrischen Kraft auf Basis der Betrachtung zweier elektrisch geladener Kugeln suspendiert in einem äußeren elektrischen Feld. Weitere analytische Studien (beispielsweise Grover et al., 1977) zeigten, dass unter atmosphärischen Bedingungen die auf die Partikel wirkende Kraft durch die Präsenz eines äußeren elektrischen Feldes gegenüber der wirkenden Kraft aufgrund der elektrischen Ladung der Partikel und Tropfen vernachlässigt werden kann. Eine Gleichung zur Berechnung der durch die Anziehung aufgrund elektrischer Ladung der Partikel und Tropfen verursachten Partikel-Tropfen-Kollisionen wurde von Adam und Semonin (1970). Unter Verwendung der Approximation (4.26) kann der Beitrag der elektrischen Anziehung zur Kollisionseffizienz  $E_e$  unter Vernachlässigung eines äußeren elektrischen Feldes berechnet werden aus (Adam und Semonin, 1970)

$$E_e(d_p, D_D) = \frac{16KC_c q_D q_P}{3\pi\mu_{\text{air}} D_D^2 d_p v_t(D_D)}, \quad (4.33)$$

mit der Konstante  $K = 9 \cdot 10^9 \text{ Nm}^2\text{C}^{-2}\text{s}^{-1}$ .  $q_D$  und  $q_P$  symbolisieren die elektrische Ladung des Tropfens und des Partikels, welche aus folgenden Beziehungen abgeleitet werden können (Pruppacher und Klett, 1978; Andronache, 2006)

$$q_P = a \alpha d_p^2, \quad (4.34)$$

$$q_D = a \alpha D_D^2. \quad (3.35)$$

Hier sind  $a = 0,83 \cdot 10^{-6}$  und  $\alpha$  empirische Parameter, welcher zwischen 0 für neutrale Partikel und 7 für stark geladene Partikel (Partikel in Gewitterwolken) variieren kann (Pruppacher und Klett, 1978).

Die resultierende Kollisionseffizienz  $E_{\text{ges}}$ , welche sich aus dem Auftreten der physikalischen Mechanismen Brownsche Diffusion, Interzeption, Impaktion, Thermophorese, Diffusiophorese und der Anziehung aufgrund elektrischer Ladung der Partikel und Tropfen ergibt, kann nun durch einfaches Aufsummieren der Gleichungen (4.22), (4.23), (4.24), (4.27), (4.33) und (4.33) abgeleitet werden (Slinn, 1977,1983; Davenport und Peters, 1978; Andronache, 2006):

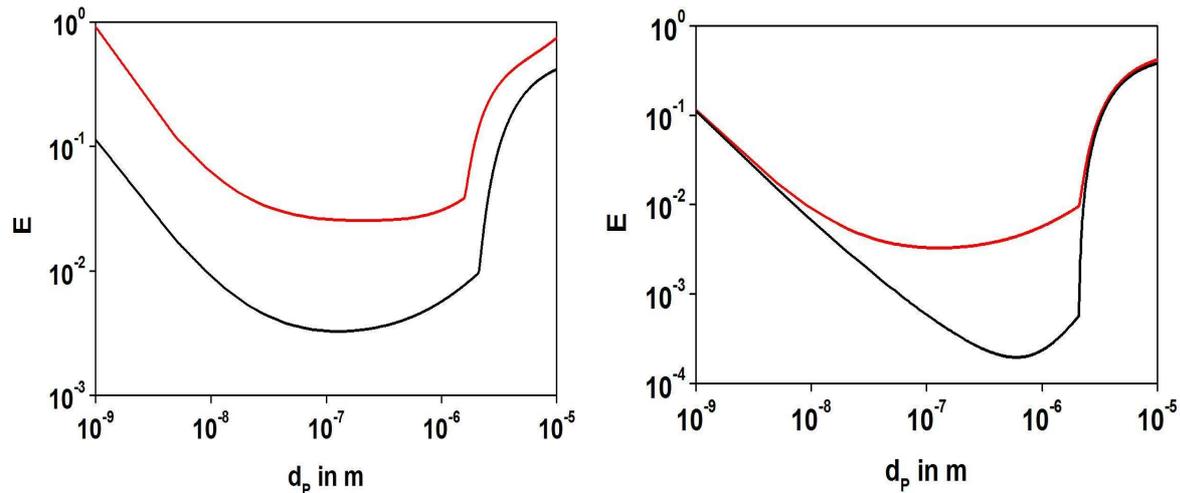
$$\begin{aligned}
E_{\text{ges}} &= E_{\text{BD}} + E_{\text{Int}} + E_{\text{Imp}} + E_{\text{Therm}} + E_{\text{Diff}} + E_e \\
&= \frac{1}{\text{ReSc}} \left( 1 + 0,4\text{Re}^{1/2}\text{Sc}^{1/3} + 0,16\text{Re}^{1/2}\text{Sc}^{1/2} \right) \\
&\quad + 4 \frac{d_p}{D_d} \left( \frac{\mu_{\text{air}}}{\mu_w} + (1 + \text{Re}^{1/2}) \frac{d_p}{D_d} \right) \\
&\quad + \left( \frac{\rho_w}{\rho_p} \right)^{1/2} \left( \frac{\text{St} - \text{S}^*}{\text{St} - \text{S}^* + \frac{2}{3}} \right)^{3/2} \\
&\quad + \frac{4\alpha_{\text{Therm}} (2 + 0,6\text{Re}^{1/2}\text{Pr}^{1/3}) (T_{\text{air}} - T_s)}{5 p v_t(D_D) D_D} \\
&\quad + \frac{4\beta_{\text{Diff}} (2 + 0,6\text{Re}^{1/2}\text{S}_{\text{cw}}^{1/3}) \left( \frac{p_{0s}}{T_s} - \frac{p_{0\text{air}} \text{RH}}{T_{\text{air}}} \right)}{v_t(D_D) D_D} \\
&\quad + \frac{16\text{KC}_c a^2 \alpha^2 d_p}{3\pi \mu_{\text{air}} v_t(D_D)} \quad . \quad (4.36)
\end{aligned}$$

Im folgenden Abschnitt soll die Kollisionseffizienz wie sie durch Gleichung (4.36) gegeben ist, diskutiert werden.

### 4.1.3 Diskussion der Kollisionseffizienz

Bei der Diskussion der Kollisionseffizienz  $E_{\text{ges}}$  nach Gleichung (4.36) soll zunächst der Einfluss der Tropfengröße sowie der Einfluss der phoretischen und elektrischen Mechanismen auf die Partikel-Tropfen-Kollisionen untersucht werden.

In der Abbildung (4.2) ist die Kollisionseffizienz  $E_{\text{ges}}$  als Funktion des Partikelradius  $d_p$  dargestellt. Dabei zeigt die linke Abbildung die Kollisionseffizienz für einen Tropfen des Durchmessers 0,1 mm im Vergleich zu einem Tropfen des Durchmessers 1 mm. Für die Berechnungen wurden eine Relative Feuchte von 60 %, eine Abkühlung der Tropfenoberfläche im Vergleich zur Umgebungsluft von 5 K und für den Beitrag der elektrischen Kräfte ein empirischer Parameter  $\alpha$  von 5 angenommen. Für die Lufttemperatur  $T_{\text{air}}$  wurde ein Wert von 283 K und für den Luftdruck  $p$  ein Wert von 1000 hPa gewählt.



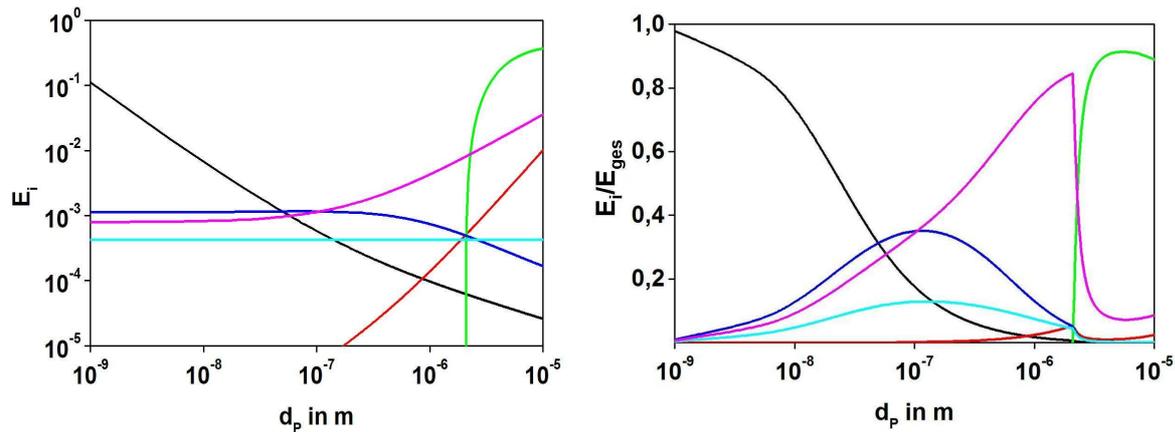
**Abbildung 4.2:** Links: Kollisionseffizienz  $E_{\text{ges}}$  als Funktion des Partikelradius berechnet für einen Tropfen mit 0.1 mm Durchmesser (rot) und einem Tropfen mit 1 mm Durchmesser (schwarz). Rechts: Kollisionseffizienzen  $E_{\text{ges}}$  (Gl. 4.36) rote Kurve und  $E^*$  (Gl. 4.37) schwarze Kurve, als Funktion des Partikelradius für einen Tropfen mit 1 mm Durchmesser.

Die Kollisionseffizienz zeigt eine hohe Variabilität in Abhängigkeit von Partikel- und Tropfendurchmesser. Sehr kleine Partikel  $d_p < 10 \text{ nm}$  und sehr große Partikel  $d_p > 10 \text{ }\mu\text{m}$  werden sehr effizient ausgewaschen. In diesen Größenbereichen kollidieren nahezu alle Partikel im geometrischen Wirkungsquerschnitt mit dem Tropfen. Die Kollisionseffizienz zeigt ein Minimum im Partikelgrößenbereich um 100 nm. Dieses Minimum wurde schon von Greenfield (1957) quantifiziert und wird in der Literatur auch Greenfield Minimum genannt. Die Singularität der Kollisionseffizienz bei einem Partikeldurchmesser von etwa  $2 \text{ }\mu\text{m}$  ist eine Folge des Eintretens der Impaktion bei Stokeszahlen gleich der kritischen Stokeszahl. Weiter zeigt sich, dass die Effizienz mit kleiner werdendem Tropfendurchmesser zunimmt. Um den Beitrag der phoretischen und elektrischen Prozesse zur Kollisionseffizienz zu quantifizieren sind in der Abbildung 4.2 rechts die Gesamtkollisionseffizienz  $E_{\text{ges}}$  sowie die Kollisionseffizienz  $E^*$  unter Vernachlässigung der phoretischen und elektrischen Prozesse mit

$$E^* = E_{\text{BD}} + E_{\text{Int}} + E_{\text{Imp}}, \quad (4.37)$$

dargestellt. Die Berechnung von  $E_{\text{ges}}$  und  $E^*$  erfolgte mit einem Tropfendurchmesser von 1 mm. Hier zeigt sich eine von den phoretischen und elektrischen Prozessen verursachte deutliche Erhöhung der Kollisionseffizienz im Bereich des Greenfield Minimums.

Die Einzeleffizienzen  $E_{\text{BD}}$ ,  $E_{\text{Int}}$ ,  $E_{\text{Imp}}$ ,  $E_{\text{Therm}}$ ,  $E_{\text{Diff}}$  und  $E_e$  sowie das Verhältnis der Einzeleffizienzen zur Gesamteffizienz  $E_i/E_{\text{ges}}$  sind als Funktion des Partikelradius für einen Tropfen mit 1 mm Durchmesser in der Abbildung (4.3) dargestellt. Hier zeigt sich, dass die Brownsche Diffusion (in Abbildung 4.3 schwarz) die sehr hohe Kollisionseffizienz im Partikelgrößenbereich kleiner als 10 nm dominiert. Die Begründung liegt hier in der sehr hohen Brownschen Diffusion kleiner Partikel mit Durchmessern kleiner als 10 nm. Mit zunehmendem Partikeldurchmesser verringert sich die Brownsche Diffusion und der Prozess

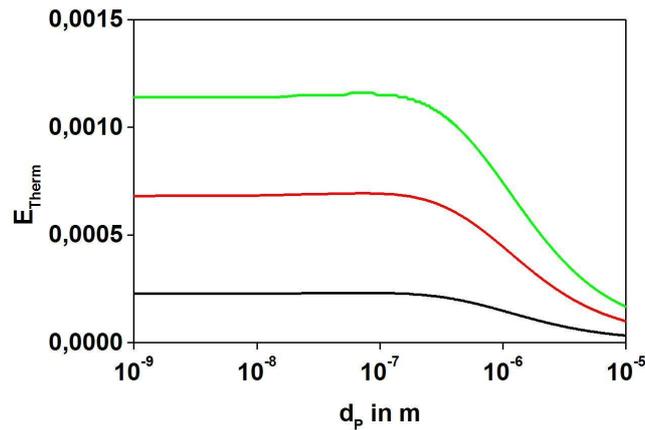


**Abbildung 4.3:** Links: Kollisionseffizienzen der einzelnen wirksamen Prozesse nach Gleichungen 4.8-4.13 als Funktion des Partikeldurchmessers. Rechts: Verhältnis der Einzeleffizienzen zur Gesamteffizienz als Funktion des Partikeldurchmessers. In den Abbildungen sind schwarz  $E_{BD}$ , rot  $E_{Int}$ , grün  $E_{Imp}$ , magenta  $E_e$ , blau  $E_{Therm}$  und türkis  $E_{Diff}$  dargestellt.

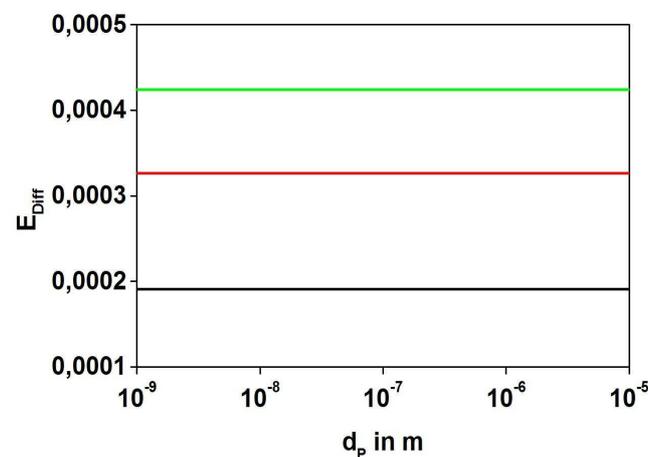
verliert seinen die Kollisionen dominierenden Charakter. Der Größenbereich im Bereich des Greenfield Minimums wird von den phoretischen und elektrischen Effekten dominiert. Wobei hier die Thermophorese unter den gewählten Parametern überwiegt. Sie ist für Partikel kleiner als 100 nm konstant. Für größere Partikel nimmt der Wert der Thermophorese ab. Der Beitrag der Thermophorese zur Gesamtkollisionseffizienz zeigt ein Maximum für Partikel des Durchmessers von etwa 100 nm.

Die Diffusiophorese (in den Abbildungen 4.3 hellblau) wird nur von den Eigenschaften des Tropfens und der ihn umgebenden Luft bestimmt. Sie ist unabhängig vom Partikeldurchmesser. Der Beitrag zur Kollisionseffizienz zeigt ähnlich jener der Thermophorese ein Maximum bei Partikeldurchmessern um 100 nm, liegt aber deutlich unter dem der Thermophorese. Der Wert der elektrischen Effekte nimmt mit größer werdendem Partikeldurchmesser zu. Dies ist begründet in der direkten Proportionalität der Ladungsverteilung auf den Partikeln und Tropfen zu deren Durchmessern. Der Beitrag zur Gesamtkollisionseffizienz steigt mit zunehmendem Partikeldurchmesser bis zum Eintreten der Impaktion. Hier ist ein sprunghaftes Abnehmen der Beiträge aller Prozesse zu beobachten. Die Impaktion stellt für große Partikel mit Durchmessern größer als 2  $\mu\text{m}$  den dominierenden Kollisionsprozess dar.

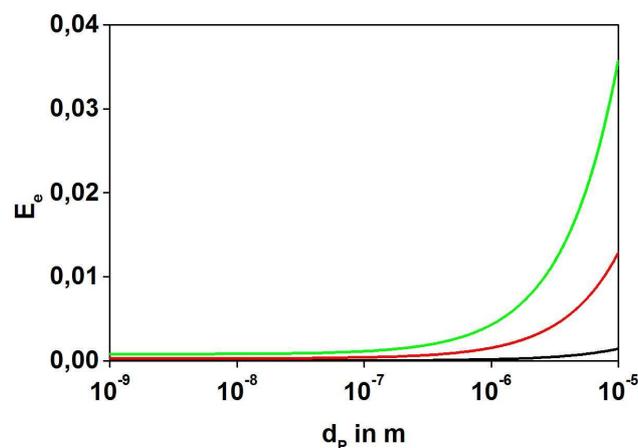
Im Folgenden wird die Sensitivität der durch Thermophorese, Diffusiophorese und elektrische Anziehung beeinflussten Partikel-Tropfen-Kollisionen auf die Parameter  $\Delta T$ , RH und  $\alpha$  untersucht. Die Abbildung (4.4) zeigt die Kollisionseffizienz als Funktion des Partikeldurchmessers für den Fall, dass die Partikel-Tropfen-Kollisionen nur von der Thermophorese bestimmt werden, also  $E_{ges} = E_{Therm}$ . Für die Berechnung der Kollisionseffizienz wurden verschiedene Temperaturdifferenzen zwischen Tropfenoberfläche und umgebender Luft von  $\Delta T = 1 \text{ K}$ , 3 K und 5 K angenommen. Wie zu erwarten war,



**Abbildung 4.4:** Die von der Thermophorese bestimmte Kollisionseffizienz als Funktion des Partikeldurchmessers für verschiedene Temperaturdifferenzen  $\Delta T$  zwischen Tropfenoberfläche und umgebender Luft ( $\Delta T = 1$  K schwarz, 3 K rot und 5 K grün).



**Abbildung 4.5:** Die von der Diffusiophorese bestimmte Kollisionseffizienz als Funktion des Partikeldurchmessers für verschiedene Relative Feuchten RH und Temperaturdifferenzen  $\Delta T$  zwischen Tropfenoberfläche und umgebender Luft (RH = 90 % und  $\Delta T = 1$  K schwarz, RH = 75 % und  $\Delta T = 3$  K rot sowie RH = 60 % und  $\Delta T = 5$  K grün).



**Abbildung 4.6:** Die von der elektrischen Anziehung bestimmte Kollisionseffizienz als Funktion des Partikeldurchmessers für verschiedene Ladungsverteilungen ( $\alpha = 1$  schwarz, 3 rot und 5 grün).

verzeichnet die durch die Thermophorese bestimmte Kollisionseffizienz eine Zunahme mit zunehmender Temperaturdifferenz.

Die Kollisionseffizienz für den Fall, dass nur die Diffusiophorese als Partikel-Tropfen-Kollisionen bestimmender Prozess auftritt, ist in Abbildung (4.5) illustriert, also  $E_{\text{ges}} = E_{\text{Diff}}$ . Dabei wurde die Effizienz für Relative Feuchten von  $RH = 60\%$  mit einer Temperaturdifferenz von  $\Delta T = 5 \text{ K}$ , von  $RH = 75\%$  mit einer Temperaturdifferenz von  $\Delta T = 3 \text{ K}$  sowie von  $RH = 90\%$  mit einer Temperaturdifferenz von  $\Delta T = 1 \text{ K}$  berechnet. Die durch die Diffusiophorese bestimmte Kollisionseffizienz steigt mit abnehmender Relativer Feuchte und zunehmender Temperaturdifferenz zwischen Tropfenoberfläche und umgebender Luft. Dies ist begründet durch den mit abnehmender Relativer Feuchte zunehmendem Wasserdampfstrom weg vom Tropfen der durch Evaporation am Tropfen verursacht wird. Die Kollisionseffizienz der Diffusiophorese ist unabhängig vom Partikeldurchmesser.

Die Kollisionseffizienz, die sich aus der Betrachtung der elektrischen Kräfte ergibt, ist in Abbildung (4.6) dargestellt, also  $E_{\text{ges}} = E_e$ . Für die Berechnung wurden für den Parameter  $\alpha$  Werte von 1, 3 und 5 angenommen. Hier zeigt sich die erwartete Zunahme der Effizienz mit zunehmender Ladung.

Zusammenfassend ergibt sich: Generell sind die Gesamtkollisionseffizienz sowie die einzelnen Effizienzen der betrachteten Prozesse, ausgenommen die durch die Diffusiophorese bestimmte Effizienz, stark abhängig von den Durchmessern der Aerosolpartikel und Regentropfen. Der dominierende Kollisionsprozess für kleine Partikel ( $d_p < 10 \text{ nm}$ ) ist die Brownsche Diffusion. Die Kollisionseffizienz in diesem Größenbereich erreicht für kleine Tropfen mit Durchmessern von etwa  $0,1 \text{ }\mu\text{m}$  nahezu einen Wert von Eins. Weiter besitzt die Gesamtkollisionseffizienz ein Minimum für Partikel des Durchmessers von etwa  $100 \text{ nm}$  (Greenfield Minimum). Hier sind die Partikel zu groß für eine signifikante Brownsche Diffusion und zu klein um effektiv aufgrund der Partikelträgheit (Impaktion) zu kollidieren. Die Kollisionseffizienz im Partikelgrößenbereich des Greenfield Minimums wird von den phoretischen und elektrischen Effekten dominiert. Diese Prozesse bewirken einen signifikanten Anstieg der Gesamtkollisionseffizienz im Partikelgrößenbereich des Greenfield Minimums. Die durch die Thermophorese bestimmte Kollisionseffizienz ist stark abhängig von der Temperaturdifferenz zwischen Tropfenoberfläche und umgebender Luft. Weiter wird die von der Diffusiophorese bestimmte Kollisionseffizienz von der Relativen Feuchte und der Temperaturdifferenz beeinflusst. Als weitere die Kollisionseffizienz beeinflussende Partikel- und Tropfeneigenschaft konnte die elektrische Ladung der Partikel und Tropfen nachgewiesen werden. Weiter erwies sich, dass Partikel der Durchmesser größer als  $2 \text{ }\mu\text{m}$  sehr effizient kollidieren. In diesem Größenbereich nehmen die Kollisionseffizienzen vergleichbare Werte wie im von der Brownschen Diffusion dominierten Partikelgrößenbereich kleiner  $0,01 \text{ }\mu\text{m}$  an. Die Partikel-Tropfen-Kollisionen im Partikelgrößenbereich größer als  $2 \text{ }\mu\text{m}$  werden von der Impaktion dominiert. Die Impaktion ist gekennzeichnet durch ein sprunghaftes Einsetzen, wenn die Stokeszahlen die kritische Stokeszahl erreichen. Der Beitrag der Interzeption zur Kollisionseffizienz ist über den gesamten Partikelgrößenbereich eher als untergeordnet anzusehen.

#### 4.1.4 Die Größenverteilung der Niederschlagstropfen

Um die Partikelverlustrate Gleichung (4.9) zu berechnen, sind zum Einen die Kenntnis der Größenverteilung der Regentropfen und zum Anderen die Tropfenfallgeschwindigkeit als Funktion des Durchmessers der Regentropfen notwendig. Weiter wurde in Kapitel 4.1.3 gezeigt, dass die Kollisionseffizienz vom Tropfendurchmesser abhängt. Die Größenverteilung der Regentropfen ist das Endprodukt aller wolkenmikrophysikalischer und wolkendynamischer Prozesse sowie aller Wechselwirkungen, welche die Niederschlagsbildung beeinflussen (z.B. Kondensation, Koagulation, Zerplatzen, Wechselwirkung der Eisphase mit der Flüssigphase, Aufschmelzen). Für eine genauere Betrachtung sei hier auf das Lehrbuch von Pruppacher und Klett (1978) verwiesen. Feldstudien zeigten, dass die Größenverteilung der Niederschlagstropfen stark abhängig von der Niederschlagsrate und der Art des Niederschlages (stratiform, konvektiv) ist. Die während eines Niederschlagsereignisses am Boden gemessenen Tropfenspektren zeigen meist ein Maximum der Tropfenanzahl bei Tropfendurchmessern von etwa 1 bis 2 mm mit einem überexponentiellen Abfall der Anzahl zu größeren Durchmessern hin und einem Abfall der Anzahl vom Maximum hin zu kleineren Durchmessern. Die maximale Tropfengröße ist nach oben hin beschränkt. In der Natur kommen praktisch keine Tropfen der Durchmesser  $D_D > 8$  mm vor. Die Begründung liegt in der durch turbulente Umströmung und Wirbelablösung verursachten Tropfenoszillation. Die Oberflächenspannung kann den Tropfen nicht mehr zusammenhalten, es resultiert ein spontanes Zerplatzen.

In der Literatur ist eine Vielzahl von empirischen Formeln zur Beschreibung der Tropfengrößenverteilung zu finden. Eine möglichst allgemeine Verteilungsfunktion für die Tropfenanzahldichte  $n(D_D)$ , welche die gemessenen Tropfenspektren gut wiedergeben kann, ist die verallgemeinerte Gammaverteilung (Deirmendjian, 1964; Willis, 1984; Stefan et al., 1994; Mircea und Stefan, 1998):

$$n(D_D) = N_{0D} \left( \frac{D_D}{D_0} \right)^\mu \exp \left( -\beta \left( \frac{D_D}{D_0} \right)^\gamma \right). \quad (4.38)$$

Sie enthält als Spezialfall eine Reihe von in der Wolkenphysik traditionell verwendeten Verteilungsfunktionen. Der Faktor  $D_0$  dient hier lediglich dazu den Tropfendurchmesser  $D_D$  dimensionslos zu machen. Die Parameter  $N_{0D}$  und  $\beta$  können über die Anzahldichte  $N_D$  und den Flüssigwassergehalt  $w_l$  berechnet werden. Diese wichtigen Größen ergeben sich aus dem Nullten bzw. Dritten Moment der Verteilungsfunktion  $n(D_D)$ . Die Anzahldichte  $N_D$  ist gegeben durch:

$$N_D = \int_0^\infty n(D_D) dD_D. \quad (4.39)$$

Der Flüssigwassergehalt  $w_l$  berechnet sich unter der Annahme kugelförmiger Regentropfen aus

$$w_1 = \int_0^{\infty} m^* D_D^3 n(D_D) dD_D \quad (4.40)$$

mit

$$m^* = \left( \frac{\pi}{6} \right) \rho_w = \frac{m_D}{D_D^3} \quad (4.41)$$

Wobei hier  $m_D$  die Masse eines Regentropfens ist.

Die Parameter  $N_0$  und  $\beta$  in Gleichung (4.38) sind dann unter der Verwendung der Definition der Gammafunktion

$$\int_0^{\infty} D_D^p \exp(-\beta D_D^\gamma) dD_D = \frac{1}{\gamma} \beta^{-\left(\frac{p+1}{\gamma}\right)} \Gamma\left(\frac{p+1}{\gamma}\right) \quad (4.42)$$

gegeben durch

$$N_{0D} = \frac{\gamma N_D}{\Gamma\left(\frac{\mu+1}{\gamma}\right)} \beta^{\frac{\mu+1}{\gamma}} \quad (4.43)$$

und

$$\beta = \left[ \frac{w_1 \Gamma\left(\frac{\mu+1}{\gamma}\right)}{m^* N_D \Gamma\left(\frac{\mu+4}{\gamma}\right)} \right]^{\frac{\gamma}{3}} \quad (4.44)$$

Um die Partikelverlustrate nach Gleichung (4.9) zu berechnen wird nun noch die Tropfenfallgeschwindigkeit (hiermit ist die unbeschleunigte, stationäre Sedimentationsgeschwindigkeit der Regentropfen gemeint) benötigt. Diese wird aus einer einfachen Parametrisierung nach Kessler (1969) als Funktion des Partikeldurchmessers abgeleitet

$$v_t(D_D) = c_v \left( \frac{D_D}{D_{v0}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4.45)$$

mit  $c_v = 130 \text{ m s}^{-1}$  und  $D_{v0} = 1 \text{ m}$ .

## 4.2 Modellierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln infolge von Niederschlag

Das Auswaschen von Aerosolpartikeln soll im Folgenden in Modellsimulationen untersucht werden. Die Untersuchungen gliedern sich dabei in zwei Abschnitte. Um die Effekte, die rein auf die Wechselwirkung zwischen Aerosolpartikeln und Niederschlagstropfen zurückzuführen sind, von den Effekten durch den Transport und den chemischen sowie aerosoldynamischen Prozessen zu trennen, werden zunächst Boxmodellrechnungen durchgeführt. Daran schließen sich Simulationen mit dem dreidimensionalen mesoskaligen Modellsystem COSMO-ART an. Hier wird der Auswaschprozess in den Aerosoldynamikgleichungen für das Nullte und das Dritte Moment (3.34) und (3.35) betrachtet. Als zusätzliche, die Aerosolpartikelkonzentration beeinflussende Effekte kommen die Advektion, die Kondensation von Gasen auf bestehende Partikel, die Partikelneubildung durch Nukleation, die Koagulation, die Sedimentation, die trockene Deposition sowie räumlich inhomogene Partikelemissionen hinzu.

Das Problem bei der Berechnung des Auswaschens unter Beachtung polydisperser Aerosolpartikelverteilung und polydisperser Tropfenverteilung besteht darin, dass die direkte Integration der Gleichung (4.8) ein hohes Maß an Rechenaufwand erfordert und somit bei der Betrachtung in einem mesoskaligen Modellsystems nicht realisiert werden kann. Des Weiteren muss Gleichung (4.8) bei der Berücksichtigung in den Aerosoldynamikgleichungen in eine Gleichung für die zeitliche Änderung der Momente der Verteilungsfunktion umgewandelt werden. Im Folgenden soll ein Modell entwickelt werden, in dem das Auswaschen von Aerosolpartikeln mittels der Methode der integralen Momente parametrisiert wird, um dann im Modellsystem COSMO-ART Berücksichtigung zu finden.

### 4.2.1 Eine neue Parametrisierung des Auswaschprozesses

Wie in Kapitel 2 gezeigt, kann eine polydisperse Aerosolverteilung mittels kontinuierlicher sich überlagernder Lognormalverteilungen angenähert werden. Deren integrale Eigenschaften können über die Momente der Verteilungsfunktion bestimmt werden.

Aus Gleichung (4.8) kann unter Verwendung der Definition der Integralen Momente einer Verteilungsfunktion Gleichung (2.5) die durch den Auswaschprozess verursachte zeitliche Änderung der Momente der Aerosolpartikelverteilung hergeleitet werden. Demnach gilt für die zeitliche Änderung der Momente infolge des Auswaschprozesses:

$$\begin{aligned}
 -\frac{\partial M_k}{\partial t} &= \int_0^{\infty} d_p^k n(d_p) \lambda(d_p) dd_p \\
 &= \int_0^{\infty} d_p^k n(d_p) \int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} D_D^2 v_t(D_D) E(d_p, D_D) n(D_D) dD_D dd_p \quad .
 \end{aligned}
 \tag{4.46}$$

Zu dem kann Gleichung (4.46) als Funktion der Momente dargestellt werden, wenn jeder Term in der Kollisionseffizienz als Potenz des Partikeldurchmessers aufgeschrieben werden kann. Um dies zu erreichen, muss der Beitrag der Impaktion zur Kollisionseffizienz

Gleichung (4.24) approximiert werden. Nach Jung (2003) kann für die Impaktion folgender Ansatz gewählt werden:

$$E_{\text{Imp}} = \left( \frac{\rho_{\text{W}}}{\rho_{\text{P}}} \right)^{\frac{1}{2}} \left( \frac{\text{St} - S^*}{\text{St} - S^* + \frac{2}{3}} \right)^{\frac{3}{2}} \cong \left( \frac{\rho_{\text{W}}}{\rho_{\text{P}}} \right)^{\frac{1}{2}} \left( 1 - 0,9 \text{St}^{-\frac{1}{2}} \right). \quad (4.47)$$

Des Weiteren muss der Cunninghamkorrekturfaktor  $C_c$  (Gleichung 4.17) aus den genannten Gründen in den Gleichungen für  $E_{\text{BD}}$  (4.22),  $E_{\text{Imp}}$  (4.24),  $E_e$  (4.33) und für  $E_{\text{Therm}}$  (4.27) unter Verwendung des thermophoretischen Koeffizienten nach Talbot (1980) approximiert werden. Nach Lee und Liu (1982) gilt in guter Näherung für  $C_c$

$$C_c = 1 + 2,493 \frac{\lambda_{\text{air}}}{d_p} + 0,84 \frac{\lambda_{\text{air}}}{d_p} \exp(-0,435 \frac{d_p}{\lambda_{\text{air}}}) \cong 1 + \frac{A}{d_p} \quad (4.48)$$

mit  $A = 3,34 \lambda_{\text{air}}$ .

Um den Beitrag der Thermophorese zur Kollisionseffizienz als Potenz des Partikeldurchmessers abzuleiten, kann der thermophoretische Koeffizient nach Talbot (4.29) nicht verwendet werden. Der Koeffizient wird in Abhängigkeit der Knudsenzahl für drei zu unterscheidende Größenbereiche berechnet. Für Knudsenzahlen kleiner als 0,01 wird die von Epstein (1929) vorgeschlagene vom Partikeldurchmesser unabhängige Formel für den thermophoretischen Koeffizienten verwendet:

$$\alpha_{\text{Therm}} = 1,5 \frac{k^*}{1 + 2k^*}. \quad (4.49)$$

$k^* = k_{\text{air}}/k_p$  stellt hier das Verhältnis des Wärmeleitkoeffizienten der Luft zu dem der Aerosolpartikel dar.

Für Knudsenzahlen größer gleich 0,01 und kleiner 1 wird hier der thermophoretische Koeffizient an den von Talbot (1980) gegebenen Koeffizienten unter Verwendung folgender Gleichung angenähert

$$\alpha_{\text{Therm}} = c_{\text{therm1}} \left( \frac{2\lambda_{\text{air}}}{d_p} \right)^{\frac{1}{2}} + c_{\text{therm2}} \left( \frac{2\lambda_{\text{air}}}{d_p} \right)^{-1} + c_{\text{therm3}} \left( \frac{2\lambda_{\text{air}}}{d_p} \right), \quad (4.50)$$

mit den Koeffizienten

$$c_{\text{therm1}} = 3,6124 \cdot k^* (1 + 2k^*)^{-1} + 1,5558 \cdot \left(1 + \frac{\pi}{8} a_m\right)^{-1},$$

$$c_{\text{therm2}} = 1,3892 \cdot 10^{-3} \cdot k^* (1 + 2k^*)^{-1} - 4,8396 \cdot 10^{-5} \cdot \left(1 + \frac{\pi}{8} a_m\right)^{-1},$$

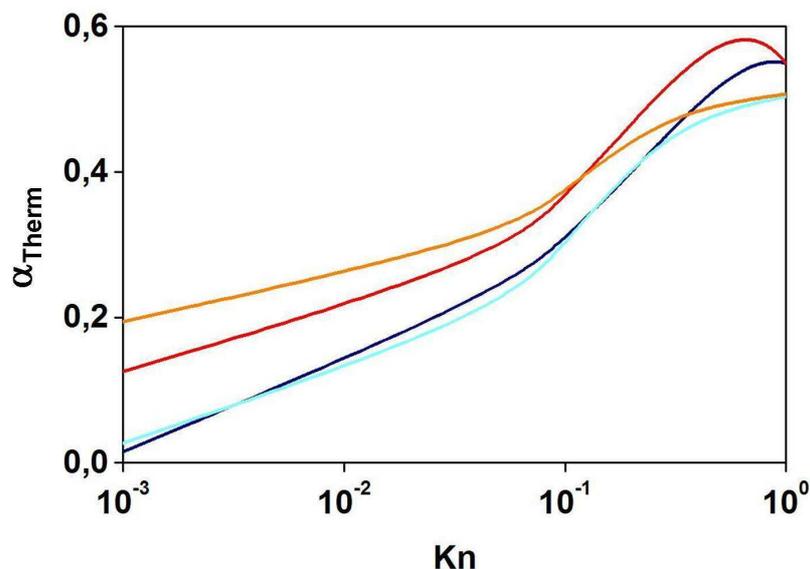
$$c_{\text{therm3}} = -3,6138 \cdot k^* (1 + 2k^*)^{-1} - 0,8058 \cdot \left(1 + \frac{\pi}{8} a_m\right)^{-1}.$$

$a_m$  symbolisiert den Massenakkomotionskoeffizienten der Partikel.

Als einschränkende Bedingung für die Verwendung der Gleichung (4.50) ist zu nennen, dass das Verhältnis des Wärmeleitkoeffizienten der Luft zu dem der Aerosolpartikel kleiner als 0,5 ist, wovon im Allgemeinen für das atmosphärische Aerosol ausgegangen werden kann. Abbildung (4.7) zeigt, dass die Gleichung (4.50) den thermophoretischen Koeffizienten nach Talbot (4.29) hinreichend genau wieder gibt.

Für Knudsenzahlen größer als Eins wird die von Waldmann und Schmidt (1966) vorgeschlagene, vom Partikelradius unabhängige Berechnung des thermophoretischen Koeffizienten verwendet. Es gilt:

$$\alpha_{\text{Therm}} = \frac{3}{4} \left(1 + \frac{\pi}{8} a_m\right)^{-1}. \quad (4.51)$$



**Abbildung 4.7:** Thermophoretischer Koeffizient als Funktion der Knudsenzahl berechnet nach der Formel von Talbot (4.29) (orange mit  $k^* = 0,1$ ; hellblau mit  $k^* = 0,01$ ) und der Approximation nach Gleichung (4.50) (rot mit  $k^* = 0,1$ ; blau mit  $k^* = 0,01$ ).

Mit den Approximationen (4.47) bis (4.50) und unter Verwendung der Parametrisierung der Tropfenfallgeschwindigkeit  $v_t(D_D)$  nach Gleichung (4.45) kann nun die zeitliche Änderung der Momente Gleichung (4.46) für die Größenbereiche mit  $Kn$  kleiner 0,001 und  $Kn$  größer 1 mit dem vom Partikeldurchmesser unabhängigen thermophoretischen Koeffizienten (4.49) und (4.51) aus

$$\begin{aligned}
-\frac{\partial M_k}{\partial t} = \int_0^\infty d_p^k n(d_p) \left\{ \int_0^\infty \left[ c_1 D_D (d_p^{-1} + A d_p^{-2}) + c_2 D_D^{7/4} (A d_p^{-2} + d_p^{-1})^{2/3} \right. \right. \\
+ c_3 D_D^{7/4} (A d_p^{-2} + d_p^{-1})^{1/2} + c_4 D_D^{3/2} d_p + c_5 D_D^{1/2} d_p^2 \\
+ c_6 D_D^{5/4} d_p^2 + c_7 D_D^{5/2} + c_8 D_D^{11/4} d_p^{-1} \\
+ c_9 D_D + c_{10} D_D^{7/4} \\
+ c_{11} D_D + c_{12} D_D^{7/4} \\
\left. \left. + c_{13} D_D^2 (d_p + A) \right] n(D_D) dD_D \right\} dd_p
\end{aligned} \tag{4.52}$$

berechnet werden. Für die Koeffizienten  $c_1$  bis  $c_{13}$  gelten die folgenden Beziehungen

$$\begin{aligned}
c_1 &= \frac{k_b T_{\text{air}}}{6 \cdot \mu_{\text{air}}}, & c_2 &= 0,4 \cdot \left( \frac{\pi}{4} \right) \left( \frac{130 \cdot 2 \cdot \mu_{\text{air}}}{\rho_{\text{air}}} \right)^{1/2} \left( \frac{k_b T_{\text{air}} \rho_{\text{air}}}{3 \cdot \pi \mu_{\text{air}}^2} \right)^{2/3}, \\
c_3 &= 0,16 \cdot \left( \frac{\pi}{4} \right) \left( \frac{130 \cdot 2 \cdot k_b T_{\text{air}}}{3 \cdot \pi \mu_{\text{air}}} \right)^{1/2}, & c_4 &= 130 \cdot \pi \left( \frac{\mu_{\text{air}}}{\mu_w} \right), \\
c_5 &= 130 \cdot \pi, & c_6 &= 130^{3/2} \cdot \pi \left( \frac{\rho_{\text{air}}}{2 \mu_{\text{air}}} \right)^{1/2}, \\
c_7 &= \frac{130 \cdot \pi}{4} \left( \frac{\rho_w}{\rho_p} \right)^{1/2}, & c_8 &= -0,9 \cdot \left( \frac{\pi}{4} \right) \left( \frac{130 \cdot 9 \cdot \mu_{\text{air}} \rho_w}{\rho_p^2} \right)^{1/2}, \\
c_9 &= \frac{2 \cdot \pi \alpha_{\text{Therm}} (T_{\text{air}} - T_s)}{5 \cdot p}, \\
c_{10} &= \frac{0,6 \cdot \pi \alpha_{\text{Therm}} (T_{\text{air}} - T_s)}{5 \cdot p} \left( \frac{130 \cdot \rho_{\text{air}}}{2 \cdot \mu_{\text{air}}} \right)^{1/2} \left( \frac{c_{\text{Pair}} \mu_{\text{air}}}{k_{\text{air}}} \right)^{1/3}, \\
c_{11} &= \frac{2 \cdot \pi T_{\text{air}} D_w}{p} \left( \frac{M_w}{M_{\text{air}}} \right)^{1/2} \left( \frac{p_{0s} - p_{0\text{air}} \text{RH}}{T_s - T_{\text{air}}} \right), \\
c_{12} &= 0,6 \cdot \frac{\pi T_{\text{air}} D_w}{p} \left( \frac{130 \cdot M_w \rho_{\text{air}}}{2 \cdot M_{\text{air}} \mu_{\text{air}}} \right)^{1/2} \left( \frac{\mu_{\text{air}}}{\rho_{\text{air}} D_w} \right)^{1/3} \left( \frac{p_{0s} - p_{0\text{air}} \text{RH}}{T_s - T_{\text{air}}} \right), \\
c_{13} &= \frac{4 \cdot Ka^2 \alpha^2}{3 \cdot \mu_{\text{air}}}.
\end{aligned}$$

Zu beachten ist hier, dass die Koeffizienten  $c_9$  und  $c_{10}$  in den Termen für die Thermophorese, sich je nach verwendetem thermophoretischen Koeffizienten  $\alpha_{\text{Therm}}$  unterscheiden.

Im Größenbereich mit  $\text{Kn}$  größer gleich 0,001 bis  $\text{Kn}$  kleiner gleich 1 müssen zusätzliche Terme in der Kollisionseffizienz der Thermophorese aufgrund des vom Partikeldurchmesser abhängigen thermophoretischen Koeffizienten berücksichtigt werden. Die zeitliche Änderung der Momente für den Größenbereich mit  $\text{Kn}$  größer gleich 0,001 bis  $\text{Kn}$  kleiner gleich 1 berechnet sich schließlich aus:

$$\begin{aligned}
 -\frac{\partial M_k}{\partial t} = & \int_0^\infty d_p^k n(d_p) \int_0^\infty \left[ c_1 D_D (d_p^{-1} + A d_p^{-2}) + c_2 D_D^{7/4} (A d_p^{-2} + d_p^{-1})^{2/3} \right. \\
 & + c_3 D_D^{7/4} (A d_p^{-2} + d_p^{-1})^{1/2} + c_4 D_D^{3/2} d_p + c_5 D_D^{1/2} d_p^2 \\
 & + c_6 D_D^{5/4} d_p^2 + c_7 D_D^{5/2} + c_8 D_D^{11/4} d_p^{-1} \\
 & + c_9 D_D \left( c_{\text{Therm1}} d_p^{-1} + c_{\text{Therm2}} d_p^{-1/2} + c_{\text{Therm3}} d_p \right) \\
 & + c_{10} D_D^{7/4} \left( c_{\text{Therm1}} d_p^{-1} + c_{\text{Therm2}} d_p^{-1/2} + c_{\text{Therm3}} d_p \right) \\
 & + c_{11} D_D + c_{12} D_D^{7/4} \\
 & \left. + c_{13} D_D^2 (d_p + A) \right] n(D_D) dD_D dd_p \quad .
 \end{aligned} \tag{4.53}$$

Die Koeffizienten  $c_1$  bis  $c_8$  und  $c_{11}$  bis  $c_{13}$  sind in Analogie zu denen in Gleichung (4.52) zu berechnen. Die Koeffizienten in den Termen der Thermophorese  $c_9$  und  $c_{10}$  sind unter Verwendung des thermophoretischen Koeffizienten nach Gleichung (4.50) gegeben durch:

$$c_9 = \frac{2 \cdot \pi (T_{\text{air}} - T_s)}{5 \cdot p} \quad ; \quad c_{10} = \frac{0,6 \cdot \pi (T_{\text{air}} - T_s)}{5 \cdot p} \left( \frac{130 \cdot \rho_{\text{air}}}{2 \cdot \mu_{\text{air}}} \right)^{1/2} \left( \frac{c_{\text{Pair}} \mu_{\text{air}}}{k_{\text{air}}} \right)^{1/3} .$$

Die in den Gleichungen (4.52) und (4.53) enthaltenen binomischen Terme

$$(A d_p^{-2} + d_p^{-1})^{2/3} \quad \text{und} \quad (A d_p^{-2} + d_p^{-1})^{1/2}$$

können gemäß der Reihenentwicklungen

$$(a + b)^m = a^m + m a^{m-1} b + \frac{m(m-1)}{2!} a^{m-2} b^2 + \dots \tag{4.54}$$

wie folgt umgeformt werden

$$(A d_p^{-2} + d_p^{-1})^{2/3} = A^{2/3} d_p^{-4/3} + \frac{2 d_p^{-1/3}}{3 A^{1/3}}, \tag{4.55}$$

$$\left(\text{A}d_p^{-2} + d_p^{-1}\right)^{1/2} = \text{A}^{1/2}d_p^{-1} + \frac{1}{2\text{A}^{1/2}}. \quad (4.56)$$

Hier wurde die Reihenentwicklung nach dem Glied zweiter Ordnung abgebrochen für eine höhere Genauigkeit kann diese Entwicklung fortgesetzt werden. Die Gleichungen (4.52) und (4.53) lassen sich nun als Summe von Termen der Form

$$c_i \int_0^\infty d_p^k n(d_p) dd_p \int_0^\infty D_D^j n(D_D) dD_D \quad (4.57)$$

schreiben. Für die in den Termen enthaltenen Integrale über den Partikeldurchmesser können nun gemäß der Definition (2.5) die jeweiligen Momente  $M_k$  der Partikelverteilung  $n(d_p)$  eingesetzt werden. Die Gleichungen (4.52) und (4.53) können somit als algebraische Kombination der Momente formuliert werden

$$\begin{aligned} -\frac{\partial M_k}{\partial t} = & \int_0^\infty \left[ c_1 D_D (M_{k-1} + \text{A}M_{k-2}) + c_2 D_D^{7/4} \left( \text{A}^{2/3} M_{k-4/3} + \frac{2}{3\text{A}^{1/3}} M_{k-1/3} \right) \right. \\ & + c_3 D_D^{7/4} \left( \text{A}^{1/2} M_{k-1} + \frac{1}{2\text{A}^{1/2}} M_k \right) + c_4 D_D^{3/2} M_{k+1} + c_5 D_D^{1/2} M_{k+2} \\ & + c_6 D_D^{5/4} M_{k+2} + c_7 D_D^{5/2} M_k + c_8 D_D^{1/4} M_{k-1} \\ & + c_9 D_D M_k + c_{10} D_D^{7/4} M_k \\ & + c_{11} D_D M_k + c_{12} D_D^{7/4} M_k \\ & \left. + c_{13} D_D^2 (M_{k+1} + \text{A}M_k) \right] n(D_D) dD_D \end{aligned} \quad (4.58)$$

und

$$\begin{aligned} \frac{\partial M_k}{\partial t} = & \int_0^\infty \left[ c_1 D_D (M_{k-1} + \text{A}M_{k-2}) + c_2 D_D^{7/4} \left( \text{A}^{2/3} M_{k-4/3} + \frac{2}{3\text{A}^{1/3}} M_{k-1/3} \right) \right. \\ & + c_3 D_D^{7/4} \left( \text{A}^{1/2} M_{k-1} + \frac{1}{2\text{A}^{1/2}} M_k \right) + c_4 D_D^{3/2} M_{k+1} + c_5 D_D^{1/2} M_{k+2} \\ & + c_6 D_D^{5/4} M_{k+2} + c_7 D_D^{5/2} M_k + c_8 D_D^{1/4} M_{k-1} \\ & + c_9 D_D \left( c_{\text{Therm1}} M_{k-1} + c_{\text{Therm2}} M_{k-1/2} + c_{\text{Therm3}} M_{k+1} \right) \\ & + c_{10} D_D^{7/4} \left( c_{\text{Therm1}} M_{k-1} + c_{\text{Therm2}} M_{k-1/2} + c_{\text{Therm3}} M_{k+1} \right) \\ & + c_{11} D_D M_k + c_{12} D_D^{7/4} M_k \\ & \left. + c_{13} D_D^2 (M_{k+1} + \text{A}M_k) \right] n(D_D) dD_D. \end{aligned} \quad (4.59)$$

Wird wie in Kapitel 4.1.3 angeführt die Tropfenanzahldichteverteilung  $n(D_D)$  in den Gleichungen (4.52) und (4.53) mittels einer Gammaverteilung beschrieben und die Integration über den Tropfendurchmesser  $D_D$  unter Verwendung der Definition der Gammafunktion (4.40) ausgeführt, so lassen sich die zeitlichen Änderungen der Momente  $M_k$  der Partikelverteilung berechnen aus

$$\begin{aligned}
 -\frac{\partial M_k}{\partial t} = N_{0D} & \left[ c_1 \xi_1 (M_{k-1} + AM_{k-2}) + c_2 \xi_2 \left( A^{\frac{2}{3}} M_{k-\frac{4}{3}} + \frac{1}{3} A^{-\frac{1}{3}} M_{k-\frac{1}{3}} \right) \right. \\
 & + c_3 \xi_3 \left( A^{\frac{1}{2}} M_{k-1} + \frac{1}{2} A^{-\frac{1}{2}} M_k \right) + c_4 \xi_4 M_{k+1} + c_5 \xi_5 M_{k+2} \\
 & + c_6 \xi_6 M_{k+2} + c_7 \xi_7 M_k + c_8 \xi_8 M_{k-1} \\
 & + c_9 \xi_9 M_k + c_{10} \xi_{10} M_k \\
 & + c_{11} \xi_{11} M_k + c_{12} \xi_{12} M_k \\
 & \left. + c_{13} \xi_{13} M_{k+1} + c_{14} A \xi_{14} M_k \right]
 \end{aligned} \tag{4.60}$$

und

$$\begin{aligned}
 -\frac{\partial M_k}{\partial t} = N_{0D} & \left[ c_1 \xi_1 (M_{k-1} + AM_{k-2}) + c_2 \xi_2 \left( A^{\frac{2}{3}} M_{k-\frac{4}{3}} + \frac{2}{3} A^{-\frac{1}{3}} M_{k-\frac{1}{3}} \right) \right. \\
 & + c_3 \xi_3 \left( A^{\frac{1}{2}} M_{k-1} + \frac{1}{2} A^{-\frac{1}{2}} M_k \right) + c_4 \xi_4 M_{k+1} + c_5 \xi_5 M_{k+2} \\
 & + c_6 \xi_6 M_{k+2} + c_7 \xi_7 M_k + c_8 \xi_8 M_{k-1} \\
 & + c_9 \xi_9 \left( c_{\text{Therm1}} M_{k-1} + c_{\text{Therm2}} M_{k-\frac{1}{2}} + c_{\text{Therm3}} M_{k+1} \right) \\
 & + c_{10} \xi_{10} \left( c_{\text{Therm1}} M_{k-1} + c_{\text{Therm2}} M_{k-\frac{1}{2}} + c_{\text{Therm3}} M_{k+1} \right) \\
 & + c_{11} \xi_{11} M_k + c_{12} \xi_{12} M_k \\
 & \left. + c_{13} \xi_{13} M_{k+1} + c_{14} A \xi_{14} M_k \right] .
 \end{aligned} \tag{4.61}$$

Hierin sind folgende Identitäten enthalten:

$$\begin{aligned} \xi_1 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+2}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+2}{\gamma}\right), & \xi_2 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+11/4}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+11/4}{\gamma}\right), \\ \xi_3 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+11/4}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+11/4}{\gamma}\right), & \xi_4 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+5/2}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+5/2}{\gamma}\right), \\ \xi_5 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+3/2}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+3/2}{\gamma}\right), & \xi_6 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+9/4}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+9/4}{\gamma}\right), \\ \xi_7 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+7/2}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+7/2}{\gamma}\right), & \xi_8 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+15/4}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+15/4}{\gamma}\right), \\ \xi_9 &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+2}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+2}{\gamma}\right), & \xi_{10} &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+11/4}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+11/4}{\gamma}\right), \\ \xi_{11} &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+2}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+2}{\gamma}\right), & \xi_{12} &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+11/4}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+11/4}{\gamma}\right), \\ \xi_{13} &= \frac{1}{\gamma} \beta^{-\frac{\mu+3}{\gamma}} \Gamma\left(\frac{\mu+3}{\gamma}\right). \end{aligned}$$

Die Gleichungen (4.54) und (4.55) bilden nun die Basis für ein Modell, mit dem das Auswaschen von Aerosolpartikeln infolge eines Niederschlagsereignisses unter Berücksichtigung der Eigenschaften der Partikelverteilung und Tropfenverteilung simuliert werden kann.

#### 4.2.2 Realisierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln in einem Boxmodell

Im Folgenden wird das Auswaschen von Aerosolpartikeln mit einem Boxmodell untersucht. Es sollen der Einfluss der Niederschlagstropfenverteilung und der Intensität des Niederschlagsereignisses auf verschiedene Aerosolpartikelspektren untersucht werden.

Um die zeitliche Änderung eines lognormalverteilten Aerosolpartikelspektrums im Boxmodell zu berechnen, werden Gleichungen für die zeitliche Änderung der drei Parameter  $N_p$ ,  $d_g$  und  $\sigma_g$  benötigt. Hierzu wird die folgende Eigenschaft einer Lognormalverteilung ausgenutzt. Für jedes beliebige  $k$ -te Moment gilt

$$M_k = M_0 d_g^k \exp\left(\frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_g\right). \quad (4.62)$$

Wird Gleichung (4.62) für  $k = 0, 2$  und  $3$  geschrieben und anschließend nach  $d_g$  und  $\sigma_g$  gelöst, erhält man folgende Beziehungen für die Standardabweichung

$$\ln^2 \sigma_g = \frac{1}{3} \ln(M_0 M_3^2 M_2^{-3}) \quad (4.63)$$

und für den mittleren geometrischen Durchmesser

$$d_g = M_0^{-5/6} M_2^{3/2} M_3^{-2/3}. \quad (4.64)$$

Für die Gesamtpartikelanzahldichte  $N_p$  als drittem Parameter der Lognormalverteilung gilt:

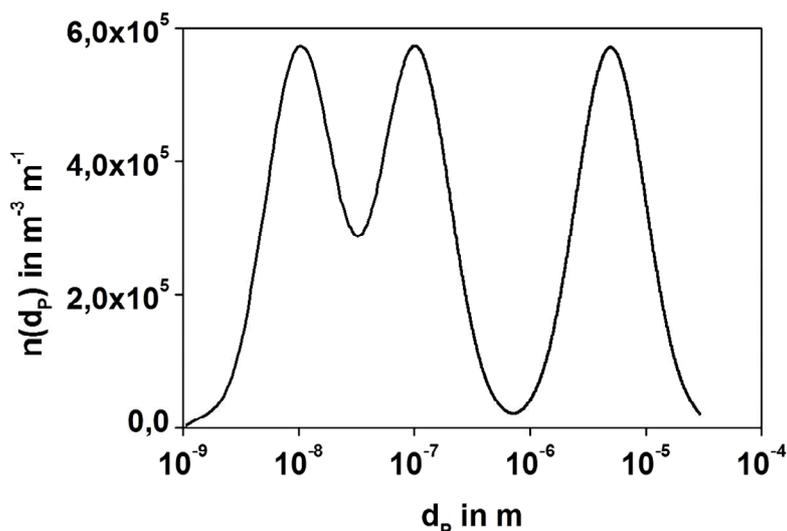
$$N_p = M_0. \quad (4.65)$$

Substituiert man die Momente in den Gleichungen für die zeitliche Änderung der Momente (4.60) und (4.61) für  $k = 0, 2$  und  $3$  durch (4.62) und werden die erhaltenen Gleichungen der zeitlichen Änderungen des Nullten, Zweiten und Dritten Momentes in die Gleichungen (4.58) und (4.59) eingesetzt, so werden die Integrodifferentialgleichungen (4.54) und (4.55) in Differentialgleichungen erster Ordnung für die zeitliche Änderung der Partikelanzahl  $\partial N_p / \partial t$ , die zeitliche Änderung der Standardabweichung  $\partial \sigma_g / \partial t$  und die zeitliche Änderung des mittleren Durchmessers  $\partial d_g / \partial t$  überführt. Das durch den Auswaschprozess veränderte Partikelspektrum kann nun unter Verwendung eines Standardlösungsverfahrens für Differentialgleichungen erster Ordnung als Funktion der Zeit berechnet werden. In dieser Arbeit wird für die zeitliche Integration das Eulerverfahren verwendet.

Der Auswaschprozess soll nun an einer vereinfachten trimodalen Aerosolpartikelverteilung untersucht werden, die im Folgenden als Testverteilung bezeichnet wird. Jede der drei Moden der Testverteilung wird mittels einer Lognormalverteilung beschrieben. In Tabelle 4.1 sind die drei Parameter Gesamtpartikelanzahldichte  $N_p$ , mittlerer geometrischer Durchmesser  $d_g$  und Standardabweichung  $\sigma_g$  der einzelnen Moden aufgeführt.

**Tabelle 4.1:** Parameter der einzelnen Moden der Testaerosolanzahldichteverteilung

	<b>Mode 1</b>	<b>Mode 2</b>	<b>Mode 3</b>
<b><math>N_p</math> in <math>m^{-3}</math></b>	1000000	1000000	1000000
<b><math>d_g</math> in m</b>	$0,01 \times 10^{-6}$	$0,1 \times 10^{-6}$	$5,0 \times 10^{-6}$
<b><math>\sigma_g</math></b>	2,0	2,0	2,0



**Abbildung 4.8:** Partikelanzahldichte als Funktion von  $d_p$  der Testverteilung

Die Gesamtpartikelanzahldichte  $N_p$  und die Standardabweichung  $\sigma_g$  sind in jeder Mode identisch. Der mittlere geometrische Durchmesser  $d_g$  der ersten Mode wurde so gewählt, dass sich die Mode in dem Größenbereich, in dem die Brownsche Diffusion den Auswaschprozess dominiert, befindet. Die zweite Mode befindet sich im Bereich des Greenfield Minimums, in dem die phoretischen und elektrischen Effekte dominieren. In dem von der Impaktion dominierten Bereich wurde die dritte Mode gelegt. In Abbildung 4.8 ist die Partikelanzahldichteverteilung der Testverteilung als Funktion des Partikeldurchmessers dargestellt.

Um den Einfluss der Eigenschaften des Niederschlagsereignisses auf den Auswaschprozess zu untersuchen, werden für die Boxmodellsimulationen zwei auf der Gammaverteilung basierende Niederschlagstropfenverteilungen verwendet. Die Intensität eines Niederschlagsereignisses wird in Anlehnung an die von Mircea und Stefan (1998) gegebenen Niederschlagsklassifikationen über den Flüssigwassergehalt  $w_l$  und die Gesamttropfenanzahldichte  $N_D$  variiert. Dabei werden ein schwaches und ein starkes Niederschlagsereignis unterschieden Tabelle 4.2. Das schwache Niederschlagsereignis ist durch eine um mehrere Größenordnungen höhere Tropfenanzahldichte gegenüber dem starken Niederschlagsereignis gekennzeichnet. Weiter sind der Flüssigwassergehalt und die Niederschlagsrate wesentlich geringer im Falle des schwachen Niederschlages.

**Tabelle 4.2:** Niederschlagsklassifikation nach Mircea und Stefan (1998)

Niederschlags-Klassifikation	Flüssigwasser-gehalt $w_l$ in $\text{g m}^{-3}$	Gesamttropfenanzahl-dichte $N_D$ in $\text{m}^{-3}$	Niederschlagsrate $R$ in $\text{mm h}^{-1}$
schwacher Niederschlag	0-1 (0,5)	$10^7$	1-5
starker Niederschlag	5-15 (10)	500	100-500

Um den Einfluss der Tropfenverteilung auf den Auswaschprozess zu untersuchen, werden für die Parameter  $\gamma$  und  $\mu$  in der Tropfenverteilungsfunktion (4.38) zwei verschiedene Kombinationen gewählt. Wählt man  $\gamma = 1$  und  $\mu = 0$ , so erhält man eine in der Wolken- und Niederschlagsphysik weit verbreitete Exponentialverteilung. Die Tropfenverteilungsfunktion (4.38) hat mit  $\gamma = 1$  und  $\mu = 0$  und unter Verwendung der Gleichungen für die Parameter  $N_{0D}$  (4.43) und  $\beta$  (4.44) die Form:

$$n(D_D) = N_D \left( \frac{w_1}{m^* N_D \Gamma(4)} \right)^{\frac{1}{3}} \exp \left[ - \left( \frac{w_1}{m^* N_D \Gamma(4)} \right)^{\frac{1}{3}} D_D \right]. \quad (4.66)$$

Krigian und Mazin verwendeten die Parameter  $\gamma = 1$  und  $\mu = 2$ . Daraus ergibt sich folgende zweiparametrische Gammaverteilung, die im Weiteren Krigian-Mazin-Verteilung genannt werden soll

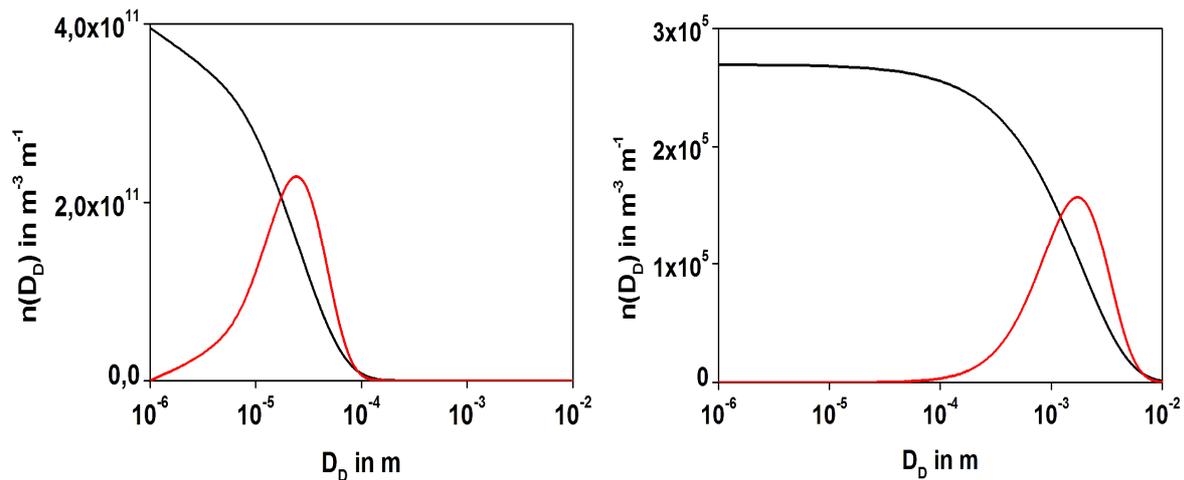
$$n(D_D) = \frac{N_D}{\Gamma(3)} \left( \frac{w_1 \Gamma(3)}{m^* N_D \Gamma(6)} \right)^{-1} D_D^2 \exp \left[ - \left( \frac{w_1 \Gamma(3)}{m^* N_D \Gamma(6)} \right)^{\frac{1}{3}} D_D \right]. \quad (4.67)$$

Die Integralwerte  $\xi_1$  bis  $\xi_{13}$  in den Gleichungen (4.54) und (4.55) sind für die beiden verschiedenen Tropfenverteilungen wie folgt gegeben. Für die Exponentialverteilung (4.66) sind:

$$\begin{aligned} \xi_1 &= \beta^{-2} \Gamma(2), & \xi_2 &= \beta^{-1/4} \Gamma(11/4), & \xi_3 &= \beta^{-1/4} \Gamma(11/4), & \xi_4 &= \beta^{-5/2} \Gamma(5/2), \\ \xi_5 &= \beta^{-3/2} \Gamma(3/2), & \xi_6 &= \beta^{-9/4} \Gamma(9/4), & \xi_7 &= \beta^{-7/2} \Gamma(7/2), & \xi_8 &= \beta^{-15/4} \Gamma(15/4), \\ \xi_9 &= \beta^{-2} \Gamma(2), & \xi_{10} &= \beta^{-1/4} \Gamma(11/4), & \xi_{11} &= \beta^{-2} \Gamma(2), & \xi_{12} &= \beta^{-1/4} \Gamma(11/4), \\ \xi_{13} &= \beta^{-3} \Gamma(3) \end{aligned}$$

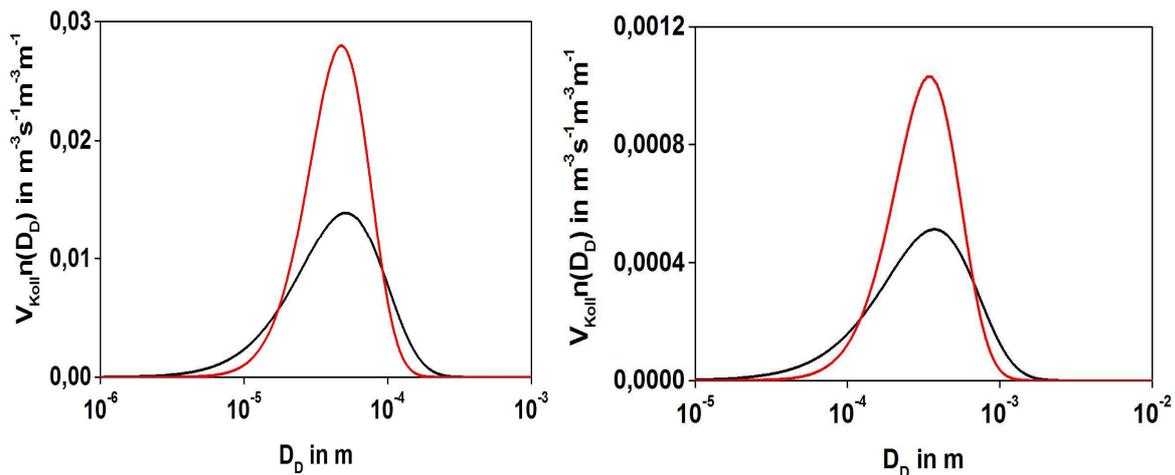
und für die Krigian-Mazin-Verteilung (4.67) sind:

$$\begin{aligned} \xi_1 &= \beta^{-4} \Gamma(4), & \xi_2 &= \beta^{-19/4} \Gamma(19/4), & \xi_3 &= \beta^{-19/4} \Gamma(19/4), & \xi_4 &= \beta^{-9/2} \Gamma(9/2), \\ \xi_5 &= \beta^{-7/2} \Gamma(7/2), & \xi_6 &= \beta^{-17/4} \Gamma(17/4), & \xi_7 &= \beta^{-11/2} \Gamma(11/2), & \xi_8 &= \beta^{-23/4} \Gamma(23/4), \\ \xi_9 &= \beta^{-4} \Gamma(4), & \xi_{10} &= \beta^{-19/4} \Gamma(19/4), & \xi_{11} &= \beta^{-4} \Gamma(4), & \xi_{12} &= \beta^{-19/4} \Gamma(19/4), \\ \xi_{13} &= \beta^{-5} \Gamma(5). \end{aligned}$$



**Abbildung 4.9:** Tropfenzahldichteverteilung des schwachen (linke Abb.) und des starken Niederschlagsereignisses (rechte Abb.). Schwarz ist die exponentielle Verteilungsfunktion und rot die Verteilungsfunktion nach Krigian und Mazin dargestellt.

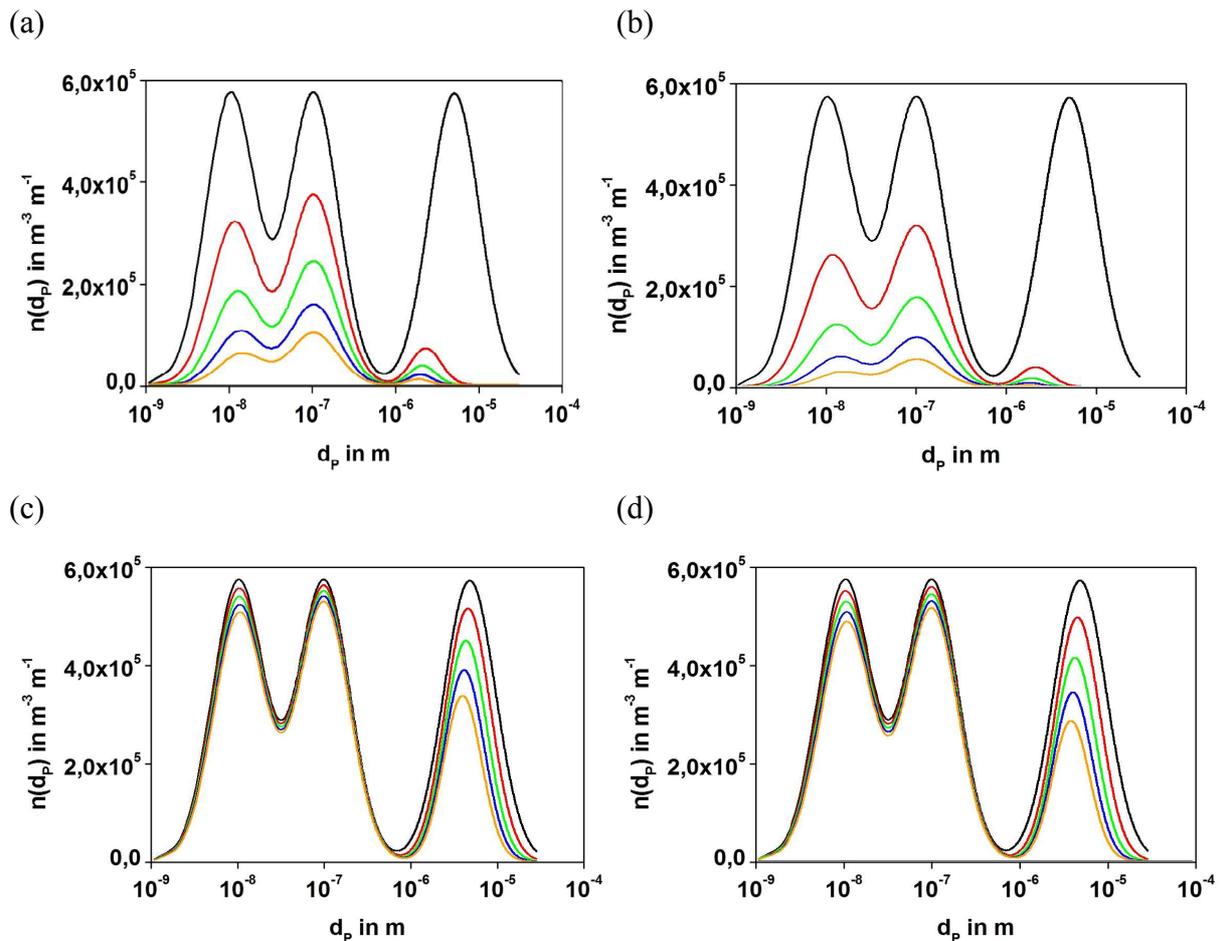
In Abbildung 4.9 sind die Tropfenzahldichteverteilungen für die verschiedenen Klassifikationen und Verteilungsfunktionen dargestellt. Generell gelten exponentielle Verteilungsfunktionen als gute Näherung für über einen längeren Zeitraum gemittelte Tropfenspektren. Bei der Betrachtung von momentanen Spektren überschätzen sie im Allgemeinen die Anzahl sehr kleiner Tropfen und sehr großer Tropfen (Andronache et al., 2006). Hier zeigen mehrparametrische Gammaverteilungen eine bessere Übereinstimmung. Wie in Abbildung 4.9 verdeutlicht zeigt die Exponentialverteilung eine unrealistisch hohe Tropfenzahl im Bereich kleiner Tropfendurchmesser in beiden Niederschlagsklassen. Die Tropfendurchmesser variieren im exponentiellen Spektrum zwischen 0 und 100  $\mu\text{m}$  im Fall des schwachen Niederschlags und zwischen 0 und einigen Millimetern im Fall des starken Niederschlags. Der größte Teil des Flüssigwassergehalts des exponentiellen Tropfenspektrums ist auf kleine Tropfen verteilt. Bei der Verteilungsfunktion nach Krigian und Mazin variieren die Tropfengrößen zwischen 1 und 100  $\mu\text{m}$  mit einem Maximum der Tropfenzahl bei 50  $\mu\text{m}$  im Fall des schwachen Niederschlags und zwischen 100  $\mu\text{m}$  und einigen Millimetern mit einem Maximum der Tropfenzahl bei 2 mm im Fall des starken Niederschlags. Dies steht in guter Übereinstimmung mit gemessenen Tropfenspektren nach Mircea und Stefan (1998). Im Fall des schwachen Niederschlagsereignisses enthält das Tropfenspektrum wesentlich mehr und wesentlich kleinere Tropfen im Vergleich zum starken Niederschlagsereignis. In Abbildung 4.10 ist das Kollisionsvolumen nach Gleichung (4.2) unter Verwendung der Tropfengeschwindigkeit nach (4.45) multipliziert mit der jeweiligen Anzahldichte der Tropfen des Durchmessers  $D_D$  für die beiden Verteilungsfunktionen und Niederschlagsklassen dargestellt.



**Abbildung 4.10:** Kollisionsvolumen der Niederschlagstropfenverteilungen für das schwache (linke Abb.) und das starke Niederschlagsereignis (rechte Abb.). Rot ist hier das Kollisionsvolumen der Krigian-Mazin-Verteilung und schwarz das der Exponentialverteilung dargestellt.

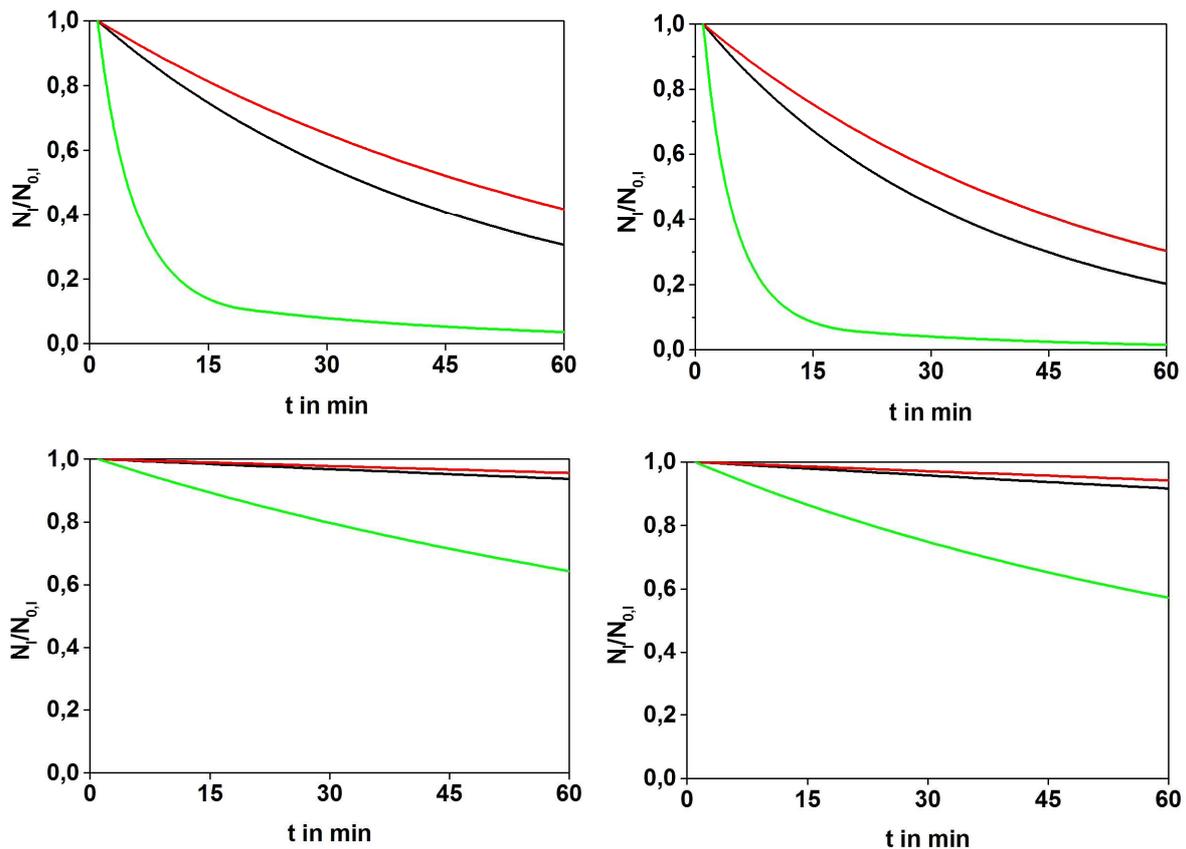
Das Kollisionsvolumen der exponentiellen Tropfenverteilung ist im Größenbereich kleiner und großer Tropfen gegenüber der Krigian-Mazin-Verteilung erhöht. Im mittleren Größenbereich zeigt die Krigian-Mazin-Verteilung höhere Kollisionsvolumina. Der Vergleich der beiden Niederschlagsklassifikationen zeigt ein mehr als eine Größenordnung höheres Kollisionsvolumen im Fall des schwachen Niederschlages. Die Begründung liegt in der deutlich höheren Tropfenanzahl im Fall des schwachen Niederschlagsereignisses. Insgesamt zeigt der Vergleich der Kollisionsvolumina der einzelnen Tropfenverteilungsfunktionen geringere Unterschiede als der Vergleich der Tropfenanzahldichteverteilungen selbst.

Um den Einfluss der beschriebenen Tropfenanzahldichteverteilungen und Niederschlagsklassen auf das Auswaschen von Aerosolpartikeln zu untersuchen, wurden nun Boxmodelsimulationen für einen Zeitraum von jeweils einer Stunde Dauer durchgeführt. Für die Aerosolpartikelanzahldichteverteilung wurde die trimodale Testverteilung nach Tabelle 4.2 gewählt. Während einer Simulation werden die Tropfenverteilung, der Flüssigwassergehalt und die Tropfenanzahl konstant gehalten. Die simulierte zeitliche Entwicklung der Anzahldichteverteilung der betrachteten Testaerosolverteilung unter Einfluss des Auswaschprozesses ist in Abbildung 4.11 in 15-minütiger Auflösung dargestellt. Die Abbildung zeigt vier verschiedene Modellsimulationen, bei denen die Tropfenanzahldichteverteilung sowie die Niederschlagsklassifikationen variiert wurden. Dabei wurde der Auswaschprozess unter Verwendung der exponentiellen Tropfenanzahldichteverteilung für das starke Niederschlagsereignis (Abb. 4.11c), der Krigian-Mazin-Verteilung für das starke Niederschlagsereignis (Abb. 4.11d), der exponentiellen Tropfenanzahldichteverteilung für das schwache Niederschlagsereignis (Abb. 4.11a) und der Krigian-Mazin-Tropfenanzahldichteverteilung für das schwache Niederschlagsereignis (Abb. 4.11b) simuliert.



**Abbildung 4.11:** Zeitliche Entwicklung der Testaerosolpartikelanzahldichte unter Einfluss des Auswaschprozesses für die verschiedenen Tropfenanzahldichte- und Niederschlagsklassifikationen in 15-minütiger Auflösung (linke Abb. exponentielle Tropfenanzahldichte, rechte Abb. Krigian-Mazin-Verteilung sowie oben das schwache und unten das starke Niederschlagsereignis,  $T = 0$  min schwarz, 15 min rot, 30 min grün, 45 min blau, 60 min orange).

Generell ist ein deutlicher Unterschied des Partikelverlustes in den einzelnen Moden zu erkennen. Wie schon bei der Kollisionseffizienz gezeigt, ist das Auswaschen stark abhängig vom Partikeldurchmesser. Dies wird in allen vier betrachteten Fällen deutlich. Am effizientesten wird die dritte Mode in dem von der Impaktion dominierten Größenbereich ausgewaschen. Die Partikelanzahl in der zweiten Mode im Größenbereich des Greenfield Minimums zeigt die geringste Abnahme in allen betrachteten Fällen. Die Abnahme der Partikelanzahldichte in der ersten Mode reiht sich zwischen der Abnahme der Partikelanzahldichte der zweiten und dritten Mode ein. Weiter zeigt sich ein starker Einfluss der Niederschlagsklassifikationen auf den vom Auswaschprozess verursachten Partikelverlust, wobei im Falle des schwachen Niederschlagsereignisses ein deutlich höherer Verlust an Partikeln als im Falle des starken Niederschlagsereignisses zu beobachten ist. Dies lässt sich zum Einen erklären durch die höhere Kollisionseffizienz der kleineren Tropfen im Fall des schwachen Niederschlagsereignisses und zum Anderen durch das aus der wesentlich höheren Anzahl an Tropfen resultierende höhere Kollisionsvolumen der Tropfenverteilung im

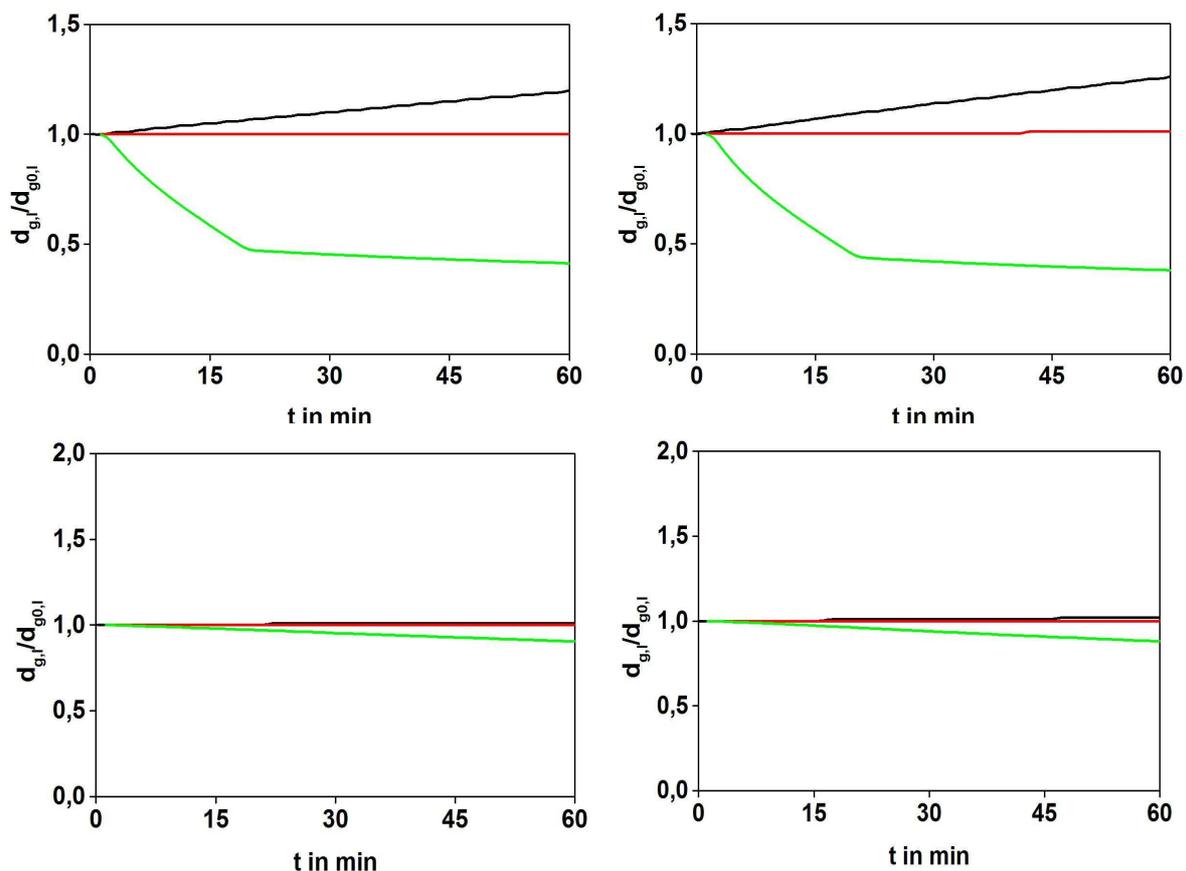


**Abbildung 4.12:** Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses der momentanen Gesamtpartikelanzahldichte  $N$  der einzelnen Moden zur Gesamtpartikelanzahldichte  $N_0$  zum Zeitpunkt  $t = 0$ . (linke Abb. exponentielle Tropfenanzahldichteverteilung, rechte Abb. Krigian-Mazin-Verteilung sowie oben das schwache und unten das starke Niederschlagsereignis). Hier sind schwarz die erste, rot die zweite und grün die dritte Mode dargestellt.

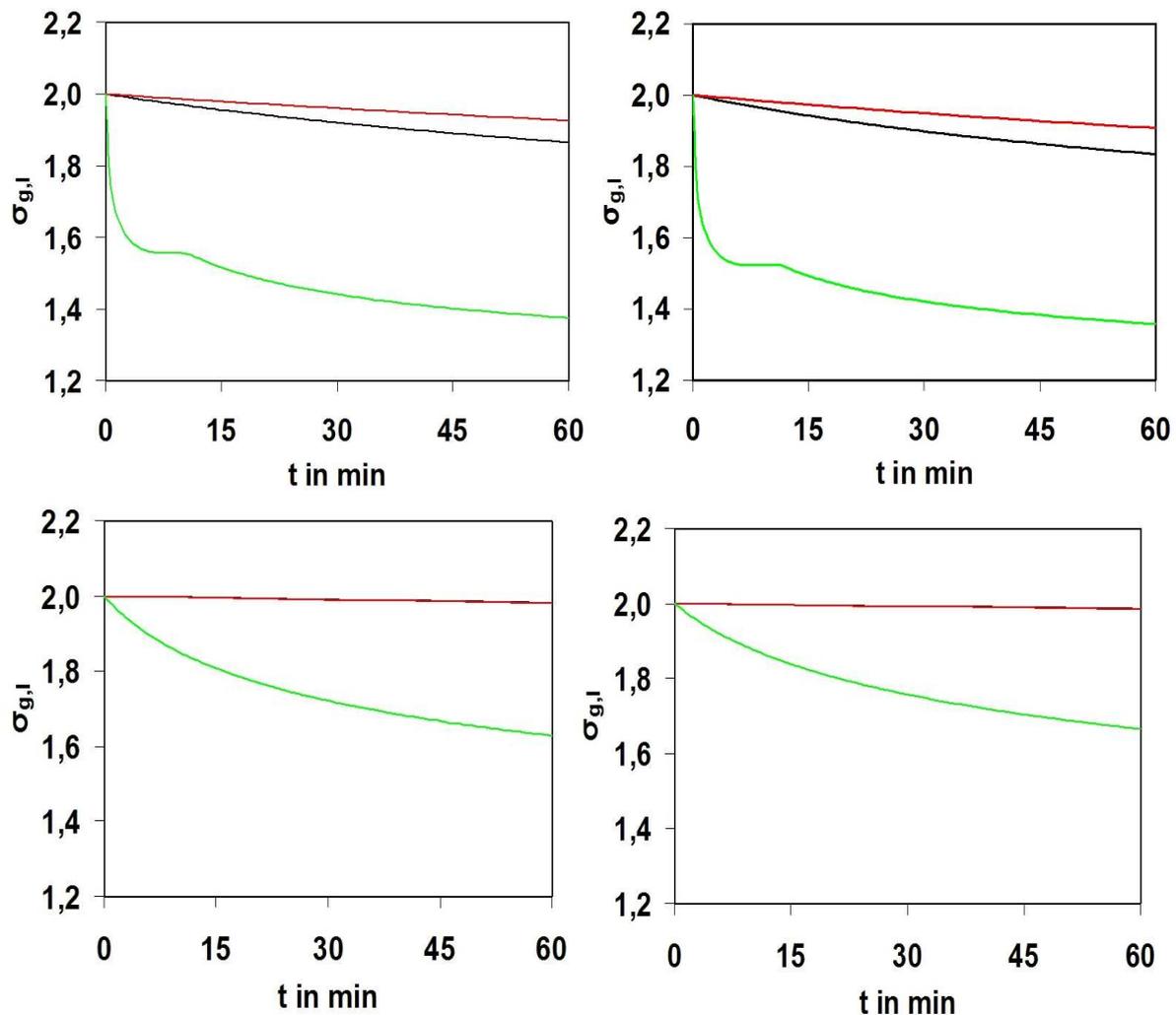
Fall des schwachen Niederschlagsereignisses. Die Variation der Tropfenanzahldichteverteilungsfunktion ergibt hingegen nur geringe Unterschiede im Partikelverlust in beiden betrachteten Niederschlagsklassifikationen. Hierbei ist ein etwas geringerer Partikelverlust unter Annahme der exponentiellen Tropfenverteilungsfunktion im Fall des schwachen sowie des starken Niederschlagsereignisses zu beobachten ist.

Der zeitliche Verlauf des Verhältnisses der momentanen Gesamtpartikelanzahldichte zur Gesamtpartikelanzahldichte zum Zeitpunkt  $t = 0$  der jeweiligen Moden ist in Abbildung 4.12 dargestellt. Bei der Betrachtung dieses zeitlichen Verlaufs wird der schon beschriebene Partikelverlust in den einzelnen Moden nochmals verdeutlicht. Es zeigt sich, dass der Auswaschprozess nicht linear ist. Die Partikel werden zu Beginn der Simulation stärker ausgewaschen als zum Ende hin. Auffällig ist der zeitliche Verlauf der Partikelanzahl in der dritten Mode im Falle des schwachen Niederschlagsereignisses. In den ersten 10 min werden hier die Partikel sehr effizient ausgewaschen mit einer deutlichen Abnahme der Effizienz im weiteren Verlauf wobei bereits nach 15 min Simulationszeit 90 % der Partikel der dritten Mode ausgewaschen sind.

Um dieses Verhalten zu erklären, sind in den Abbildungen 4.13 und 4.14 der zeitliche Verlauf der mittleren geometrischen Durchmesser der einzelnen Moden und die Standardabweichung der Moden dargestellt. Hier zeigen sich eine Zunahme des mittleren geometrischen Durchmessers der ersten Mode und eine Abnahme des mittleren geometrischen Durchmessers der dritten Mode. Die beiden Moden verschieben sich also hin zu Partikelgrößen mit niedrigeren Kollisionseffizienzen. Der mittlere geometrische Durchmesser der zweiten Mode bleibt nahezu unbeeinflusst. Die Standardabweichung nimmt im Fall des schwachen Niederschlags in allen drei Moden ab, wobei auch hier die zweite Mode den geringsten Abfall zeigt. Die einzelnen Moden werden hier also schmaler. Im Fall des starken Niederschlags bleiben die Standardabweichungen der ersten und zweiten Mode nahezu konstant und nur die dritte Mode zeigt einen Abfall. Bei der Simulation des schwachen Niederschlagsereignisses wird eine Singularität in den ersten zehn Minuten in den Graphen des mittleren Durchmessers und der Standardabweichung der dritten Mode deutlich. Zu erklären ist dieser Verlauf mit der Verschiebung der dritten Mode in einen Partikelgrößenbereich in dem die Impaktion nicht mehr wirksam ist (analog zu der Kollisionseffizienz). Dabei repräsentieren die Singularitäten den Zeitpunkt, an dem die Stokeszahl gleich der kritischen Stokeszahl ist.

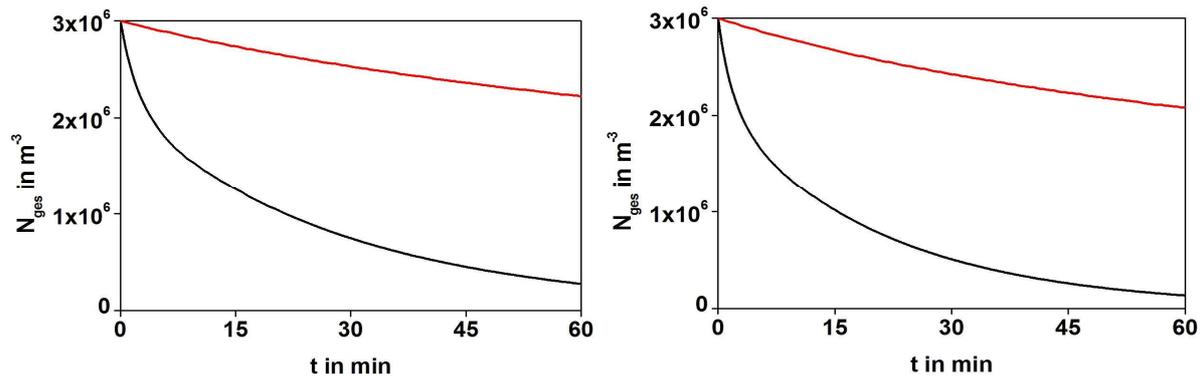


**Abbildung 4.13:** Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses des momentanen mittleren geometrischen Durchmessers zu jenem zum Zeitpunkt  $t = 0$  der jeweiligen Moden. Die Simulationen mit der exponentiellen Tropfenzahlverteilung sind links dargestellt und die mit der Krigian-Mazin-Verteilung rechts. Bei den oberen Abb. wurde das schwache bei den unteren das starke Niederschlagsereignis simuliert. Hier sind schwarz die erste, rot die zweite und grün die dritte Mode dargestellt.

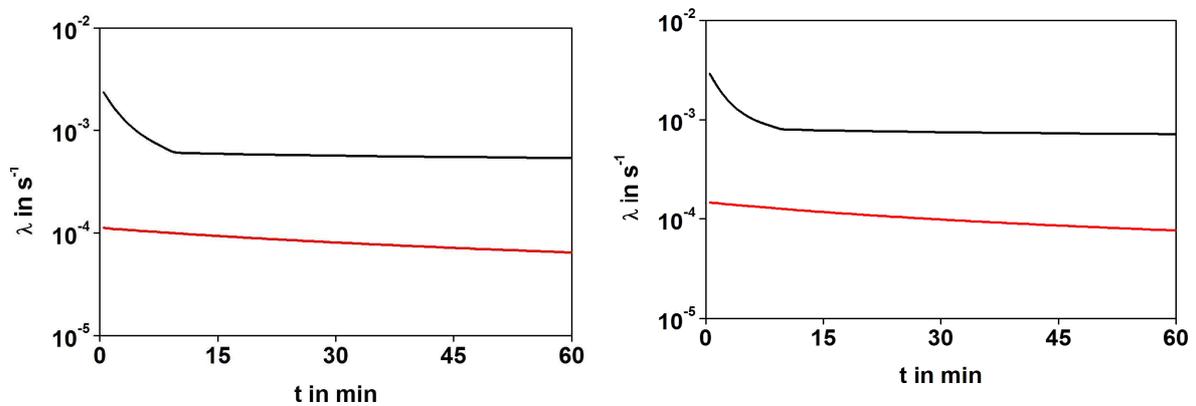


**Abbildung 4.14:** Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der einzelnen Moden. (linke Abbildungen exponentielle Tropfenanzahldichteverteilung, rechte Krigian-Mazin-Verteilung. Bei den oberen Abb. wurde das schwache bei den unteren das starke Niederschlagsereignis simuliert. Hier sind schwarz die erste Mode, rot die zweite Mode und grün die dritte Mode dargestellt.

Mit diesen Erkenntnissen kann auch der Verlauf der Partikelanzahlen Abbildung 4.12 erklärt werden. Die nicht lineare Abnahme der Partikelanzahl resultiert aus der Verschiebung der Moden hin zu Partikelgrößenbereichen mit kleineren Kollisionseffizienzen. Dabei wird die dritte Mode in einen Größenbereich verschoben in dem die Impaktion nicht mehr wirksam ist und somit die Kollisionseffizienz stark verringert wird. In den Abbildungen 4.15 und 4.16 ist der zeitliche Verlauf der über alle Moden aufsummierten Gesamtpartikelanzahl sowie der zeitliche Verlauf der Partikelverlustrate zur Verdeutlichung der Auswirkungen der beiden betrachteten Niederschlagsklassen dargestellt. Hier wird noch einmal die wesentlich höhere Effizienz des schwachen Niederschlagsereignisses deutlich. Auch die zu beobachtende Abnahme der Verlustrate mit der Zeit ist gleichbedeutend mit einer Abnahme der Effizienz des Auswaschprozesses.

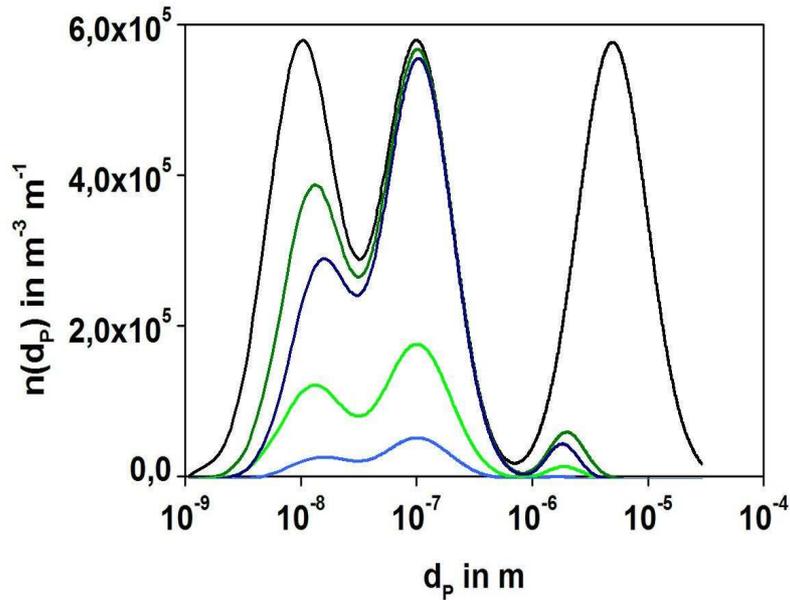


**Abbildung 4.15:** Zeitlicher Verlauf der Gesamtpartikelanzahl aufsummiert über alle Moden (exponentielle Tropfenanzahldichteverteilung links, Krigian-Mazin-Verteilung rechts). Hier ist schwarz das schwache und rot das starke Niederschlagsereignis dargestellt.



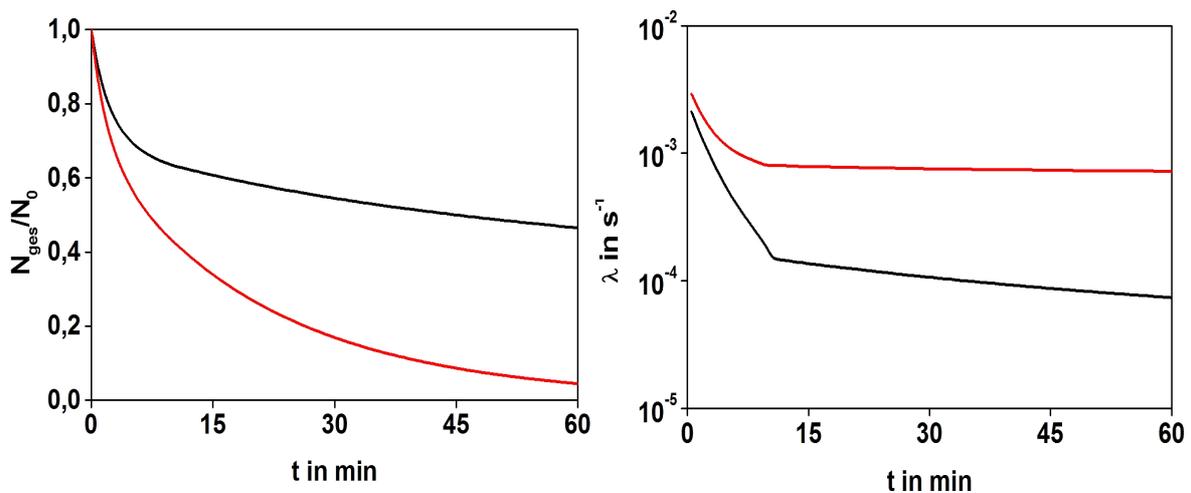
**Abbildung 4.16:** Zeitlicher Verlauf der Partikelverlustrate aufsummiert über alle Moden (exponentielle Tropfenanzahldichteverteilung links, Krigian-Mazin-Verteilung rechts). Hier ist schwarz das schwache und rot das starke Niederschlagsereignis dargestellt.

Die vorangegangenen Studien zeigten den Einfluss der Eigenschaften des Niederschlags auf den Auswaschprozess. Im Folgenden soll nun die Bedeutung der phoretischen und elektrischen Effekte untersucht werden. Um den Beitrag dieser Effekte zu quantifizieren, wurde zunächst eine Simulation unter Vernachlässigung dieser Effekte erstellt. Diese Simulation wird im Folgenden mit Simulation A bezeichnet. In einer zweiten Simulation wurde die phoretischen Effekte mit einer Temperaturdifferenz der Tropfenoberfläche zur umgebenden Luft von 5 K und einer Relativen Feuchte von 60 % berücksichtigt. Weiter wurde die elektrische Ladung der Partikel und Tropfen mit einem empirischen Parameter  $\alpha$  von 5 berücksichtigt. Diese zweite Simulation wird im Folgenden mit Simulation B bezeichnet. Bei beiden Simulationen wurde die Tropfenverteilung mittels der Krigian-Mazin-Verteilung beschrieben. Für den Flüssigwassergehalt und die Tropfenanzahl wurde das schwache Niederschlagsereignis gewählt. In der Abbildung 4.17 ist der zeitliche Verlauf der Partikelanzahldichteverteilung für die Simulationen A und B in 30-minütiger Auflösung dargestellt. Hier zeigt sich ein deutlich höherer Partikelverlust bei Berücksichtigung der phoretischen und elektrischen Effekte. Die mittlere Mode wird dabei am stärksten beeinflusst. Der Grund für dieses Verhalten liegt in der Kollisionseffizienz, welche im Bereich des Greenfield Minimums unter Einfluss der phoretischen und elektrischen Effekte markant erhöht wird.



**Abbildung 4.17:** Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahldichteverteilungen der Simulationen A und B. Schwarz ist hier die Verteilung der Simulationen A und B zum Zeitpunkt  $t = 0$  dargestellt. Die Verteilungen der Simulation A sind für  $t = 30$  min dunkelgrün und  $t = 60$  min dunkelblau, die der Simulation B für  $t = 30$  min hellgrün und  $t = 60$  min hellblau dargestellt.

In Abbildung 4.18 (links) ist der zeitliche Verlauf des Verhältnisses der momentanen Gesamtpartikelanzahldichte zur Gesamtpartikelanzahldichte zum Zeitpunkt  $t = 0$  der Simulationen A und B dargestellt. Hier wird noch einmal die Bedeutung der phoretischen und elektrischen Effekte deutlich. Während die Partikelanzahl in der Simulation A nach 60 min um etwa 50 % abgenommen hat, sinkt die Partikelanzahl auf etwa 5 % des Startwertes in der Simulation B. Die Verlustrate Abbildung 4.18 (rechts) wird also durch den Einfluss der Thermophorese, Diffusiophorese sowie der Anziehung infolge der elektrischen Ladung der Partikel und Tropfen unter den gewählten Parametern deutlich erhöht.



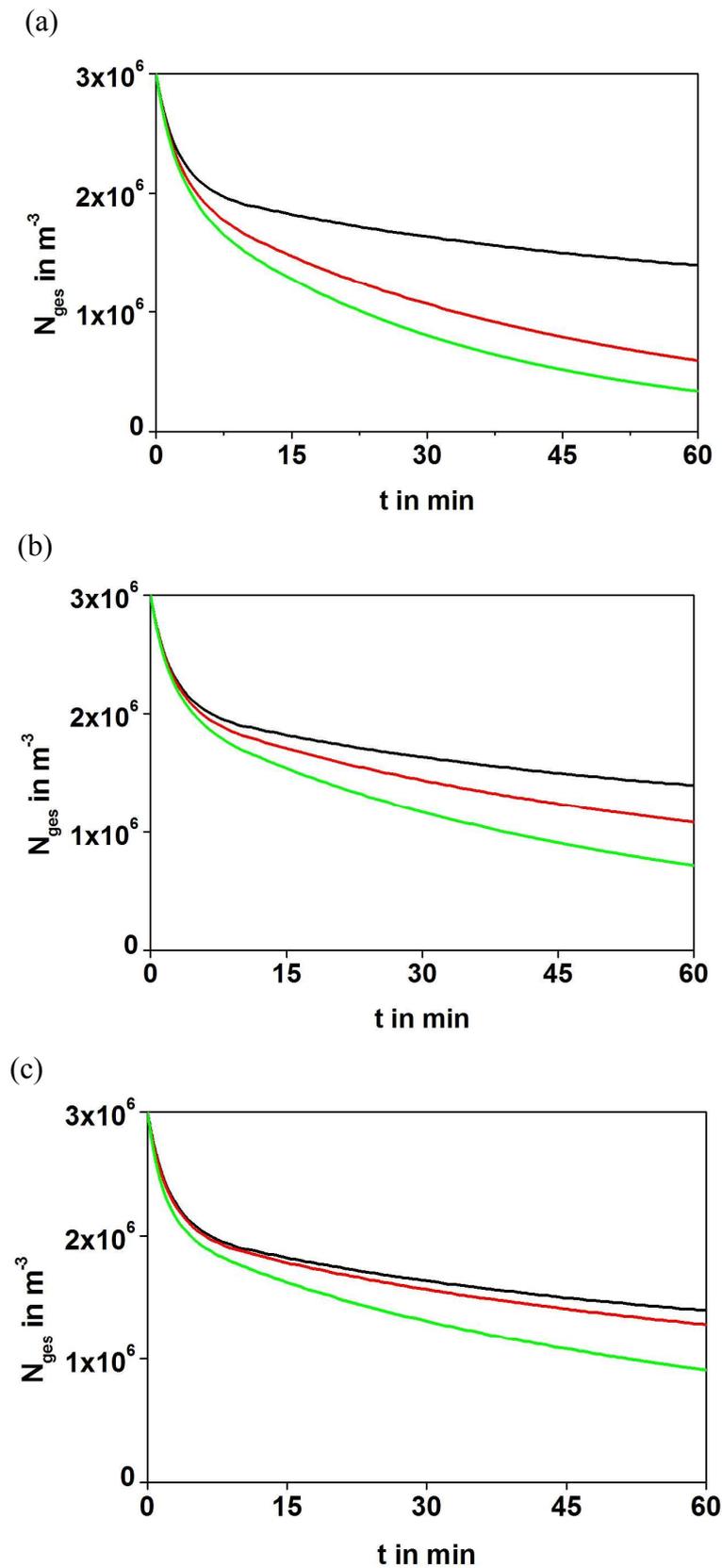
**Abbildung 4.18:** Die zeitlichen Verläufe des Verhältnisses der momentanen Gesamtpartikelanzahldichte  $N$  zur Gesamtpartikelanzahldichte zum Zeitpunkt  $t = 0$  (links) sowie der Partikelverlustrate (rechts) für die Simulationen A (schwarz) und B (rot).

Es stellt sich nun noch die Frage, wie sensitiv die phoretischen und elektrischen Effekte auf die Temperaturdifferenz zwischen Tropfenoberfläche und der den Tropfen umgebenden Luft, die Relative Feuchte und die elektrische Ladung der Partikel und Tropfen reagieren. Um diese Frage zu beantworten, wurden mit dem Boxmodell Simulationen durchgeführt, in denen diese Parameter variiert wurden. In diesen Simulationen wurden die Brownsche Diffusion, die Interzeption und die Impaktion als grundlegende die Partikel-Tropfen-Kollisionen bestimmende Prozesse berücksichtigt. Zusätzlich zu diesen grundlegenden Prozessen wurde der jeweilige zu untersuchende phoretische Prozess bzw. die Anziehung infolge der elektrischen Ladung der Partikel und Tropfen berücksichtigt. Es wurden also Simulationen erstellt unter Berücksichtigung der grundlegenden Prozesse sowie der Thermophorese. Hierbei wurde jeweils eine Temperaturdifferenz von 0 K (keine Thermophorese), 3 K und 5 K verwendet. Dabei wurde angenommen, dass die Tropfenoberfläche gegenüber der umgebenden Luft kälter ist. Diese Simulationen werden im Folgenden mit T1, T2 und T3 bezeichnet. Weiterhin wurden Simulationen erstellt unter Berücksichtigung der grundlegenden Prozesse sowie der infolge Evaporation am Tropfen auftretenden Diffusiophorese. Wobei hier eine Relative Feuchte von 100 % mit einer Temperaturdifferenz von 0 K (keine Diffusiophorese), eine Relative Feuchte von 80 % mit einer Temperaturdifferenz von 3 K sowie eine Relative Feuchte von 60 % mit einer Temperaturdifferenz von 5 K verwendet wurden. Diese Simulationen werden im Folgenden mit D1, D2 und D3 bezeichnet. Zuletzt wurden Simulationen erstellt unter Berücksichtigung der grundlegenden Prozesse sowie der Anziehung infolge der elektrischen Ladung der Partikel und Tropfen. Dabei wurde der Parameter  $\alpha = 0$  (ungeladene Partikel und Tropfen), 3 und 7 gewählt. Die Wahl von  $\alpha = 7$  bedeutet dabei eine starke elektrische Ladung, wie sie in Gewitterwolken zu finden ist (Pruppacher und Klett, 1998). Diese Simulationen werden im Folgenden mit E1, E2 und E3 bezeichnet. In der Tabelle 4.3 sind die verschiedenen Simulationen zusammengefasst.

**Tabelle 4.3:** Die erstellten Simulationen zur Untersuchung der Sensitivität der Thermophorese, Diffusiophorese und Anziehung infolge der elektrischen Partikel-Tropfen-Ladung auf die die jeweiligen Prozesse bestimmenden Parameter.

Simulationsbezeichnung	berücksichtigte Kollisionseffizienzen	Prozesse bestimmender Parameter
T1	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_{Therm}$	$\Delta T = 0 \text{ K}$
T2	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_{Therm}$	$\Delta T = 3 \text{ K}$
T3	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_{Therm}$	$\Delta T = 5 \text{ K}$
D1	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_{Diff}$	$RH = 100 \%, \Delta T = 0 \text{ K}$
D2	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_{Diff}$	$RH = 80 \%, \Delta T = 3 \text{ K}$
D3	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_{Diff}$	$RH = 60 \%, \Delta T = 5 \text{ K}$
E1	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_e$	$\alpha = 0$
E2	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_e$	$\alpha = 3$
E3	$E_{BD}, E_{Int}, E_{Imp}, E_e$	$\alpha = 7$

Die Ergebnisse der Sensitivitätsstudien sind in Abbildung 4.19 in Form der zeitlichen Verläufe des Verhältnisses der momentanen über alle Moden aufsummierten Gesamtpartikelanzahldichte zu der aufsummierten Gesamtpartikelanzahldichte zum Zeitpunkt  $t = 0$  dargestellt. Bei der Betrachtung der Ergebnisse der Simulationen T1, T2 und T3 zeigt sich generell eine Zunahme des Partikelverlustes unter Berücksichtigung der Thermophorese. Des Weiteren ergibt der Vergleich der Simulationen T2 und T3 einen höheren Partikelverlust bei größeren Temperaturdifferenzen zwischen Tropfenoberfläche und der den Tropfen umgebenden Luft (Abbildung 4.19 (a)). Die Thermophorese gewinnt also wie erwartet an Bedeutung mit zunehmender Temperaturdifferenz. Die Ergebnisse der Simulationen D1, D2 und D3 (Abbildung 4.19 (b)) zeigen ähnlich wie die Ergebnisse der Simulationen T1, T2 und T3 eine Zunahme des Partikelverlustes unter Berücksichtigung der Diffusiophorese. Allerdings ist der Einfluss der Diffusiophorese generell als etwas geringer einzuschätzen als jener der Thermophorese, was in Übereinstimmung mit der Betrachtung der Kollisionseffizienz (Kapitel 4.1.2) steht. Dabei kann mit abnehmender Relativer Feuchte und zunehmender Temperaturdifferenz eine Erhöhung des durch die Diffusiophorese bewirkten Partikelverlustes beobachtet werden. Die Simulation D3 ergibt also einen höheren Partikelverlust als die Simulation D2. Auch die Berücksichtigung der Anziehung infolge elektrischer Ladung der Partikel und Tropfen bewirkt eine Zunahme des Partikelverlustes (Abbildung 4.19 (c)). Die Bedeutung dieses Prozesses für das Auswaschen von Aerosolpartikeln ist im Vergleich zur Bedeutung der Thermophorese und Diffusiophorese geringer einzuschätzen. Der durch die elektrische Anziehung verursachte Partikelverlust ist geringer als der durch die phoretischen Prozesse. Der Vergleich der Simulationen E2 und E3 zeigt, dass eine Erhöhung der elektrischen Ladung der Partikel und Tropfen in einer Zunahme des Partikelverlustes resultiert. Die bisherige betrachtete Aerosolpartikelverteilung ist eine stark idealisierte Form des atmosphärischen Aerosols. An Messungen angelehnte Partikelverteilungen weisen im Allgemeinen neben den unterschiedlichen mittleren Durchmessern der einzelnen Moden auch Unterschiede in der Partikelanzahl der einzelnen Moden und in den Standardabweichungen auf. Jaenicke (1998) zeigte auf der Basis langjähriger Messungen, dass das atmosphärische Aerosol in verschiedene Klassen bezüglich seiner Quellen und seiner Zusammensetzung unterteilt werden kann. Dabei konnten die Partikelverteilungen der einzelnen Klassen mittels dreier sich überlagernder Lognormalverteilungen angenähert werden. Die von Jaenicke gegebenen Partikelverteilungen werden oftmals als Standardverteilung zur Untersuchung des Einflusses verschiedener meteorologischer und physikalischer Prozesse auf die Partikelverteilung genutzt. Daher soll nun das Auswaschen an drei verschiedenen Partikelklassen: dem kontinentalen Hintergrundaerosol, dem ländlichen Aerosol und dem urbanen Aerosol untersucht werden. Die Parameter der Partikelanzahldichteverteilungsfunktionen der drei Moden dieser Klassen sind in Tabelle 4.4 zusammengefasst.

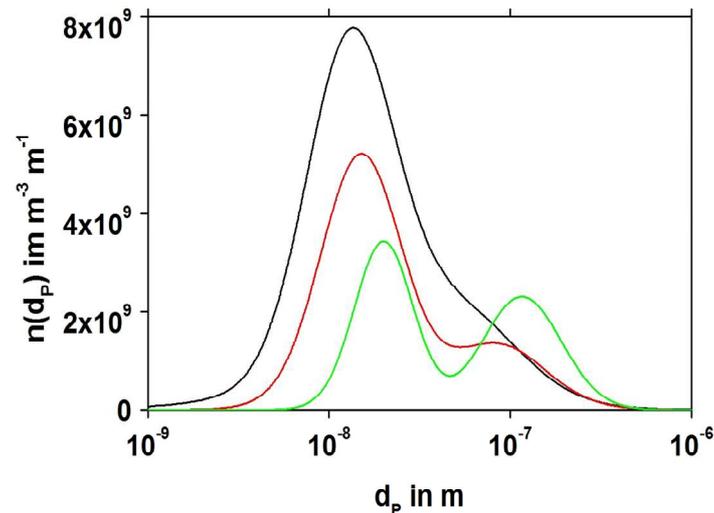


**Abbildung 4.19:** Zeitliche Verläufe des Verhältnisses der momentanen über alle Moden aufsummierten Partikelanzahldichte zu der Partikelanzahldichte zum Zeitpunkt  $t = 0$  der Simulationen: (a) T1 schwarz, T2 rot und T3 grün, (b) D1 schwarz, D2 rot und D3 grün sowie (c) E1 schwarz, E2 rot und E3 grün.

**Tabelle 4.4:** Parameter der Anzahlgrößenverteilungen nach Jaenicke (1998)

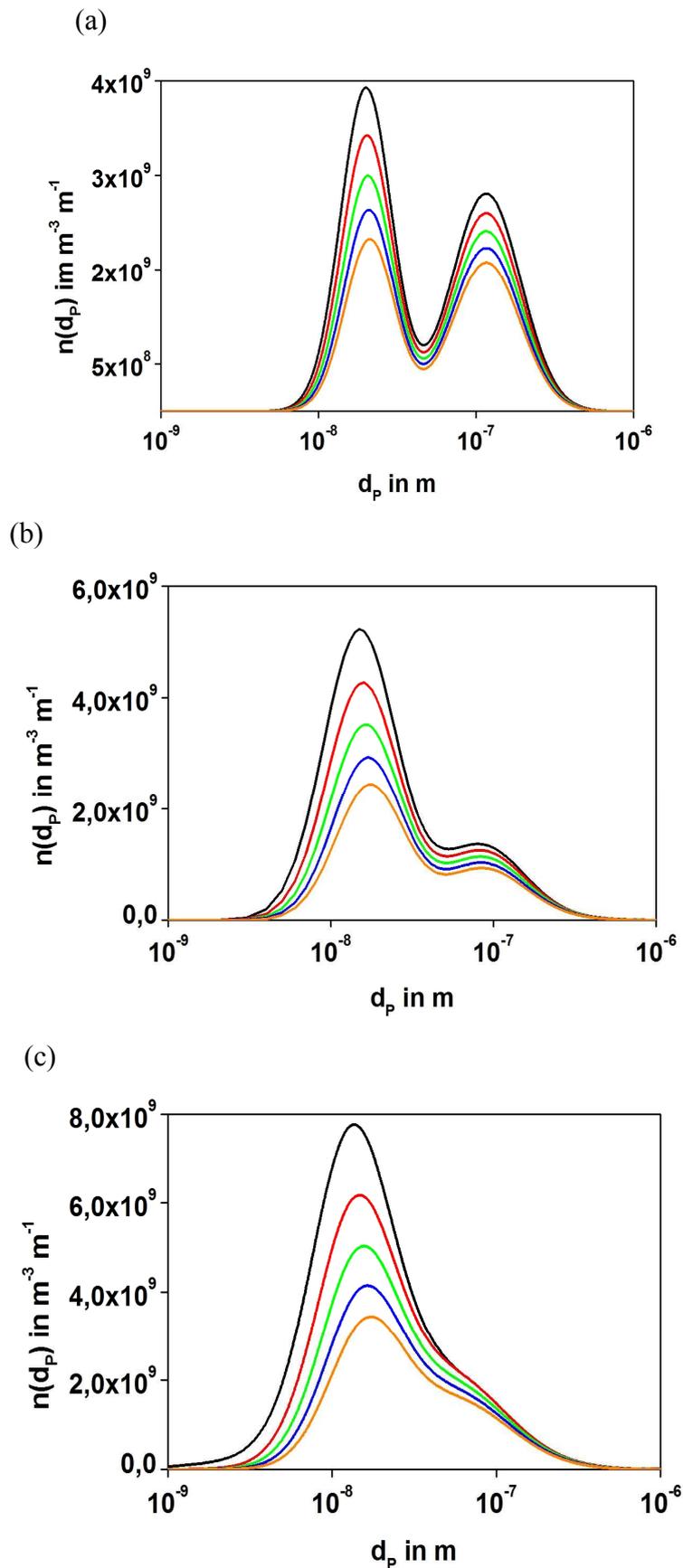
Klassifikation	Mode 1	Mode 2	Mode 3
<b>kontinentaler Hintergrund</b>	$N = 3,2 \cdot 10^9 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 0,02 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 1,45$	$N = 2,9 \cdot 10^9 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 0,11 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 1,65$	$N = 3,0 \cdot 10^5 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 1,8 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 2,39$
<b>ländliches Aerosol</b>	$N = 6,65 \cdot 10^9 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 0,015 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 1,67$	$N = 1,47 \cdot 10^9 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 0,054 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 3,6$	$N = 1,99 \cdot 10^9 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 0,84 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 1,84$
<b>urbanes Aerosol</b>	$N = 9,9 \cdot 10^9 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 0,013 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 1,75$	$N = 1,11 \cdot 10^9 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 0,014 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 4,64$	$N = 3,64 \cdot 10^9 \text{ m}^{-3}$ $d_g = 0,05 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ $\sigma = 2,17$

Das kontinentale Hintergrundaerosol enthält hauptsächlich primäre Partikel natürlichen Ursprungs (z.B. Mineralstaubpartikel, Seesalz, Pollen). Es unterscheidet sich von den beiden anderen Klassen durch eine relativ geringe Gesamtpartikelanzahl. Der Großteil der Partikel verteilt sich dabei auf die erste und zweite Mode, welche sich deutlich im Aitkenpartikelgrößenbereich und im Akkumulationspartikelgrößenbereich abzeichnen. Die dritte Mode ist im Grobpartikelgrößenbereich angesiedelt, allerdings mit einer um 4 Größenordnungen kleineren Partikelanzahl. Das ländliche Aerosol ist ein Mischaerosol aus hauptsächlich natürlichen primären und sekundären Partikeln mit einem geringen Anteil anthropogener Partikel. Es zeigt die höchsten Partikelanzahlen in der ersten Mode im Aitkenpartikelgrößenbereich. Die zweite Mode befindet sich im Übergangsbereich des Aitken- zum Akkumulationspartikelgrößenbereich und die dritte Mode im Akkumulationspartikelgrößenbereich. Die Partikelanzahlen aller drei Moden der Verteilung liegen in derselben Größenordnung. Das urbane Aerosol enthält eine Mischung von Partikeln aus verschiedenen anthropogenen primären Partikeln (z.B. aus Fahrzeugemissionen, Industrieemissionen, und Hausbrandemissionen), natürlichen Emissionen und sekundären aus der Gasphase gebildeten Partikeln. Es zeigt die höchste Gesamtpartikelanzahl aller betrachteten Verteilungen, wobei sich nahezu alle Partikel im Submikrometerbereich befinden. Die erste und zweite Mode der Partikelanzahldichteverteilung liegen im Aitkenpartikelgrößenbereich. Die einzelnen Moden unterscheiden sich in der jeweiligen Partikelanzahl und der Standardabweichung. Die dritte Mode befindet sich im Übergangsbereich zwischen Aitken- und Akkumulationspartikelgrößenbereich. In der urbanen Aerosolverteilung lassen sich die klassischen Moden nicht mehr voneinander trennen. Abbildung 4.20 erlaubt einen Vergleich der drei Partikelgrößenverteilungen.

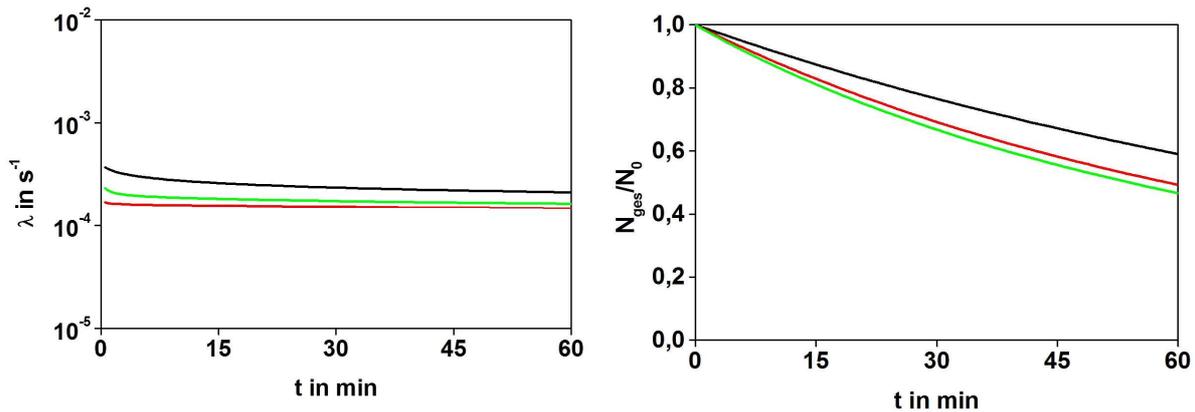


**Abbildung 4.20:** Partikelanzahldichteverteilungen des kontinentalen Hintergrundaerosols (grün), des ländlichen Aerosols (rot) und des urbanen Aerosols (schwarz).

Zur Untersuchung des Auswaschens von Aerosolpartikeln wurde hier das schwache Niederschlagsereignis gewählt. Die Tropfenanzahldichteverteilung wurde mit der Krigian-Mazin-Verteilungsfunktion beschrieben. Die Berechnung der Thermophorese und Diffusiophorese basiert auf von Laakso und Mitarbeitern (2003) in Feldmessungen zum Auswaschen des atmosphärischen Aerosols als mittlere Werte abgeleiteten Temperaturdifferenzen zwischen Tropfenoberfläche und Umgebungsluft von 1 K und Relativen Feuchten von 95 %. Die elektrische Ladung der Partikel und Tropfen wurde mit einem empirischen Parameter  $\alpha$  von 3 berücksichtigt (Laakso et al., 2003). In Abbildung 4.21 sind die Ergebnisse der Simulationen dargestellt. Wie in den vorangegangenen Simulationen unter Verwendung der Testaerosolpartikelverteilung zeigt sich auch hier eine starke Abhängigkeit des Partikelverlustes vom Partikeldurchmesser. Partikel im Aitkenpartikelgrößenbereich werden effizienter ausgewaschen als Partikel im Akkumulationspartikelgrößenbereich. Betrachtet man die Verlustrate (Abbildung 4.22), so ist bei allen drei verwendeten Partikelanzahlverteilungen eine sehr geringe Abnahme der Verlustrate über den Simulationszeitraum zu verzeichnen. Lediglich in den ersten Minuten der Simulationen sind leicht höhere Verlustraten zu erkennen. Die Begründung für diesen Verlauf liegt in der Konzentration der Partikelanzahlen in einem relativ schmalen Größenbereich, in dem relativ niedrige Kollisionseffizienzen vorherrschen (im Gegensatz zur Testaerosolverteilung). Speziell die Partikel im kontinentalen Hintergrundaerosol befinden sich größtenteils im Bereich des Greenfield Minimums der Kollisionseffizienz. Lediglich die in der ländlichen und urbanen Aerosolpartikelverteilung vorhandenen Moden im Aitkenpartikelgrößenbereich, welche anfangs in dem Größenbereich der von der Brownschen Diffusion dominierten Kollisionseffizienz liegen, werden zu Beginn der Simulationen etwas effizienter ausgewaschen. Aufgrund der in den vorangegangenen Betrachtungen bereits beschriebenen Verschiebung der Mode im Aitkenpartikelgrößenbereich hin zu größeren Durchmessern und damit hin zu niedrigeren Kollisionseffizienzen ergibt sich in den ersten Minuten der Simulationen eine etwas höhere Abnahme der Verlustrate. Mit abnehmender Effizienz



**Abbildung 4.21:** Zeitliche Entwicklung der Partikelanzahldichteverteilung unter Einfluss des Auswaschprozesses (a) kontinentales Hintergrund Aerosol, (b) ländliches Aerosol und (c) urbanes Aerosol (T = 0 min schwarz, 15 min rot, 30 min grün, 45 min blau, 60 min orange).



**Abbildung 4.22:** Zeitliche Verläufe der Partikelverlustrate (links) und des Verhältnisses der momentanen über alle Moden aufsummierten Partikelanzahldichte zu der Partikelanzahldichte zum Zeitpunkt  $t = 0$  (rechts) (schwarz: das kontinentale Hintergrundaerosol, rot: das ländliche Aerosol und grün: das urbane Aerosol).

verschieben sich die Moden nur noch geringfügig. Dies resultiert in geringfügig sinkenden Verlustraten. Der Vergleich der drei Partikelgrößenverteilungen zeigt eine etwas niedrigere Abnahme der Partikelanzahlen des kontinentalen Hintergrundaerosols. Hier ist nach 60 min Simulationszeit ein etwa 10 % geringerer Partikelverlust, gemessen an der jeweiligen Startpartikelanzahl, im Vergleich zum ländlichen und urbanen Aerosol zu verzeichnen. Der prozentuale Partikelverlust des ländlichen und urbanen Aerosols unterscheidet sich nur geringfügig.

In der Tabelle 4.5 sind aus Feldmessungen der Partikelgrößenverteilung verschiedener Autoren abgeleitete Partikelverlustraten aufgeführt. Die in dieser Tabelle aufgelisteten Partikelverlustraten liegen im Bereich von  $7 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1} - 8 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ . Im Vergleich hierzu liegen die im Rahmen dieser Arbeit simulierten Partikelverlustraten im Bereich zwischen  $1,5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} - 3,7 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ . Die simulierten Partikelverlustraten liegen somit im oberen Bereich der experimentell bestimmten Raten, zeigen also im wesentlichen eine gute Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten der verschiedenen Autoren. Es kann angenommen werden, dass die Simulationen eine obere Abschätzung der atmosphärischen Verhältnisse darstellen, wengleich hier angemerkt werden muss, dass ein derartiger Vergleich aufgrund der hohen Variabilitäten der atmosphärischen Aerosolpartikelverteilung und der Niederschlagsereignisse mit großen Unsicherheiten behaftet ist. Speziell die atmosphärische Partikelverteilung ist sehr markant abhängig von den lokalen Gegebenheiten wie lokalen Emissionen, Transport- und aerosoldynamischen Prozessen und kann sehr stark von den Standardverteilungen nach Jaenicke (1993) abweichen. Aufgrund der gegebenen starken Abhängigkeit der Effizienz des Auswaschprozesses von der Partikelgrößenverteilung kann ein derartiger Vergleich nur eine grobe Einordnung der Simulationen darstellen. Weiter wurde gezeigt, dass die Eigenschaften eines Niederschlagsereignisses signifikanten Einfluss auf die Effizienz haben. Das Tropfenspektrum eines Niederschlagsereignisses ist höchst variabel. Die Beschreibung eines solchen Spektrums mittels analytischer Funktionen, in der Form wie sie in dieser Arbeit aufgeführt sind, kann daher nur eine Abschätzung der mittleren Verhältnisse darstellen.

**Tabelle 4.5:** Experimentell ermittelte Verlustraten verschiedener Autoren

<b>gemessene Verlustraten in s<sup>-1</sup></b>	<b>Messort</b>	<b>Referenz</b>
$2 \cdot 10^{-5} - 1 \cdot 10^{-4}$	Lexington, Kentucky, USA	Davenport und Peters (1978)
$7 \cdot 10^{-6} - 4 \cdot 10^{-5}$	Hyytiälä, Finnland	Laakso et al. (2003)
$1 \cdot 10^{-5} - 8 \cdot 10^{-4}$	Pune, Indien	Chate und Pranesha (2004)
$4 \cdot 10^{-5} - 1 \cdot 10^{-4}$	Princeton, New Jersey, USA	Maria und Russell (2005)

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass das Auswaschen von Aerosolpartikeln von einer Vielzahl von Parametern beeinflusst wird. Die simulierten Verlustraten variieren in Abhängigkeit von den betrachteten Aerosolpartikelverteilungen und Niederschlagsereignissen um ein bis zwei Größenordnungen. Ein Vergleich mit in Feldmessungen ermittelten Verlustraten verschiedener Autoren zeigte, dass die simulierten Verlustraten in einer Größenordnung mit den experimentell bestimmten stehen. Als entscheidend für die Effizienz des Auswaschens stellten sich die Partikelgrößenverteilung und die Eigenschaften Tropfenanzahl und Flüssigwassergehalt des Niederschlagsereignisses heraus. Dabei ist zu beobachten, dass Partikel im Aitkenpartikelgrößenbereich und im Grobpartikelgrößenbereich sehr effizient ausgewaschen werden. Partikel im Akkumulationspartikelgrößenbereich werden hingegen weniger effizient ausgewaschen. In diesem Größenbereich konnten signifikante Einflüsse der Thermophorese und Diffusiophorese nachgewiesen werden. Die elektrische Ladung der Partikel und Tropfen spielte in den betrachteten Fällen eine untergeordnete Rolle. Der Vergleich zweier verschiedener Niederschlagsereignisse erbrachte eine wesentlich höhere Effizienz des Auswaschprozesses in schwachen Niederschlagsereignissen. Die Wahl der Tropfenverteilungsfunktion zeigte einen überraschend geringen Einfluss. Dies ist in den vergleichbaren Kollisionsvolumen beider Verteilungen begründet. Die Wahl einer exponentiellen Tropfenverteilungsfunktion erbrachte dabei leicht geringere Verlustraten als die Verwendung der Krigian-Mazin-Verteilungsfunktion.

### 4.2.3 Untersuchung des Auswaschens im dreidimensionalen Modell COSMO-ART

Im nächsten Schritt wird der Einfluss des Auswaschprozesses auf die Partikelkonzentrationsverteilungen im Rahmen des mesoskaligen dreidimensionalen Ausschnittsmodell COSMO-ART untersucht.

#### 4.2.3.1 Realisierung des Auswaschens im Modellsystem COSMO-ART

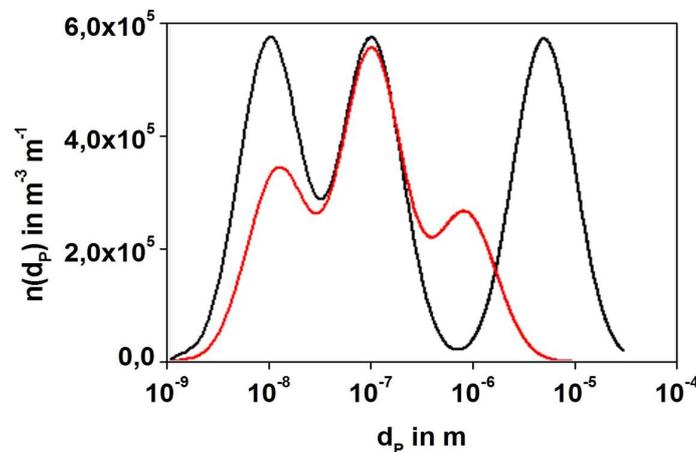
Das COSMO-ART Modell ermöglicht die Simulation der Partikelkonzentrationsverteilung unter Berücksichtigung von Transportprozessen, aerosoldynamischen und aerosolchemischen Prozessen sowie räumlich und zeitlich inhomogenen Emissionen. Das Auswaschen wird als eine zusätzliche Senke für die Partikel behandelt. Wie im Abschnitt 3.3 beschrieben, wird im COSMO-ART Modell die Gesamtpartikelverteilung durch eine Überlagerung von zwei Moden im Aitkenpartikelgrößenbereich, zwei Moden im Akkumulationspartikelgrößenbereich, einer Mode im Grobpartikelgrößenbereich und einer reinen Rußmode im Übergangsbereich des Aitken- zum Akkumulationspartikelgrößenbereich angenähert. Dabei wird jede dieser Moden über eine Lognormalverteilung mit konstanter geometrischer Standardabweichung dargestellt. Die Zahl der freien Parameter der Partikelgrößenverteilungsfunktion reduziert sich somit auf zwei, die Gesamtpartikelanzahl  $N_{Pl}$  und der geometrische Mediandurchmesser  $d_{g,1}$ . Es müssen also nur zwei prognostische Gleichungen für die Berechnung der Änderung der Partikelverteilung formuliert werden. Hier werden die Gleichung (3.34) für das nullte Moment und die Gleichung (3.35) für das dritte Moment der jeweiligen Verteilungsfunktion der einzelnen Moden gelöst. Die zeitliche Änderung des nullten und dritten Momentes infolge des Auswaschprozesses werden additiv in den aerosoldynamischen Gleichungen berücksichtigt. Für die benötigte Tropfenzahlverteilungsfunktion wird hier die Krigian-Mazin-Verteilung nach Gleichung (4.67) gewählt. In der derzeitigen Realisierung wird die Evaporation vernachlässigt. Um die hierdurch entstehende Unsicherheit zu minimieren, werden die Parameter der Tropfenverteilungsfunktion mit dem im COSMO-Modell aktuell berechneten Niederschlagsflüssigwassergehalt auf der untersten Modellfläche berechnet. Für die benötigte Gesamttropfenzahlverteilungsfunktion wird aus Gründen der Konsistenz die im Boxmodell verwendete Niederschlagsklassifikation nach Mircea und Stefan (1998) (Tabelle 4.2) verwendet, wobei der vom COSMO-Modell berechnete Niederschlagsflüssigwassergehalt die Niederschlagsklassifikation bestimmt. Die Parameter der Tropfenverteilungsfunktion werden über die gesamte Niederschlagssäule konstant gehalten. Da die Evaporation derzeit vernachlässigt wird, treten keine Thermophorese und Diffusiophorese auf. Des Weiteren liefert das Modell keine Informationen über den Ladungszustand der Aerosolpartikel und Niederschlagstropfen. Die Anziehung infolge der elektrischen Ladung wird daher nicht berücksichtigt. Aus diesen Überlegungen ergeben sich die folgenden Gleichungen für die zeitliche Änderung des normierten nullten  $\Psi_{0,i}$  und des normierten dritten Moments  $\Psi_{3,i}$  infolge des Auswaschprozesses:

$$\begin{aligned}
 -\frac{\partial \Psi_{0,i}}{\partial t} = \frac{N_0}{N} & \left[ c_1 \xi_1 (M_{-1} + A M_{-2}) + c_2 \xi_2 \left( A^{2/3} M_{-4/3} + \frac{1}{3} A^{-1/3} M_{-1/3} \right) \right. \\
 & + c_3 \xi_3 \left( A^{1/2} M_{-1} + \frac{1}{2} A^{-1/2} M_0 \right) + c_4 \xi_4 M_1 + c_5 \xi_5 M_2 \\
 & \left. + c_6 \xi_6 M_{0+2} + c_7 \xi_7 M_0 + c_8 \xi_8 M_{-1} \right] ,
 \end{aligned} \tag{4.70}$$

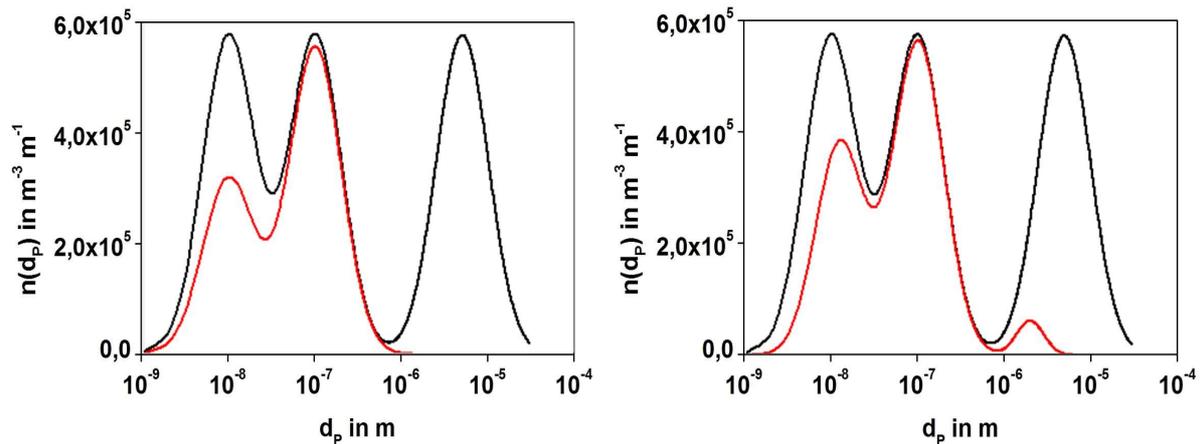
$$\begin{aligned}
 -\frac{\partial \Psi_{3,i}}{\partial t} = \frac{N_0}{\rho} & \left[ c_1 \xi_1 (M_2 + AM_1) + c_2 \xi_2 \left( A^{2/3} M_{5/3} + \frac{2}{3} A^{-1/3} M_{8/3} \right) \right. \\
 & + c_3 \xi_3 \left( A^{1/2} M_2 + \frac{1}{2} A^{-1/2} M_3 \right) + c_4 \xi_4 M_4 + c_5 \xi_5 M_5 \\
 & \left. + c_6 \xi_6 M_5 + c_7 \xi_7 M_3 + c_8 \xi_8 M_2 \right]. \tag{4.71}
 \end{aligned}$$

Die in den Gleichungen 4.70 und 4.71 enthaltenen Identitäten  $c_1$ - $c_8$  und  $\xi_1$ -  $\xi_8$  können dem Abschnitt 4.2.1 entnommen werden.

Aus der vom Modell vorgegebenen Beschreibung der Aerosolpartikelverteilung mittels sich überlagernder Lognormalverteilung mit konstanter geometrischer Standardabweichung ergibt sich die Frage, in wie weit sich diese Konstanz auf den Auswaschprozess auswirkt. Um diese Frage zu klären, wurden nochmals Boxmodellsimulationen erstellt, in denen die Standardabweichung konstant gehalten wird. In dieser Simulation wurde der Auswaschprozess in Analogie der beschriebenen Realisierung des Prozesses im COSMO-ART Modell berechnet. Es wurde dabei das schwache Niederschlagsereignis (Vgl. Tabelle 4.2) betrachtet. Die Abbildung 4.23 zeigt die Partikelanzahldichtevertelung der Simulation zu den Zeitpunkten  $t = 0$  und 30 min. Hier ist eine deutliche Verschiebung der im Grobpartikelgrößenbereich angesiedelten Mode hin zu kleineren Partikeln zu erkennen. In diesem Fall entstehen durch den Auswaschprozess neue Partikel, d.h. die Konstanz der Standardabweichung führt zu einem nicht vernachlässigbaren Fehler in der Berechnung des Auswaschprozesses. Hieraus ergibt sich, dass bei der Verwendung einer konstanten Standardabweichung auch der mittlere geometrische Durchmesser der Moden konstant gehalten werden muss, um die gezeigte Verschiebung zu vermeiden. Die Boxmodellsimulation wurde nun mit konstanter Standardabweichung und konstantem mittleren geometrischen Durchmesser wiederholt. In der Abbildung 4.24 (links) ist die Partikelanzahldichtevertelungen dieser Simulation zu den Zeitpunkten  $t = 0$  und  $t = 30$  dargestellt. Im Vergleich hierzu ist in der Abbildung 4.24 (rechts) eine Simulation, in der alle drei die Verteilungsfunktion bestimmenden Parameter,



**Abbildung 4.23:** Zeitliche Entwicklung der Partikelanzahldichtevertelung der Simulation mit konstanter Standardabweichung ( $t = 0$  min schwarz und  $t = 30$  min rot).



**Abbildung 4.24:** Zeitliche Entwicklung der Partikelanzahldichteverteilung der Simulation mit konstanter Standardabweichung und konstantem geometrischen mittleren Durchmesser (links) und der Simulation mit variablen Parametern (rechts) ( $t = 0$  min schwarz und  $t = 30$  min rot).

Gesamtanzahldichte  $N_l$ , geometrische Standardabweichung  $\sigma_{g,l}$  und mittlerer geometrischer Durchmesser  $d_{g,l}$  variabel gehalten wurden, dargestellt. Hier ist zu erkennen, dass die Konstanz der Parameter  $\sigma_{g,l}$  und  $d_{g,l}$  zu einem höheren Partikelverlust speziell in den Moden im Aitkenpartikelbereich und in der Mode im Grobpartikelbereich führt. Dies ist zu erklären mit der im Abschnitt 4.2.2 gezeigten Verschiebung dieser Moden in Partikelgrößenbereiche, in den der Auswaschprozess weniger effizient ist. Diese Verschiebung wird durch die gewählten Konstanz verhindert, resultierend in einer höheren Gesamteffizienz des Auswaschprozess.

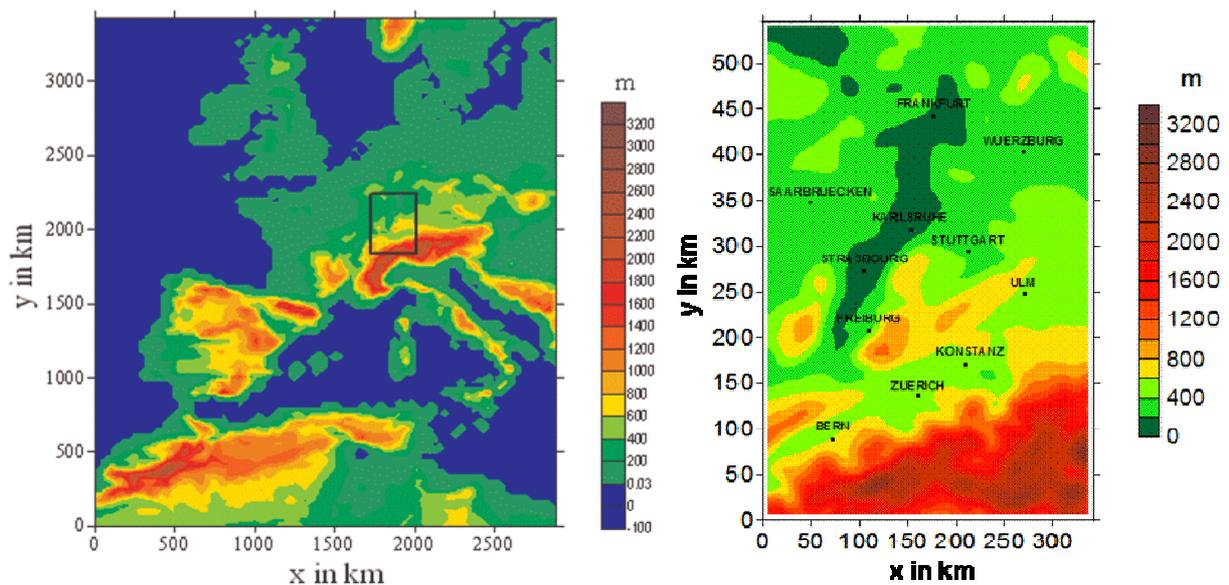
Die Berechnung des Auswaschprozesses im COSMO-ART Modell basiert also auf den folgenden Vereinfachungen:

- die Evaporation wird vernachlässigt, d.h. keine Thermophorese und Diffusiophorese,
- die Anziehung infolge der elektrischen Ladung der Partikel und Tropfen wird vernachlässigt,
- die geometrische Standardabweichung und der mittlere geometrische Durchmesser aller Moden werden konstant gehalten,
- die Niederschlagstropfenverteilung wird in der Säule konstant gehalten, die Parameter der Verteilungsfunktion werden aus dem aktuellen im COSMO-Modell berechneten Niederschlagsflüssigwassergehalt am Boden unter Verwendung der Niederschlagsklassifikationen nach Mircea und Stefan (1998) bestimmt.

#### 4.2.3.2 Ergebnisse der dreidimensionalen Simulationen

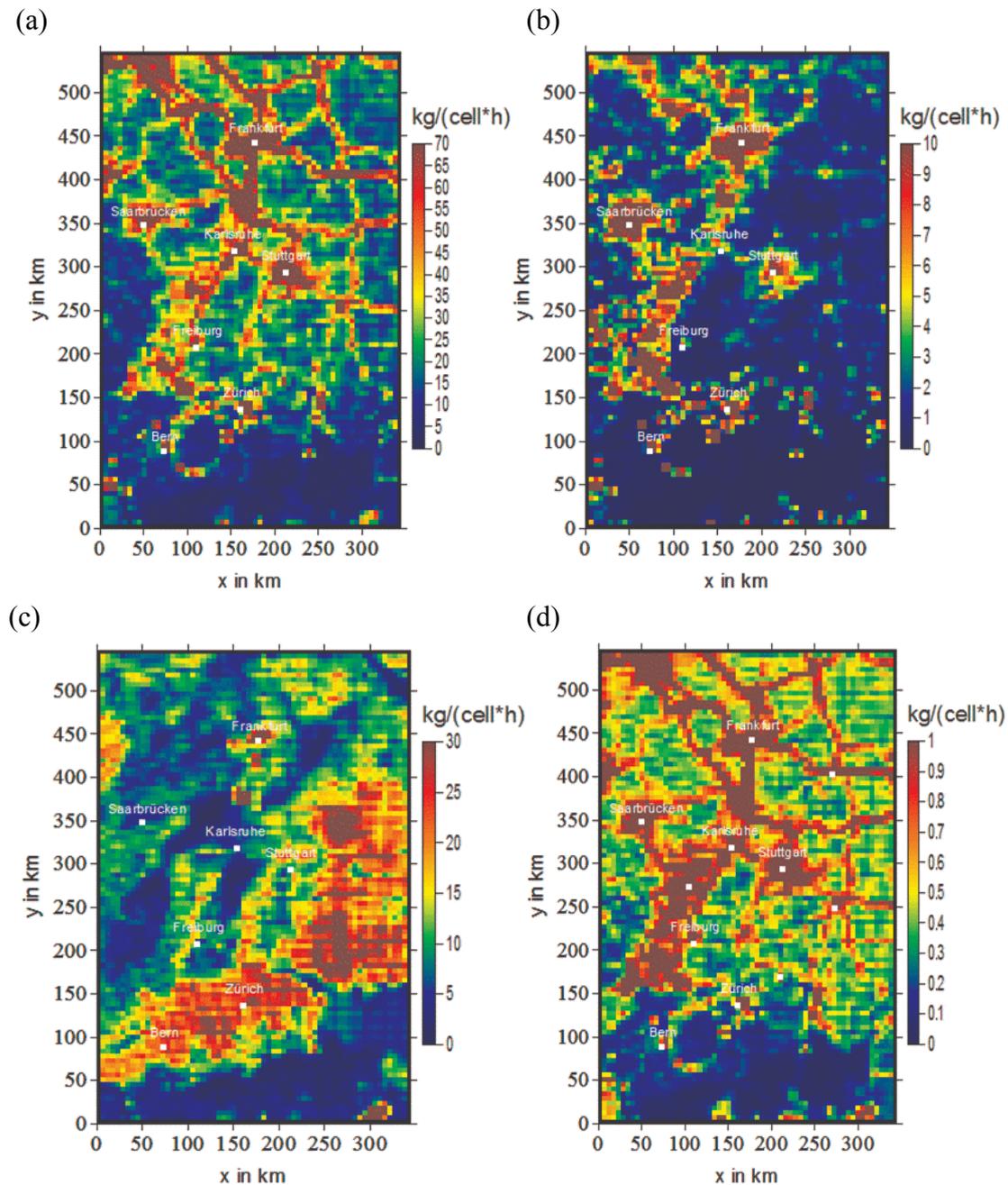
Das ausgewählte Simulationsgebiet umfasst Südwestdeutschland, die Schweiz und angrenzende Regionen in Frankreich und Österreich mit einer horizontalen Ausdehnung von 343 x 546 km<sup>2</sup>. Die Orographie des Simulationsgebietes ist in Abbildung 4.25 dargestellt. Die horizontale Maschenweite des Modellgitters beträgt 7 x 7 km<sup>2</sup>. In der Vertikalen werden 40 Schichten verwendet mit einer Maschenweite von 40 m am Boden bis zu mehreren 100 m am Oberrand des Modellgebiets, welcher in einer Höhe von 23500 m liegt. Es wird ein Zeitraum von 120 h vom 16.08.2005 – 20.08.2005 simuliert, wobei die Aerosoldynamik erst nach 4 h angeschaltet wird. Dieses Vorgehen ist notwendig, da das Modell mit minimalen Konzentrationen für die Gas- und Partikelphase initialisiert wird und die für die Kondensations- und die Nukleationsprozesse benötigten Konzentrationen gasförmiger Substanzen erst aufgebaut werden müssen. Generell sind die ersten 24 Stunden als Einschwingzeit des Modells zu sehen. Startprofile gewählt. Weiter bleibt hier das Auswaschen der Partikel unberücksichtigt. Aus den simulierten Konzentrationsfeldern werden die Konzentrationen der Randwerte für das kleinerskalige Gebiet generiert, welche dann in stündlicher Auflösung zur Verfügung stehen.

Eine wichtige Eingabegröße für die Simulationen stellen die Emissionen von gasförmigen und partikelförmigen Luftbeimengungen dar. Hier liegt ein detaillierter stündlich aufgelöster Emissionsdatensatz für die anthropogenen Emissionen sowohl für das kleinskalige als auch das großskalige Modellgebiet vor (Pregger et al., 2007). Diese Emissionen werden nach Flächenquellen und Punktquellen unterschieden. Während die Flächenquellen in die unterste Modellschicht emittieren, wird für die Punktquellen die Quellhöhe aus der Kaminhöhe und einer von der Quellstärke und den aktuellen Windgeschwindigkeiten abhängigen

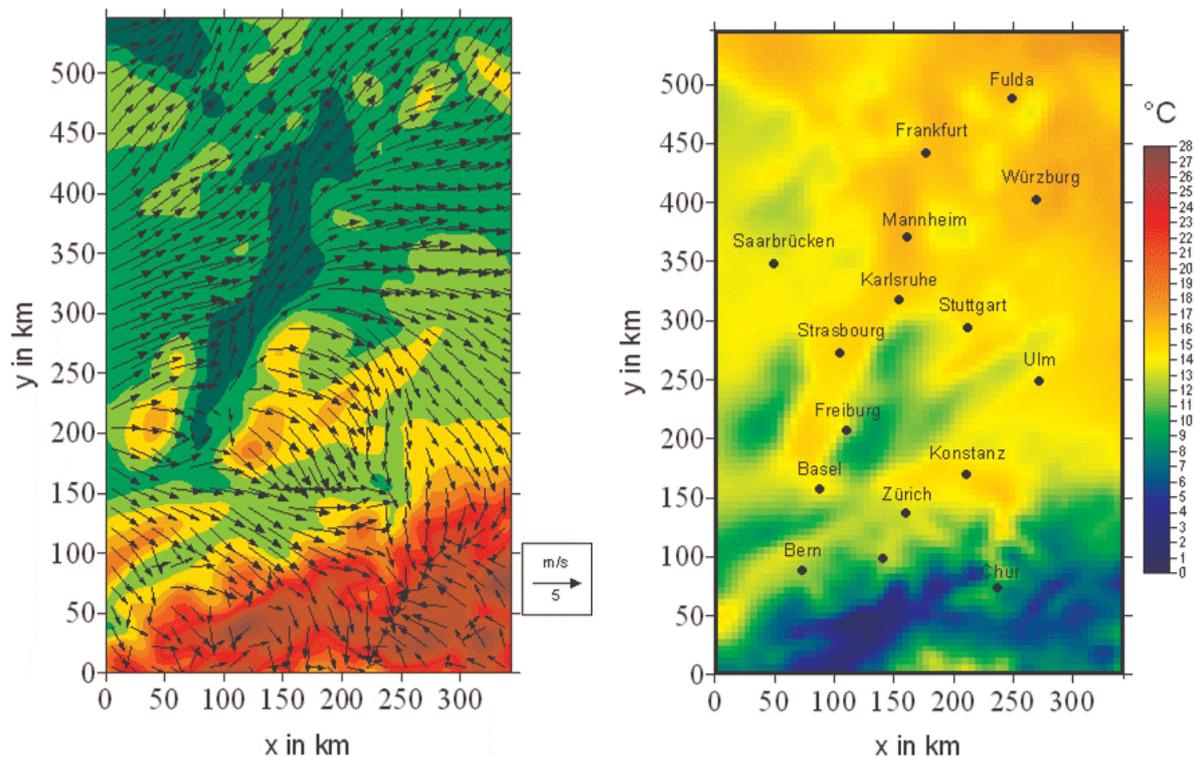


**Abbildung 4.25:** Orographie der verwendeten Simulationsgebiete, links des großskaligen Gebiets und rechts des kleinskaligen Gebiets. Die Lage des kleinskaligen im großskaligen Gebiet ist durch das schwarze Rechteck markiert.

Quellüberhöhung bestimmt. Einen Überblick über die im Emissionsdatensatz enthaltenen Substanzen kann dem Anhang entnommen werden. Die biogenen Emissionen werden auf Basis von Landnutzungsdaten und den aktuellen Temperaturen und Strahlungsflüssen während jeder Simulation berechnet. Die Abbildungen 4.26 zeigen die Flächenemissionen von  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NH}_3$  und Rußpartikeln mit Durchmessern kleiner als  $1 \mu\text{m}$  um 8:00 UTC für das kleine Simulationsgebiet. Während die Emissionen von  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$  und Ruß die Lage der dichtbesiedelten urbanen Gebiete und der Verkehrswege widerspiegeln, zeigen die  $\text{NH}_3$  Emissionen erhöhte Werte in den ländlichen Regionen des Modellgebietes.



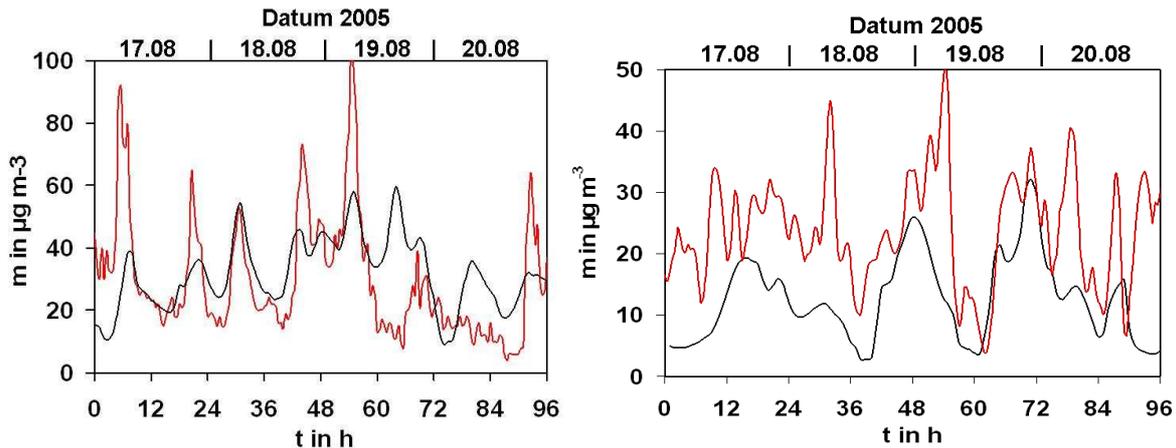
**Abbildung 4.26:** Emissionen von  $\text{SO}_2$  (links oben),  $\text{NO}_x$  (rechts oben),  $\text{NH}_3$  (links unten) und Rußpartikeln mit Durchmessern kleiner als  $1 \mu\text{m}$  (rechts unten). Die Werte repräsentieren die Emissionen in einer Gitterzelle von  $7 \times 7 \text{ km}^2$ .



**Abbildung 4.27:** Simuliertes Windfeld und Orographie (links) und simuliertes Temperaturfeld (rechts) am 20.08.2005 um 8:00 UTC in etwa 40 m Höhe über dem Grund.

Es wurden zwei Modellsimulationen durchgeführt, die im Folgenden miteinander verglichen werden. Der erste Lauf stellt den Referenzlauf dar, hier bleibt das Auswaschen unberücksichtigt. In der zweiten Simulation wird das Auswaschen behandelt. Die dargestellten Ergebnisse beziehen sich auf den 20.08.2005. Dieser Tag ist charakterisiert durch eine sommerliche konvektive Wetterlage mit einer westlichen Anströmung, welche in den späten Nachmittagstunden auf Nordwest dreht. Das Windfeld in Bodennähe, welches exemplarisch für 8:00 UTC in Abbildung 4.27 (links) dargestellt ist, wird stark von der Orographie und den daraus resultierenden Sekundärzirkulationen an den Gebirgshängen beeinflusst. Weiter zeigt sich eine typische Kanalisierung des Windfeldes im Rheintal. Das Temperaturfeld in Bodennähe (Abbildung 4.27 (rechts)) ist charakterisiert durch niedrige Temperaturen in den Höhenlagen der Alpen, des Schwarzwaldes und der Vogesen sowie erhöhte Temperaturen im Rheintal und dem nordwestlichen Teil des Modellgebietes. Die Maximaltemperaturen liegen an diesem Tag zwischen 4°C in den Höhenlagen der Alpen und 28°C im Rheintal. Weiter zeigen die Simulationsergebnisse eine Reihe von orographisch induzierten konvektiven Niederschlagsereignissen in der Alpenregion und über der schwäbischen Alb.

Zunächst wird der Referenzlauf zur Validierung mit operationellen Messungen ausgesuchter Gase und dem atmosphärischen PM10 Gehalt an der nördlich von Karlsruhe gelegenen Messtation Eggenstein-Leopoldshafen des Landesamtes für Umweltschutz Baden-Württemberg verglichen.

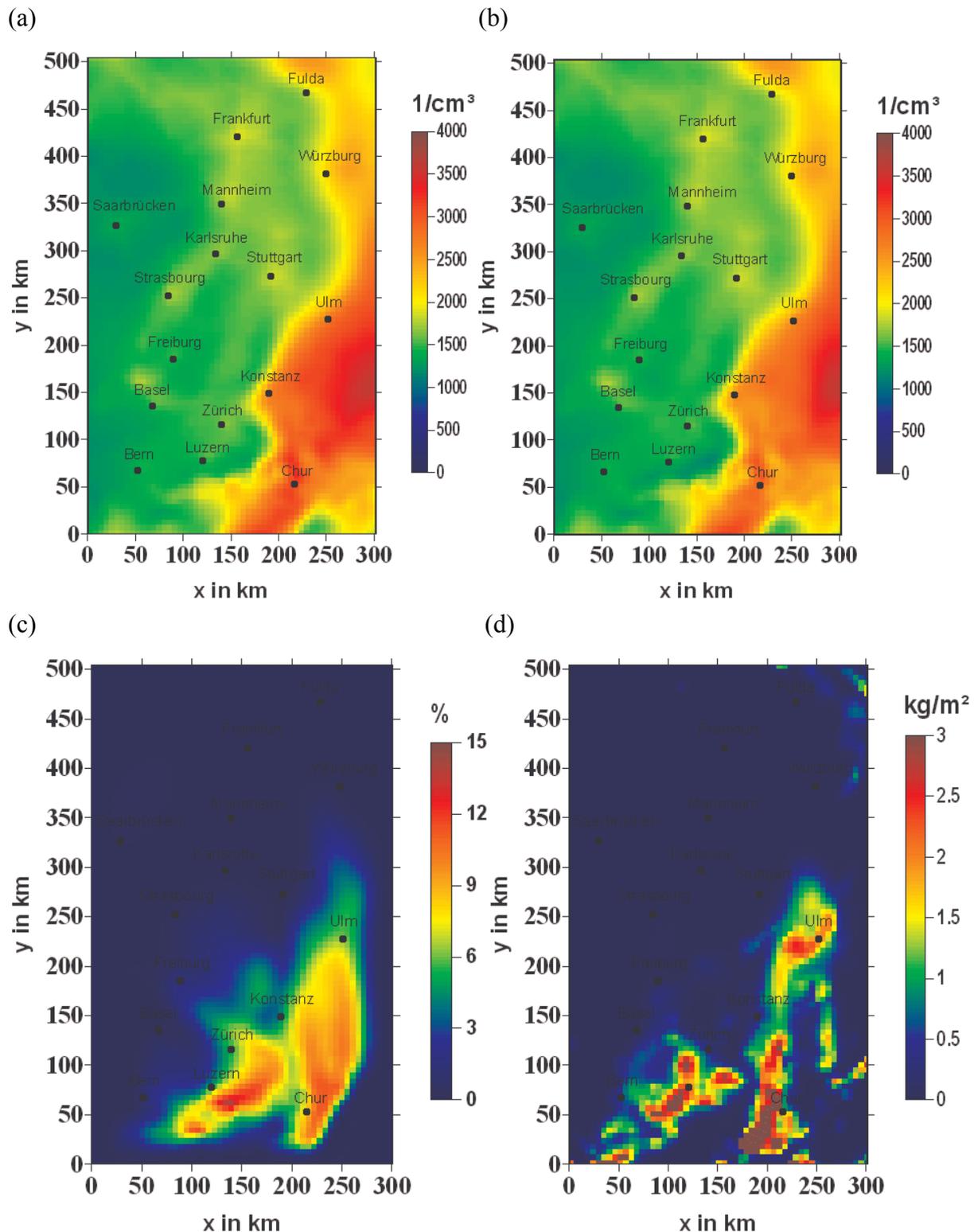


**Abbildung 4.28:** Simulierte Massenkonzentrationen von  $\text{NO}_x$  (links) und  $\text{PM}_{10}$  (rechts) und Messwerte an der Station Eggenstein-Leopoldshafen des Landesamtes für Umweltschutz Baden-Württemberg für den Zeitraum vom 17.08.2005 bis 20.08.2005. Die Simulationsergebnisse sind rot und die Messungen schwarz dargestellt.

Die Abbildung 4.28 zeigt diesen Vergleich für den Zeitraum vom 17.08.2005 bis zum 20.08.2005. Der Vergleich der  $\text{NO}_x$  Konzentrationen zeigt eine grobe Übereinstimmung. Am 19. und 20.08.2005 werden die  $\text{NO}_x$  Konzentrationen vom Modell etwas überschätzt. Die  $\text{PM}_{10}$  Konzentrationen werden am 17.08.2005 in den Simulationen unterschätzt. Am 18., 19. und 20.08.2005 werden die  $\text{PM}_{10}$  Konzentrationen vom Modell befriedigend wiedergegeben. Das Maximum von  $\text{PM}_{10}$  liegt an diesen drei Tagen in den Nachtstunden zwischen 20 und 30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Minimale Konzentrationen treten in den Mittagsstunden auf mit Werten unter 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Die Fluktuationen in den gemessenen Konzentrationen können vom Modell erwartungsgemäß nicht erfasst werden. Die Begründung liegt in der starken Abhängigkeit der gemessenen Konzentrationen in Bodennähe von den höchst variablen örtlichen Gegebenheiten, wie den aktuellen Windgeschwindigkeiten, der Anströmrichtung an der Messstation und an aktuellen Emissionsereignissen (wie z.B. in der Nähe der Messstation vorbeifahrende Fahrzeuge oder die Aufwirbelung von Staub). Diese können aufgrund der räumlichen und zeitlichen Auflösung des Modells und der Emissionsdaten nicht wiedergegeben werden.

In den folgenden Abbildungen sind ausgewählte Horizontal- sowie die Vertikalverteilungen der Anzahl- und Massenkonzentrationsdichten für die beiden erstellten COSMO-ART Simulationen dargestellt. Alle Abbildungen zeigen die Verteilungen in einem Ausschnitt des Modellgebietes. An allen vier Seiten des Modellgebietes wurde ein Randbereich von drei Gitterzellen abgeschnitten (dies entspricht einer Kantenlänge von 21 km), da hier davon ausgegangen werden muss, dass die jeweiligen Konzentrationsdichten durch Randeffekte beeinflusst werden.

In Abbildung 4.29 sind die Horizontalverteilungen der Gesamtanzahldichte für die beiden Simulationen für den 20.08.2005 um 8:00 UTC und die unterste Modellfläche dargestellt. Beide Läufe zeigen einen Gradienten in ost-westlicher Richtung mit erhöhten Konzentrationen im Osten des Modellgebietes. Das Minimum der Partikelanzahl liegt bei etwa 1000 Partikeln pro  $\text{cm}^3$  in beiden Simulationen. Die maximale Anzahldichte erreicht

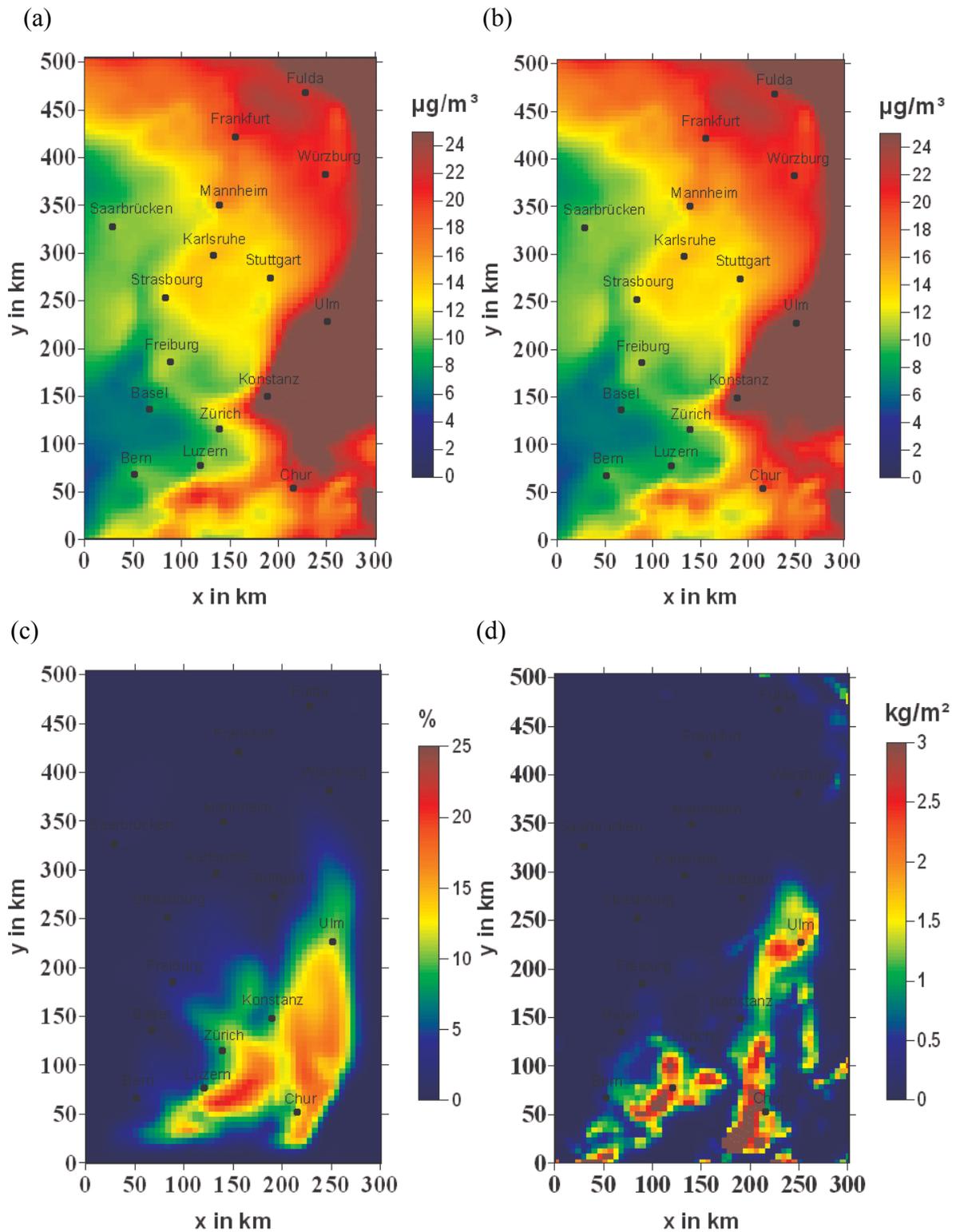


**Abbildung 4.29:** Simulierte Gesamtpartikelanzahlkonzentrationsdichte für den Referenzlauf (a) und den Modelllauf unter Berücksichtigung des Auswaschens (b) in  $1/\text{cm}^3$ . Die unteren Abbildungen repräsentieren (c) den durch das Auswaschen bewirkten Partikelverlust in % und (d) die akkumulierte Niederschlagsmenge in  $\text{kg}/\text{m}^2$ . Die Abbildungen zeigen die Partikelanzahl auf der untersten Modellschicht in etwa 40 m Höhe des 20.08.2005 um 8:00 UTC. Die Niederschlagsgrafik zeigt den gefallenen Niederschlag zwischen 7:00 und 8:00 UTC.

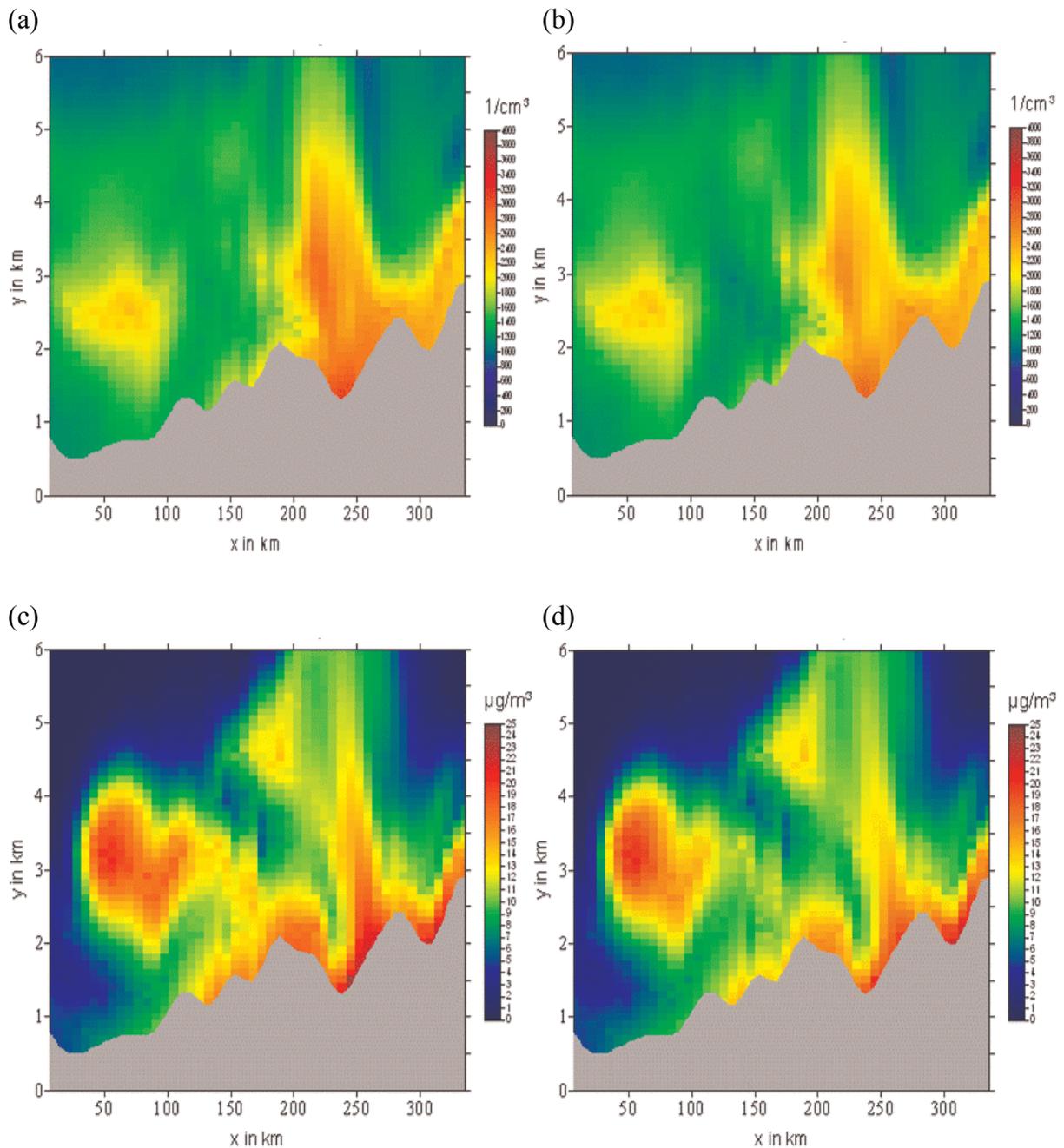
4000 Partikel pro  $\text{cm}^3$ . Die simulierten Partikelanzahlen entsprechen typischen Werten der kontinentalen Troposphäre (Vgl. Kap. 2). Im südwestlichen Teil des Modellgebietes treten Unterschiede zwischen den beiden Läufen auf. Hier ergeben sich geringere Anzahldichten im Fall des Laufes mit Auswaschen. Diese sind auf lokale Niederschlagsereignisse zurückzuführen. In Abbildung 4.29 (d) ist die zwischen 7:00 und 8:00 UTC zum Boden gefallene simulierte Niederschlagsmenge dargestellt. Hier zeigen sich einzelne Niederschlagsereignisse im Bereich, in dem die Unterschiede auftreten. Der Partikelverlust in % infolge des Auswaschens ist in Abbildung 4.29 (b) dargestellt. Es zeigt sich ein Partikelverlust infolge des Auswaschens von bis zu 15 %. Der höchste Verlust tritt in den Gegenden, in denen die höchsten Niederschlagsmengen zu verzeichnen sind auf. Dabei handelt es sich um die Gebiete von Luzern, Zürich und Chur. Generell zeigen sich die Unterschiede in der Partikelanzahldichte flächenhafter als die Niederschlagsereignisse. Dies liegt am Transport der Partikel. Durch Transportprozesse werden die durch das Auswaschen bedingten niedrigeren Konzentrationen in Gebiete transportiert, die nicht von Niederschlagsereignissen beeinflusst sind. Im Laufe des Tages stellen sich bei der Simulation unter Berücksichtigung des Auswaschens nahezu im gesamten Modellgebiet niedrigere Konzentrationen ein. An den Rändern des Modellgebiets auftretende Niederschlagsereignisse zeigen keinen Einfluss auf die Partikelanzahlen. Dies liegt daran, dass bisher bei den Simulationen auf dem größeren Simulationsgebiet das Auswaschen unberücksichtigt blieb.

Die simulierten Partikelmassenkonzentrationsdichten (Abbildung 4.30) zeigen eine ähnliche Verteilung wie die Anzahlkonzentrationsdichten. Auch hier tritt bei beiden Simulationen ein Ost-West-Gradient mit erhöhten Massenkonzentrationen im Ostteil des Modellgebietes auf. Das Maximum überschreitet  $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Die minimalen Konzentrationen liegen bei etwa  $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in der Nord-West-Schweiz. Im süd-westlichen Teil des Modellgebietes bewirkt der dort auftretende Niederschlag einen Massenverlust von bis zu 25 %, der etwas höher liegt als der Verlust in der Anzahldichte. Der höchste Verlust an Partikelmasse ist um Luzern zu verzeichnen.

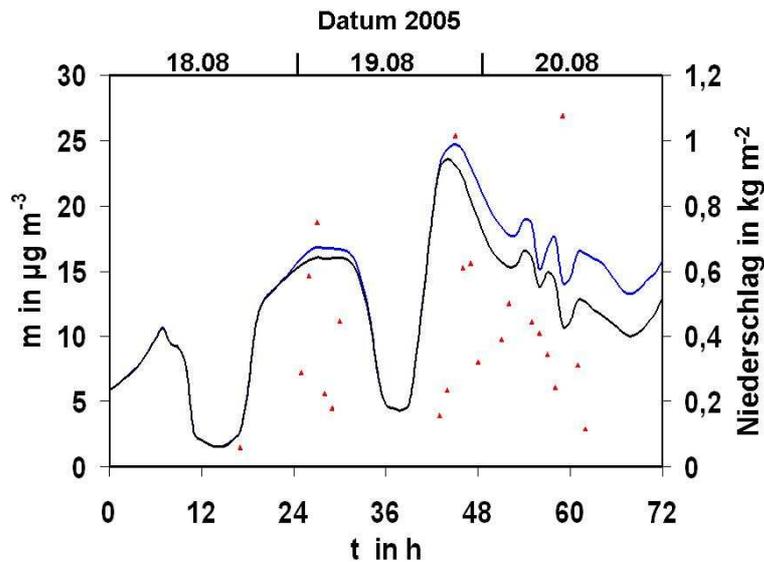
Auch in den vertikalen Verteilungen der Anzahlkonzentrationsdichten (Abbildung 4.31) und der Partikelmassenkonzentrationsdichten zeigt sich ein durch das Auswaschen bedingter Rückgang. Generell zeigen die Vertikalverteilungen eine hohe Variabilität der Konzentrationen. Die höchsten Konzentrationen treten in Bodennähe auf, wobei eine starke vertikale Durchmischung in der Alpenregion im Ostteil des dargestellten Schnittes zu erkennen ist. Im Westteil ist eine vom Boden abgehobene „Partikelwolke“ in etwa 3 km Höhe zu erkennen. Zwischen 100 und 275 km ist eine durch die auftretenden Niederschlagsereignisse bedingte verringerte Partikelanzahl- und Partikelmassenkonzentration bis in Höhen von etwa 4 bis 5 km im Fall des Laufes mit Auswaschen zu erkennen.



**Abbildung 4.30:** Simulierte Gesamtpartikelmassenkonzentrationsdichte für den Referenzlauf (a) und den Modellauf unter Berücksichtigung des Auswaschens (b) in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in etwa 40 m Höhe für den 20.08.2005 um 8:00 UTC. Die unteren Abbildungen zeigen den durch das Auswaschen bewirkten Massenverlust in % (c) und die zwischen 7:00 und 8:00 gefallene Niederschlagsmenge in  $\text{kg}/\text{m}^2$  (d).



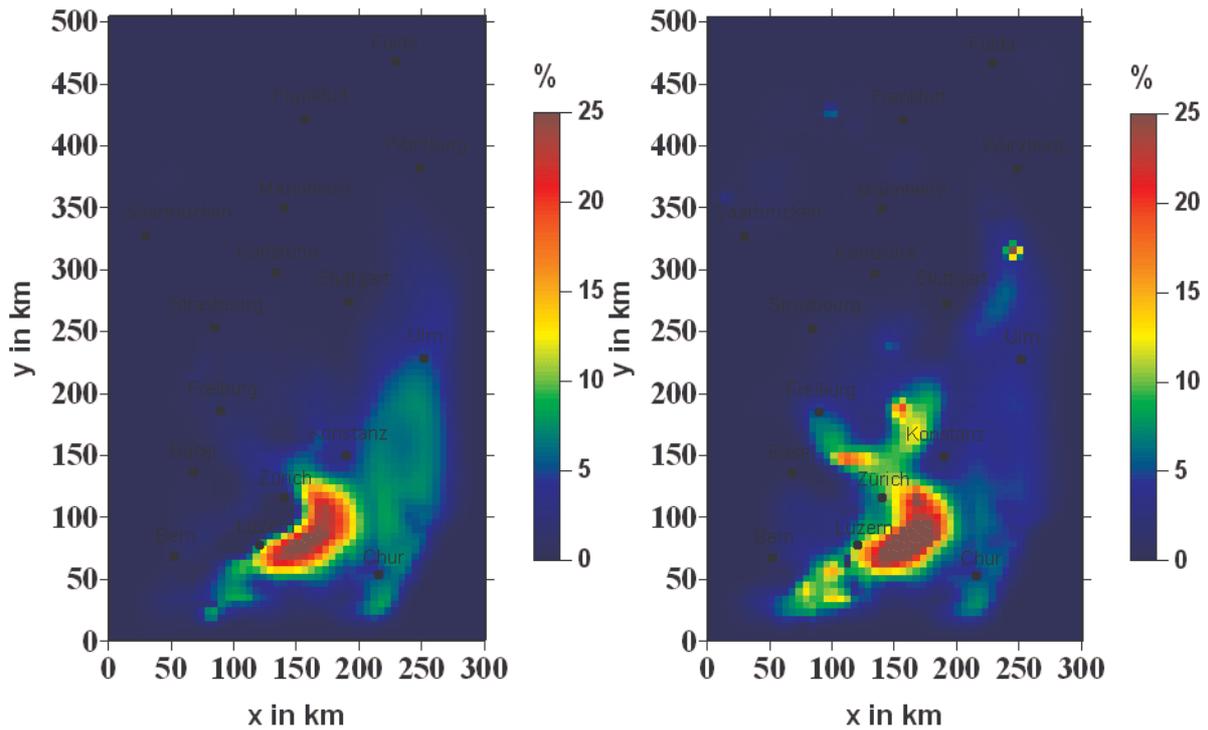
**Abbildung 4.31:** Vertikale Verteilungen der Anzahldichte des Referenzlaufes (a) und des Laufes unter Berücksichtigung des Auswaschens (b). Die unteren Abbildungen (c, d) zeigen die vertikalen Verteilungen der Massendichte der beiden Läufe. an. Die Vertikalschnitte wurden für den 20.08.2005 um 8:00 parallel zur x-Achse bei  $y = 84$  km erstellt.



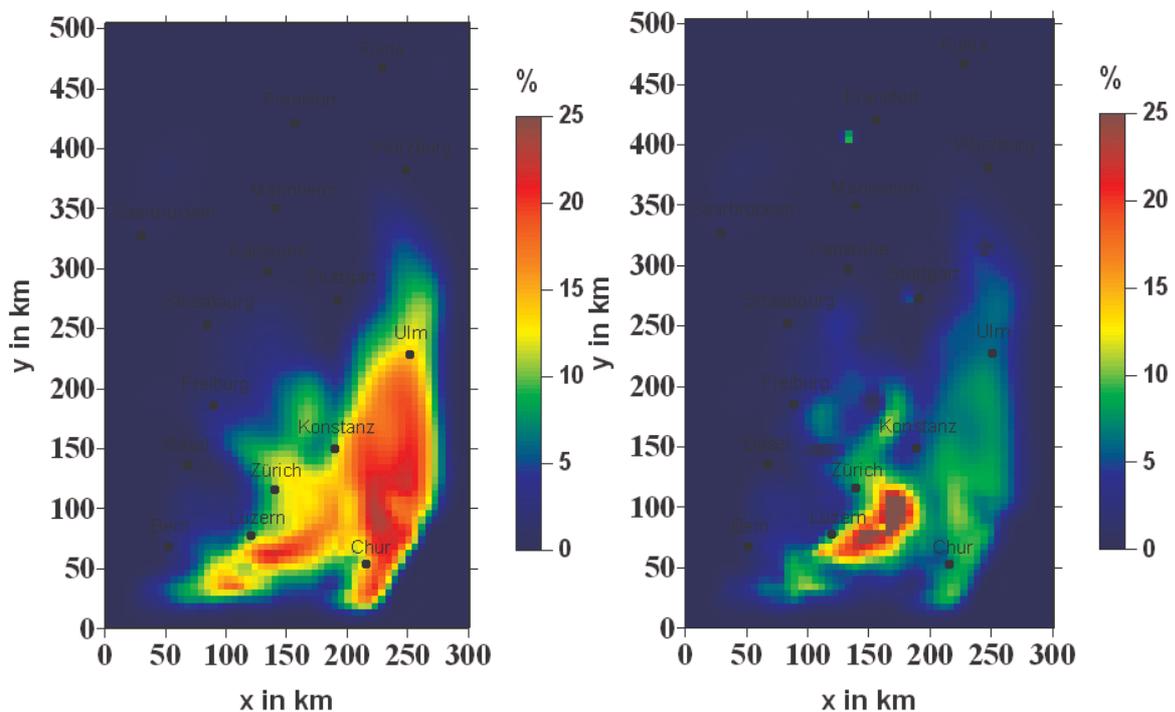
**Abbildung 4.32:** Zeitlicher Verlauf der bodennahen Partikelmassenkonzentrationen für den Referenzlauf (schwarz) und die Simulation unter Berücksichtigung des Auswaschens. Es ist ein Zeitraum vom 18.08-20.08.2005 dargestellt. Die aktuelle simulierte Niederschlagsmenge am Boden ist mit roten Punkten markiert.

In Abbildung 4.32 ist der zeitliche Verlauf der Partikelmassenkonzentrationsdichte vom 18. - 20.08.2005 für einen ausgewählten Punkt im Simulationsgebiet bei  $x = 231$  km und  $y = 77$  km für die Simulationen mit und ohne Auswaschen dargestellt. Zusätzlich wurden hier die stündlichen simulierten Niederschlagsmengen an diesem Punkt eingetragen. Die zeitlichen Verläufe zeigen generell eine ähnliche Entwicklung, die den Partikeltransport und den Tagesgang der Emissionen widerspiegeln. Es ergibt sich ein ausgeprägter Tagesgang der Partikelmassenkonzentrationsdichte in den ersten beiden Tagen mit einem Minimum der Konzentrationen am frühen Nachmittag und einem Maximum in den Nacht- und Vormittagsstunden. Das erste kleinere Niederschlagsereignis am 18.08.2005 um 17:00 UTC zeigt keinen signifikanten Einfluss auf die Massenkonzentration. Das zweite Ereignis am 19.08.2005 zwischen 0:00 und 9:00 UTC bewirkt einen Massenverlust von etwa  $2 \mu\text{g}$ . Dieser Verlust wird in relativ kurzer Zeit bedingt durch Transportprozesse ausgeglichen. Länger anhaltende Niederschläge treten am 20.08.2005 auf. Diese führen zu einem Massenverlust von bis zu  $5 \mu\text{g}$ , der an diesem Tag nicht ausgeglichen werden kann.

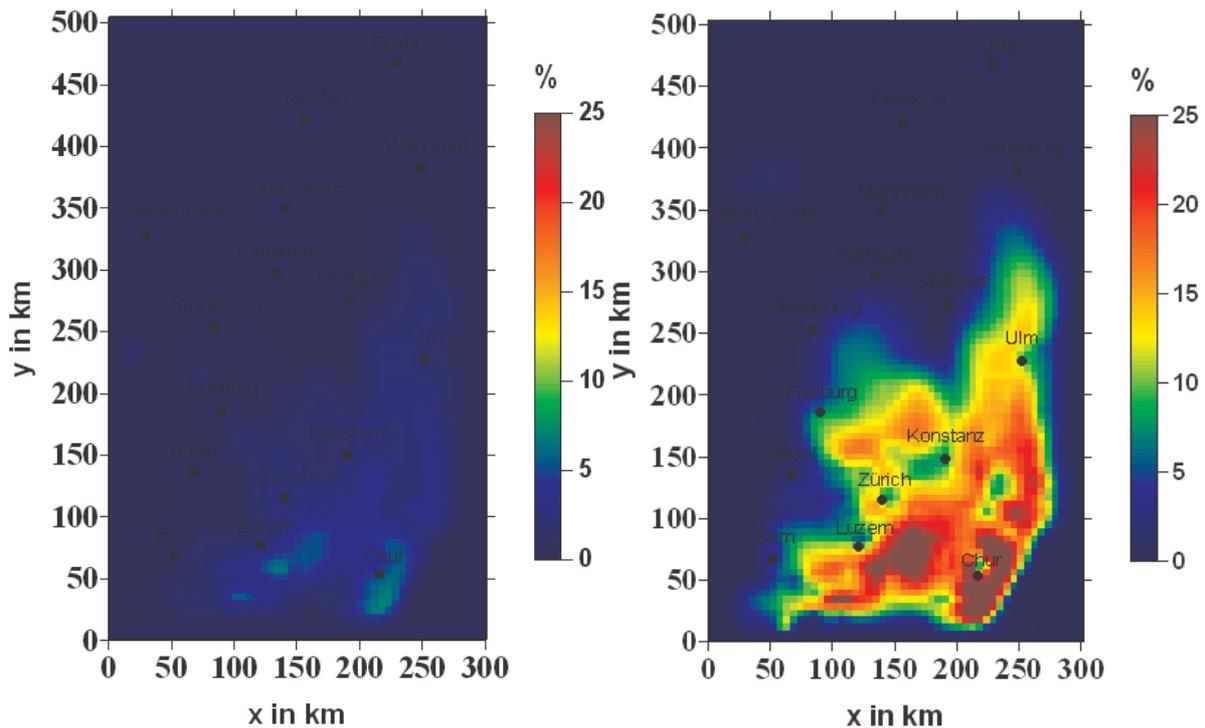
Der Partikelmassenverlust in % der einzelnen Moden i, im, j, jm, s und c ist in den Abbildungen 4.33, 4.34 und 4.35 dargestellt. Die einzelnen Moden werden unterschiedlich stark ausgewaschen. Bei der Betrachtung des Massenverlustes zeigen die Grobpartikelmode c und die beiden Aitkenmoden i und im mit Werten über 25 % in der Region östlich von Zürich und Luzern die höchsten Werte. Diese Moden befinden sich mit ihren Mediandurchmessern (Vgl. Tabelle 3.1) im Bereich hoher Effizienzen des Auswaschprozesses. Für die reine Rußmode s zeigt sich der geringste Massenverlust. Mit einem Mediandurchmesser, der bei der Initialisierung bei  $0,08 \mu\text{m}$  liegt, befindet sich diese Mode im Bereich des Greenfield Minimums. Die beiden Moden im Akkumulationspartikelbereich j und jm werden mit mittlerer Effizienz ausgewaschen.



**Abbildung 4.33:** Massenverlust in % der beiden Moden im Aitkenpartikelgrößenbereich i (links) und im (rechts) in % als Folge des Auswaschens für den 20.08.2005, 8:00 UTC in etwa 40 m Höhe über Grund.



**Abbildung 4.34:** Massenverlust in % der beiden Moden im Akkumulationspartikelgrößenbereich j (links) und jm (rechts) in % als Folge des Auswaschens für den 20.08.2005, 8:00 UTC in etwa 40 m über Grund.



**Abbildung 4.35:** Massenverlust in % der reinen Rußmode s (links) und der Mode im Grobpartikelgrößenbereich c (rechts) als Folge des Auswaschens für den 20.08.2005, 8:00 UTC in etwa 40 m über Grund.

Zusammenfassend ergibt sich ein signifikanter Einfluss des Niederschlages auf die simulierten dreidimensionalen Konzentrationsverteilungen. Generell weisen die Konzentrationsfelder eine hohe zeitliche und räumliche Variabilität in allen Richtungen auf. Anhand des Vergleiches der Simulationen mit operationellen Messungen konnte eine grobe Übereinstimmung der Konzentrationen gezeigt werden. Dabei muss beachtet werden, dass die simulierten Konzentrationen einen Mittelwert für die jeweilige Gitterzelle repräsentieren. Die Beeinflussung der Messungen durch die lokal höchst variablen Gegebenheiten können vom Modell aufgrund der räumlichen und zeitlichen Auflösung nicht wiedergegeben werden. Es zeigte sich ein durch das Auswaschen verursachter Rückgang der Gesamtanzahldichte von bis zu 15 %. Der Verlust an Partikelmasse liegt etwas höher und erreicht Werte von bis zu 25 %. Dabei sind die Rückgänge von Anzahl- und Massendichten von der Stärke und Dauer des Niederschlagsereignisses abhängig. Die einzelnen Moden werden unterschiedlich stark vom Auswaschprozess beeinflusst, wobei die im Aitken- und Grobpartikelgrößenbereich angesiedelten Moden am effizientesten ausgewaschen werden. Die reine Rußmode zeigte den geringsten Partikelverlust. Die im Akkumulationspartikelgrößenbereich gelegenen Moden werden mit mittlerer Effizienz ausgewaschen. Auf die Fläche bezogen zeigten die rußfreie Akkumulationsmode und die Grobpartikelmode den höchsten Partikelverlust. Transportprozesse führen zu einem Rückgang der Partikelkonzentrationen auch in Gebieten in denen kein Niederschlag aufgetreten ist.



## **5 Modellierung ausgewählter optischer Eigenschaften des troposphärischen Aerosols**

Im vorangegangenen Kapitel wurde gezeigt, dass das Modellsystem COSMO-ART eine räumlich und zeitlich detailliert aufgelöste Simulation der Verteilung des troposphärischen Aerosols ermöglicht. Basierend auf diesen berechneten Verteilungen soll nun dargestellt werden, wie die optischen Eigenschaften troposphärischer Partikel, insbesondere die Extinktion an den Partikeln, bestimmt werden können.

Die Modellierung der optischen Eigenschaften des Aerosols ist Gegenstand zahlreicher aktueller Studien. Speziell in der regionalen und globalen Klimamodellierung ist aufgrund des direkten und indirekten Effekts die quantitative Beschreibung der optischen Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols von großer Bedeutung.

Ein weiterer Aspekt ist die Trübung der Atmosphäre aufgrund der Extinktion an Partikeln. Die Trübung ist ein visuell wahrnehmbarer Einfluss der Aerosolpartikel in der Atmosphäre. In wissenschaftlicher Hinsicht kann die Trübung mittels zweier Größen quantifiziert werden. Zum einen durch die optische Dicke des Aerosols, welche sich aus der vertikalen Integration des Extinktionskoeffizienten des Aerosols ergibt und zum anderen mittels der horizontalen Sichtweite. Der Einfluss atmosphärischer Partikel auf die Sichtweite war bereits vor fast 100 Jahren Gegenstand der Forschung. Das Interesse an der Sichtweite begründet sich heute in ihrer Bedeutung als Indikator für die Luftqualität, ihrer Bedeutung für das Verkehrswesen, insbesondere den Flugverkehr sowie für den Tourismus. In den Vereinigten Staaten von Amerika existieren bereits Gesetze, welche die Reduktion der Sichtweite im Hinblick auf den Schutz der Nationalparks verbieten. Koschmieder (1924) stellt als einer der Ersten einen einfachen Zusammenhang zwischen der Extinktion durch Partikel und der Sichtweite her. Die von Koschmieder entwickelte Formel findet heute weite Verbreitung in der Bestimmung der Sichtweite aus gemessenen Extinktionskoeffizienten (Horvath und Noll 1969, Garland und Rae 1970, Griffing 1980, Johnson 1981). Larson und Cass (1989) untersuchten in der Gegend um Los Angeles Episoden mit geringen Sichtweiten und konnten diese auf die Streuung des Lichtes an Partikeln zurückführen. Sisler und Malm (1994) quantifizierten saisonale Trends in der Sichtweite in den Vereinigten Staaten von Amerika und erklärten diese mit Trends im löslichen Aerosol. Der Einfluss der Zusammensetzung und der Größenverteilung des Aerosols wurde von Eldering et al. (1994) mittels Mie-Streuungs-Rechnungen untersucht. Hand et. al (2002) verglichen gemessene Aerosolgrößenverteilungen mit gemessenen Sichtweiten im Big Bend National Park.

Im folgenden Kapitel soll die Extinktion an Aerosolpartikeln mit dem COSMO-ART Modell berechnet werden. Auf Basis der simulierten Verteilungen des Extinktionskoeffizienten werden dann Sichtweiten bestimmt, welche mit operationell gemessenen verglichen werden.

### 5.1 Die Berechnung der Extinktion an Partikeln

In einem durch einen Lichtstrahl illuminierten Aerosolpartikel werden die elektrischen Ladungen im Inneren sowie an der Oberfläche des Partikels zum Schwingen angeregt. Diese angeregten elektrischen Ladungen können ihrerseits Energie in alle Raumrichtungen zurückstrahlen (Streuung) und/oder einen Teil der Strahlungsenergie in thermische Energie umwandeln (Absorption). Diese beiden Prozesse bewirken eine Abschwächung der Energie des eintreffenden Lichtstrahls. Als Intensität  $I_0$  des einfallenden Lichtes in  $\text{W m}^{-2}$  wird der Anteil der Energie des Lichtstrahls, welcher auf die normal zum Lichtstrahl orientierte Fläche eines Detektors trifft, bezeichnet. Damit kann die Energie, die von einem Partikel aus dem Lichtstrahl durch Streuung bzw. Absorption entfernt wird, wie folgt geschrieben werden

$$E_{\text{Streu}} = C_{\text{Streu}} I_0, \quad (5.1)$$

$$E_{\text{Abs}} = C_{\text{Abs}} I_0, \quad (5.2)$$

mit  $C_{\text{Streu}}$  und  $C_{\text{Abs}}$  dem Streuquerschnitt bzw. Absorptionsquerschnitt eines Partikels in  $\text{m}^2$ . Aus Energieerhaltungsgründen ist die Abschwächung der Energie eines auf ein Partikel auftreffenden Lichtstrahls gleich der Summe aus der vom Partikel in alle Raumrichtungen gestreuten und der absorbierten Energie. Der sich aus der Kombination von Streuung und Absorption ergebende Effekt wird als Extinktion bezeichnet. Der Extinktionsquerschnitt  $C_{\text{Ext}}$  ist definiert durch

$$C_{\text{Ext}} = C_{\text{Streu}} + C_{\text{Abs}}. \quad (5.3)$$

Wird die Streu- bzw. die Absorptionseffizienz als das Verhältnis des Streu- bzw. des Absorptionsquerschnittes zum geometrischen Querschnitt des Partikels (Seinfeld und Pandis, 1998) definiert, so gilt für den Streuquerschnitt (Van de Hulst, 1957)

$$C_{\text{Streu}} = \frac{\pi d_p^2}{4} Q_{\text{Streu}} \quad (5.4)$$

und für den Absorptionsquerschnitt

$$C_{\text{Abs}} = \frac{\pi d_p^2}{4} Q_{\text{Abs}}, \quad (5.5)$$

mit  $Q_{\text{Streu}}$  und  $Q_{\text{Abs}}$  der Streu- und Absorptionseffizienz. Für die Extinktionseffizienz gilt

$$Q_{\text{Ext}} = Q_{\text{Streu}} + Q_{\text{Abs}} \quad (5.6)$$

und somit für den Extinktionsquerschnitt

$$C_{\text{Ext}} = \frac{\pi d_p^2}{4} Q_{\text{Ext}} \quad (5.7)$$

Die Effizienzen sind abhängig von der Wellenlänge  $\lambda$  des eintreffenden Lichtes und dem Brechungsindex  $m_{\text{Br}}$  sowie dem Durchmesser des Partikels. Für sehr kleine Aerosolpartikel gilt die Rayleighnäherung, und  $Q_e$  kann analytisch berechnet werden. Für größere Partikel kann kein geschlossener Ausdruck für  $Q_e$  angegeben werden. Hier ergibt sich die Lösung aus der Mie-Theorie (Mie, 1908). Eine detaillierte Beschreibung dieser Theorie kann z.B. Van de Hulst (1957) entnommen werden.

Um die Extinktion einer Aerosolpartikelpopulation zu bestimmen, muss für jedes Partikel der Extinktionsquerschnitt bestimmt werden. Der Gesamtextinktionsquerschnitt in  $\text{m}^2$  pro  $\text{m}^3$  Luft resultiert aus der Integration über die Einzelquerschnitte und die Partikelverteilung. Unter Verwendung von Gleichung (5.7) ergibt sich dann für den Gesamtextinktionsquerschnitt, welcher in der Literatur auch als Extinktionskoeffizient bezeichnet wird (Ouimette und Flagan 1982)

$$b_{\text{ext}}(m_{\text{Br}}, \lambda) = \int_0^{\infty} \frac{\pi d_p^2}{4} Q_{\text{Ext}}(m_{\text{Br}}, \lambda) n(d_p) dd_p \quad (5.8)$$

$n(d_p)$  ist hier die Anzahldichteverteilung der Aerosolpartikel. Analog zur Extinktionseffizienz ist auch der Extinktionskoeffizient die Summe aus dem Streukoeffizienten  $b_{\text{streu}}$  und dem Absorptionskoeffizienten  $b_{\text{abs}}$

$$b_{\text{ext}} = b_{\text{streu}} + b_{\text{abs}} \quad (5.9)$$

Um den Extinktionskoeffizienten für die mit dem COSMO-ART Modell berechneten Aerosolpartikelverteilungen zu bestimmen, muss für jede Mode getrennt der jeweilige Extinktionskoeffizient bestimmt werden. Die Grobpartikelmode bleibt dabei in der derzeitigen Realisierung unberücksichtigt. Zum einen fehlen detaillierte Informationen zur Zusammensetzung dieser Partikel, die für die Berechnung der Brechungsindizes benötigt werden, zum anderen konnte gezeigt werden, dass für die Extinktion in der Atmosphäre die Partikel im Akkumulationsbereich zwischen  $0,1 - 1 \mu\text{m}$  entscheidend sind (z.B. Seinfeld und Pandis, 1998). Der Extinktionskoeffizient für die gesamte Partikelverteilung ergibt sich dann aus der Summe der einzelnen Koeffizienten für die beiden Aitkenmoden  $i$  und  $im$ , die beiden Akkumulationsmoden  $j$  und  $jm$  und die reine Rußmode (Binkowski und Roselle 2001). Der

Extinktionskoeffizient für das System Aerosol bestehend aus Gasphase und Partikelphase ergibt sich letztendlich zu:

$$b_{\text{ext,ges}} = \sum_{L=1}^n b_{\text{ext,L}} + b_{\text{ext,gas}} . \quad (5.10)$$

Ein Problem bei der Berechnung der Partikelextinktionskoeffizienten der einzelnen Moden im Rahmen des COSMO-ART Modells resultiert aus der Bestimmung der Extinktionseffizienz  $Q_{\text{ext}}$  durch Lösung der Mie-Gleichungen, da diese sehr hohe Anforderungen an die Rechenleistungen stellen. Um die Extinktionskoeffizienten in effizienter Weise berechnen zu können, müssen diese daher in parametrisierter Form behandelt werden. Bäumer et. al (2007) entwickelte auf Basis von detaillierten Mie-Rechnungen folgende Beziehung zwischen den Extinktionskoeffizienten und den Massenkonzentrationen  $m_L(d_p)$  der einzelnen Moden:

$$b_{\text{ext,L},\lambda} = a_L \cdot m_L(d_p)^{c_L} . \quad (5.11)$$

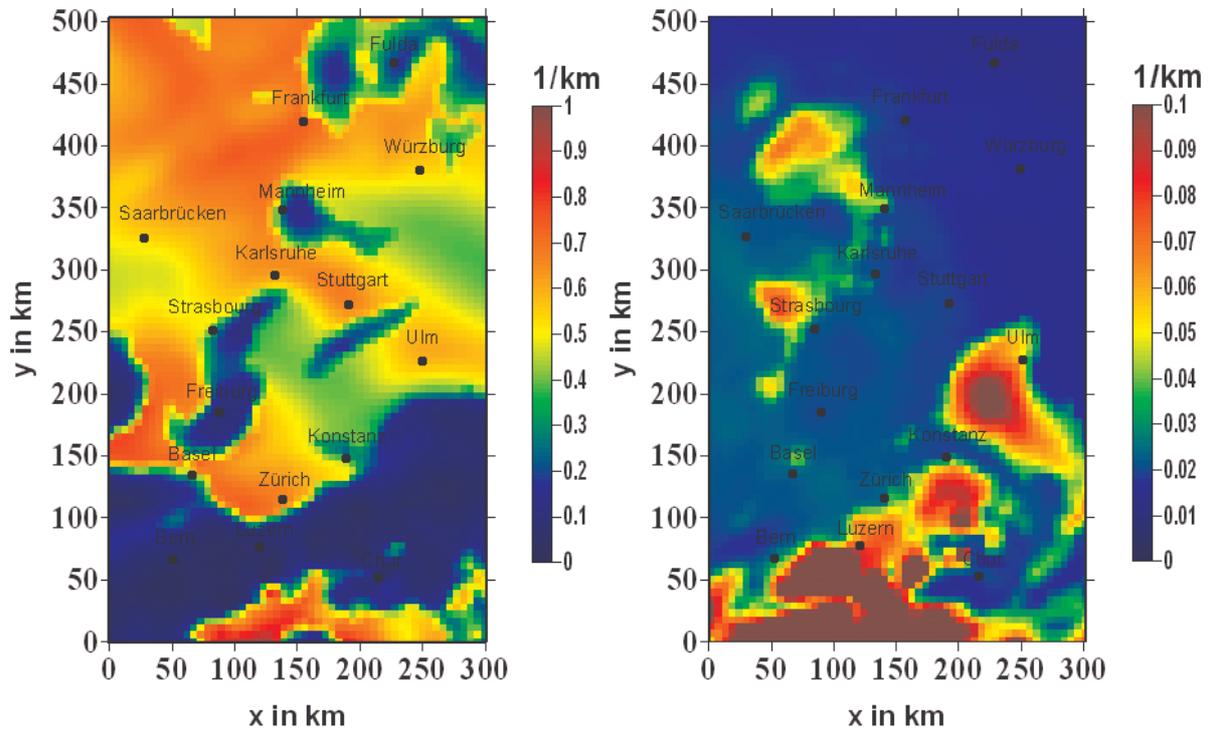
Hier sind  $a_L$  und  $c_L$  Moden spezifische konstante Parameter. In Tabelle (5.1) sind die Parameter für jede einzelne Mode aufgeführt.

**Tabelle 5.1:** Verwendete Koeffizienten für die Parametrisierung der Extinktionskoeffizienten der einzelnen Moden (nach Bäumer et. al 2007).

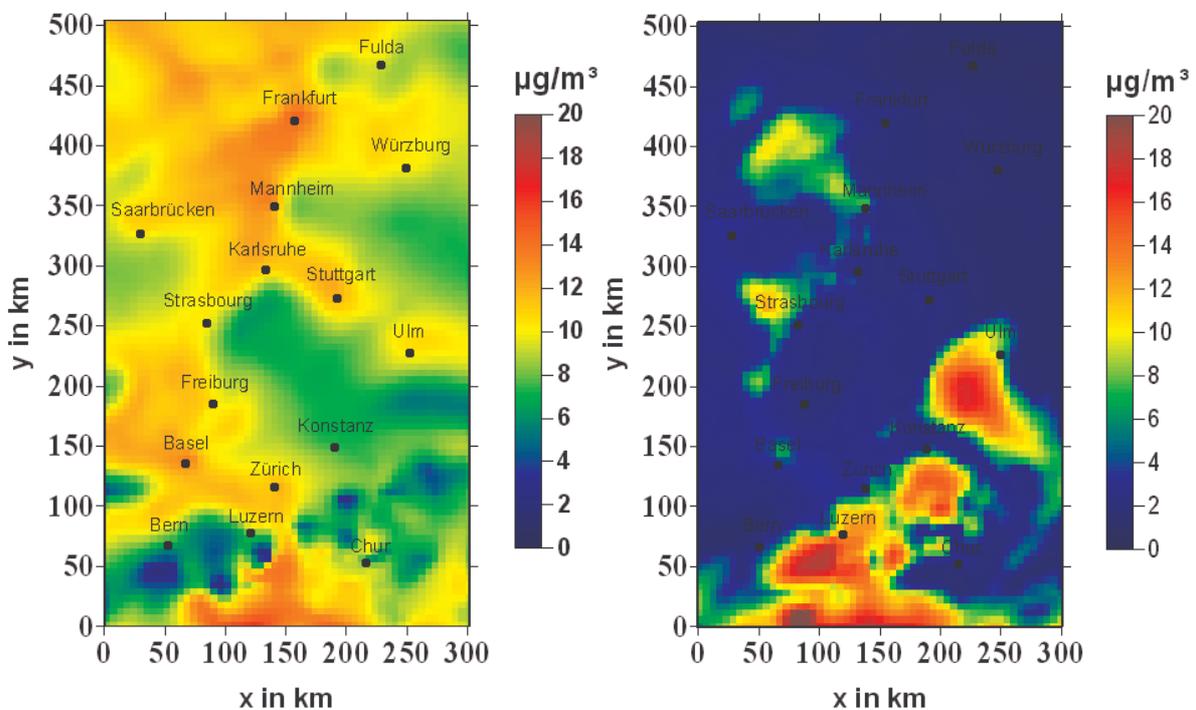
Mode	$a_L$	$c_L$
i	$2,66 \cdot 10^{-3}$	1.135
im	$4,78 \cdot 10^{-3}$	0,992
j	$3,77 \cdot 10^{-3}$	1,033
jm	$3,86 \cdot 10^{-3}$	0,977
s	$8,04 \cdot 10^{-3}$	0,999

Mit diesem Verfahren kann im COSMO-ART Modell zu jedem Zeitpunkt ein dreidimensionales Feld von Extinktionskoeffizienten berechnet werden. Im Folgenden werden ausgewählte Ergebnisse der im Kapitel 4.2.3. vorgestellten Simulation zum Auswaschen der Aerosolpartikel dargestellt. In Analogie zu der Darstellung der Konzentrationsverteilungen wird auch hier im Folgenden nur ein Ausschnitt des Modellgebietes gezeigt. Die von Randeffekten beeinflussten Gebiete werden nicht betrachtet. In Abbildung (5.1) sind die Horizontalverteilungen des simulierten Extinktionskoeffizienten für den 18.08.2005 um 6:00 UTC und um 14:00 UTC auf der untersten Modellfläche in 40 m über dem Boden aufgeführt. Beim Vergleich der Abbildungen 5.1 (links) und (rechts) muss beachtet werden, dass das Maximum der Farbskalen im Fall des 6:00 UTC Termins um eine

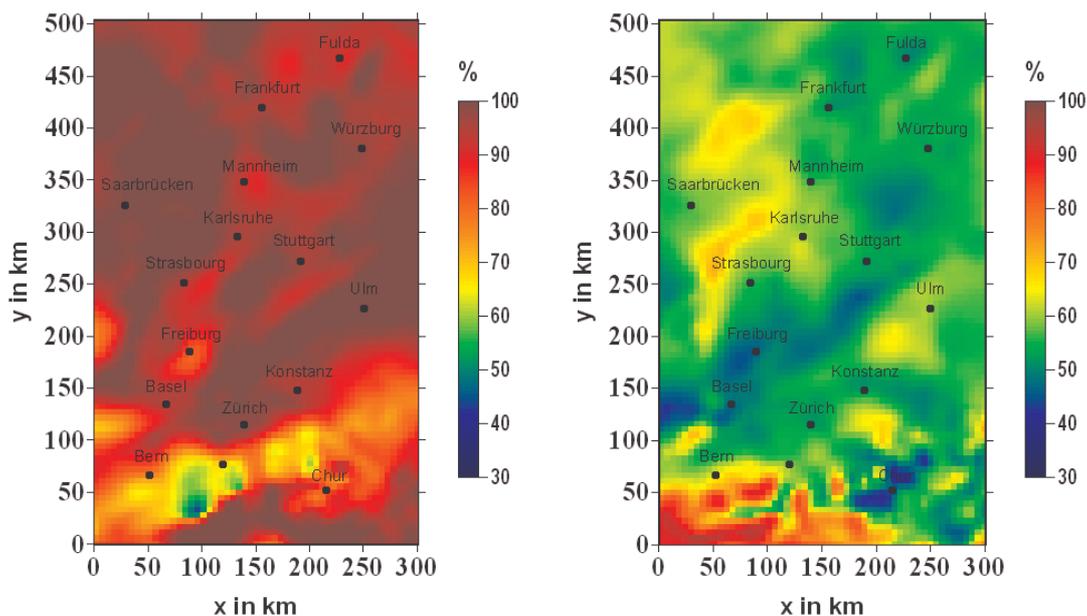
Größenordnung erhöht ist. Insgesamt spiegeln die Verteilungen des Extinktionskoeffizienten die Verteilungen der dazugehörigen Massenkonzentrationen wieder (Abbildung 5.2).



**Abbildung 5.1:** Horizontale Verteilungen der Partikelextinktionskoeffizienten am 18.08.2005 um 6:00 UTC (links) und am 18.08.2005 um 14:00 UTC (rechts).



**Abbildung 5.2:** Horizontale Verteilungen der Partikelmassenkonzentration aufsummiert über die Moden i, im, j, jm und s am 18.08.2005 um 6:00 UTC (links) und am 18.08.2005 um 14:00 UTC (rechts).



**Abbildung 5.3:** Horizontale Verteilung der Relativen Feuchte am 18.08.2005 um 6:00 UTC (links) und am 18.08.2005 um 14:00 UTC (rechts) 40 m über Grund.

Die Verteilung der Extinktionskoeffizienten zeigt erhöhte Werte in den Gebieten in denen auch die Massenkonzentration erhöht ist. Die Extinktionskoeffizienten erreichen um 6:00 UTC wesentlich höhere Werte als um 14:00 UTC. Dies ist zum einem auf höhere relative Feuchten (Abbildung 5.3) in den Morgenstunden, welche einen höheren Wasseranteil auf dem Aerosol und somit größere Partikeldurchmesser verursachen, zurückzuführen und zum anderen auf die Akkumulation von Partikelmasse in der typischerweise niedrigen nächtlichen Grenzschicht. In den Nachmittagsstunden sinken die Werte um mehr als eine Größenordnung im gesamten Modellgebiet nördlich der Alpen. In der Alpenregion zeigen sich vormittags wie nachmittags vergleichbare Werte, da hier die Partikelmasse im Laufe des Tages leicht zunimmt, bei leicht abnehmenden Relativen Feuchten. Die Werte in den Nachmittagsstunden bewegen sich in einer Größenordnung, die typisch für eine relativ unverschmutzte sommerliche Atmosphäre sind, wie ein Vergleich mit der von Hess et. al (1998) gegebenen Übersicht der optischen Eigenschaften des troposphärischen Aerosols zeigt (Tabelle 5.2).

**Tabelle 5.2:** Mittlere Extinktionskoeffizienten verschiedener Verschmutzungsgrade der Atmosphäre (nach Hess et. al, 1998).

Verschmutzungsgrad	mittlerer Extinktionskoeffizient bei 80 % Relativer Feuchte
klare kontinentale Atmosphäre	0,026
mittelstark belastet Atmosphäre	0,075
verschmutzte Atmosphäre	0,175
urbane Atmosphäre	0,353

## 5.2 Die Simulation der Sichtweite

Wie im vorherigen Abschnitt dargestellt, bewirken die Aerosolpartikel in der Atmosphäre eine Abschwächung des einfallenden Lichtes. Die Partikel verursachen also eine Trübung der Atmosphäre. Diese Wirkung der Partikel auf die Atmosphäre kann in der Reduzierung der atmosphärischen Sichtweite beobachtet werden. Die von der World Meteorological Organization (WMO) gegebene Definition des Begriffs Sichtweite lautet: „Die meteorologische Sichtweite ist definiert als die größte Distanz, in der ein schwarzes Objekt von angemessener Größe, das sich nahe am Boden befindet, gesehen und erkannt werden kann, wenn es vor einem hellen Hintergrund beobachtet wird“ (World Meteorological Organisation, 1971). Aus dieser Definition wird ersichtlich, dass die Sichtweite eine subjektive Größe ist, die sich auf den von einem Beobachter wahrnehmbaren Kontrastunterschied zwischen einem entfernten Objekt und dem Hintergrund bezieht. Die Sichtweite wird also hauptsächlich von zwei Faktoren bestimmt von der Sehschärfe und dem Kontrast. Wobei hier nur der Kontrast eine physikalisch greifbare Größe darstellt. Der Kontrast eines Objektes wird mit zunehmender Entfernung vom Beobachter, hauptsächlich aufgrund der Streuung und Absorption sich im Sehstrahl befindender atmosphärischer Partikel im Größenbereich von  $0,1 - 1 \mu\text{m}$ , verringert. Eine zusätzliche Verringerung des Kontrastes wird durch in den Sehstrahl hineingestreuertes Sonnenlicht bewirkt, was zu einer scheinbaren Aufhellung dunkler Objekte führt. Die Streuung an Luftmolekülen spielt dabei eine untergeordnete Rolle. Je weiter das Objekt dabei vom Beobachter entfernt ist, desto geringer wird der Kontrast. Die Sichtweite ist dann erreicht, wenn der Kontrast soweit verringert ist, dass das Objekt gerade noch wahrnehmbar ist. Die obere Grenze der Sichtweite liegt bei etwa 340 km, wenn nur Rayleighstreuung an den Luftmolekülen wirksam ist. In Reinluftgebieten können durchaus Sichtweiten in diesem Maximalbereich beobachtet werden. In stark belasteten urbanen Gebieten kann die Sichtweite auf wenige Kilometer in Nebelereignissen auch auf wenige Meter absinken (Horvath, 1995). Zur Berechnung der Sichtweite ist eine dreidimensionale Simulation der Strahlungsübertragung in der Atmosphäre erforderlich. Allerdings sind solche Verfahren derzeit zu aufwendig, um in mesoskaligen Modellen Anwendung zu finden. Koschmieder (1924) formulierte einen einfachen Zusammenhang zwischen Sichtweite und Extinktionskoeffizienten. Eine detaillierte Beschreibung dieses Zusammenhangs kann Koschmieder (1924) oder Hinds (1982) entnommen werden.

Nach Koschmieder gilt in der Entfernung  $x$  von einem isolierten schwarzen Objekt vor einem einheitlichen und ausgedehnten Hintergrund für den Kontrast  $C(x)$

$$C(x) = \frac{B_o(x) - B_B(x)}{B_B(x)} \quad (5.12)$$

mit  $B_o(x)$  der spektralen Strahldichte des Objektes und  $B_B(x)$  der spektralen Strahldichte des Hintergrundes in  $\text{W m}^{-2} \mu\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$ . Da angenommen wird, dass das Objekt schwarz ist und somit das gesamte auftreffende Licht absorbiert wird, gilt  $B_o(x = 0) = 0$ . Daraus ergibt sich

$C(x = 0) = 1$ . Entlang eines Sehstrahls wird die Änderung der Strahldichte des Objektes beschrieben durch (Gesetz nach Beer-Bougert-Lambert):

$$\frac{dB_o(x)}{dx} = -b_{\text{ext}} B_o(x) + b_B B_B(x). \quad (5.13)$$

Die spektrale Strahldichte des Hintergrundes  $B_B$  wird entlang des Sehstrahls konstant gehalten. Der Term  $b_B B_B$  ist die Strahldichte, die in den Sehstrahl hineingestreut wird. Der Term  $-b_{\text{ext}} B_o$  beschreibt die Schwächung der Strahldichte entlang des Sehstrahls durch Streuung und Absorption.  $b_{\text{ext}}$  ist der Volumenextinktionskoeffizient in der Einheit 1 pro Länge, der sich aus dem Volumenstreuoeffizienten  $b_s$  und dem Volumenabsorptionskoeffizienten zusammensetzt. Der Koeffizient  $b_B$  ist zunächst noch unbekannt und wird im Folgenden bestimmt. Für den Hintergrund kann eine ähnliche Gleichung formuliert werden unter der Beachtung, dass  $B_B$  unabhängig von  $x$  ist:

$$\frac{dB_B}{dx} = 0 = -b_{\text{ext}} B_B + b_B B_B. \quad (5.14)$$

Aus Gleichung (5.14) folgt also:

$$b_B = b_{\text{ext}}. \quad (5.15)$$

Einsetzen der Gleichung (5.15) in Gleichung (5.13) liefert:

$$\frac{dB_o(x)}{dx} = b_{\text{ext}} (B_B - B_o(x)). \quad (5.16)$$

Die Integration der Gleichung (5.16) von 0 bis  $B$  bzw. von 0 bis  $x$  ergibt:

$$C(x) = \frac{B_B - B_o(x)}{B_B} = \exp(-b_{\text{ext}} x). \quad (5.17)$$

Koschmieder (1924) bezifferte den Wert des von einem Beobachter wahrnehmbaren Mindestkontrastes, also den Kontrast bei dem ein Objekt gerade noch von seinem Hintergrund unterschieden werden kann, mit 0,02. Dies bedeutet, dass ein schwarzes Objekt vor einem hellen Hintergrund gerade noch wahrgenommen werden kann, wenn sein scheinbarer Kontrast auf 2 % seines Eigenkontrastes gesunken ist. Wird Gleichung (5.17) nach  $x$  unter Verwendung des minimalen Kontrastes aufgelöst, ergibt sich für die Sichtweite  $l_{\text{lok}}$  nach Koschmieder:

$$l_{\text{lok}} = \frac{-\ln(0,02)}{b_{\text{ext}}} = \frac{3,91}{b_{\text{ext}}}. \quad (5.18)$$

Für die Gültigkeit der Gleichung (5.18) müssen folgende Annahmen in Betracht gezogen werden:

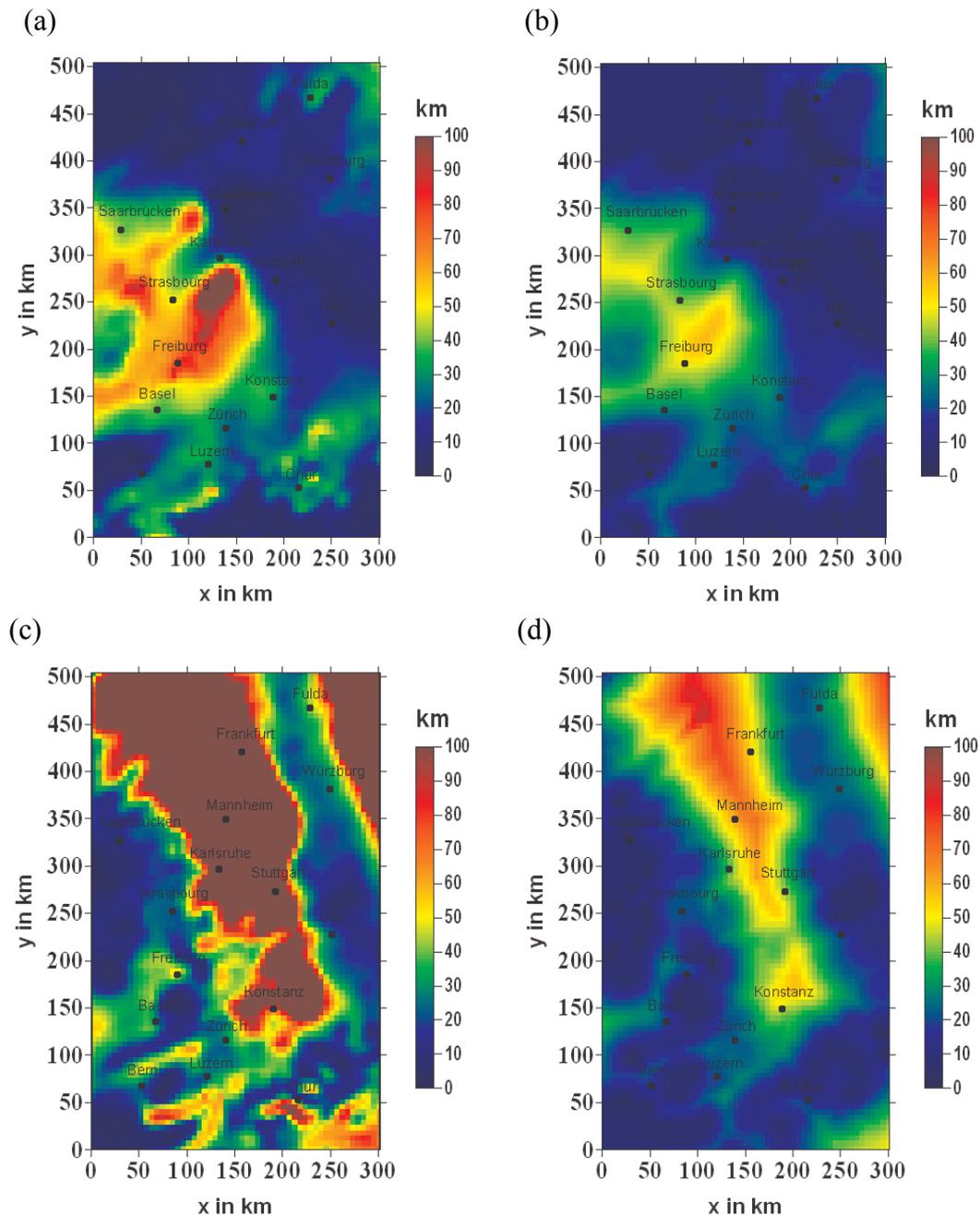
- Ein ideales schwarzes Objekt wird vor einem weißen Hintergrund betrachtet.
- Es wird in Bezug auf die Streuung und Absorption eine homogene Atmosphäre betrachtet.
- Die Helligkeiten für Objekt, Hintergrundes und Beobachter sind gleich (z.B. keine Abschattung durch Wolken).
- Der Sehstrahl verläuft horizontal und die Erdkrümmung wird vernachlässigt.
- Der Beobachter kann einen Kontrast von 0,02 wahrnehmen.

Im vorangegangenen Abschnitt wurde gezeigt, dass die horizontale Verteilung des Extinktionskoeffizienten durch eine hohe räumliche Variabilität charakterisiert ist. In der Berechnung der Sichtweite mit der Koschmieder-Formel (5.18) kann diese Variabilität nicht berücksichtigt werden, da hier nur der Wert des Extinktionskoeffizienten im Aufpunkt selbst eingeht. Die mit dieser Methode berechneten Sichtweiten stellen also eine lokale Sichtweite  $l_{\text{lok}}$  dar, die nur dann die atmosphärischen Verhältnisse gut wiedergeben kann, wenn die horizontalen Gradienten des Extinktionskoeffizienten vernachlässigbar gering sind oder für den Fall einer sehr stark belasteten Atmosphäre, in der die Extinktion die Sichtweite auf kurze Distanzen limitiert. Ein weiterer Nachteil der Koschmieder-Formel (5.18) ergibt sich daraus, dass hier eine Richtungsabhängigkeit der Sichtweite nicht berücksichtigt werden kann. Um die realen atmosphärischen Verhältnisse besser zu erfassen, wird die Sichtweite zusätzlich mit einer Methode nach Riemer (2002) berechnet. Riemer definierte eine richtungsabhängige Sichtweite. In verschiedene Raumrichtungen wird von einem beliebigen Punkt aus die Distanz bestimmt, in der der Eigenkontrast eines schwarzen Objektes  $C_0 = 1$  auf den minimalen Kontrast von  $C_{\text{min}} = 0,02$  abgesunken ist. Diese Distanz ergibt dann die Sichtweite. Der Kontrast in Abhängigkeit des Abstands zum Aufpunkt entlang eines Sehstrahls kann bestimmt werden aus (Riemer, 2002)

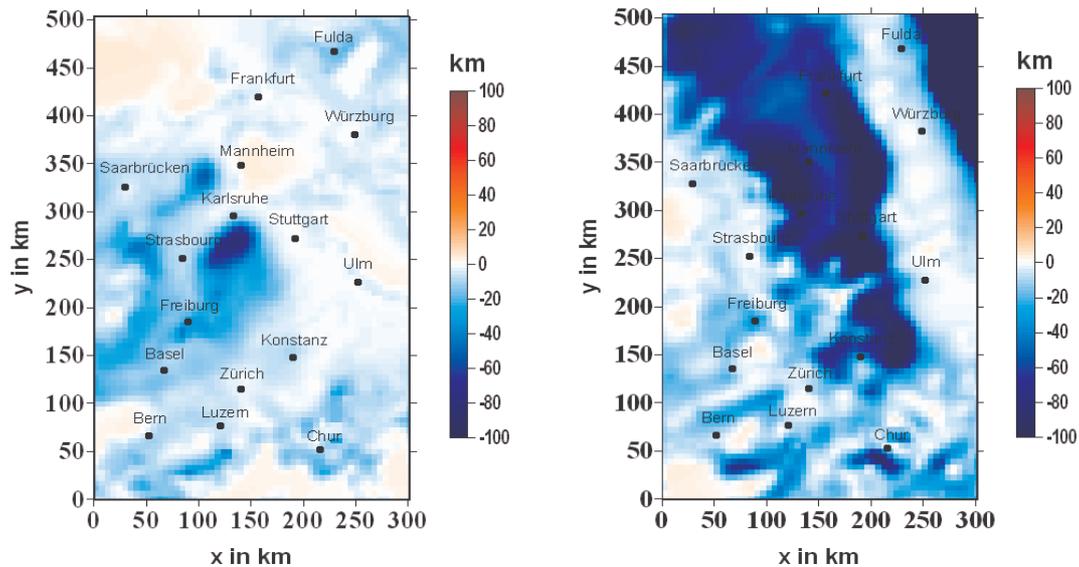
$$C(\vec{x}_0, \vec{r}, k\Delta x) = C_0 \exp\left(-\sum b_{\text{ext}}(\vec{x}_0 + (k\Delta x)\vec{r})\Delta x\right), \quad k = 1, \dots, k_{\text{max}}, \quad (5.19)$$

mit  $\Delta x$ , dem Abstand der Stützstellen entlang des Sehstrahls, an denen die Extinktionskoeffizienten vorliegen. Nach dieser Methode werden von einem Punkt mit einer Auflösung von  $5^\circ$  die Sichtweiten in verschiedene Raumrichtungen berechnet. Somit kann die minimale Sichtweite  $l_{\text{min}}$  an jedem Gitterpunkt aus dem Minimum der bestimmten Sichtweiten abgeleitet werden. Im Folgenden werden Sichtweiten präsentiert, die auf den berechneten Extinktionskoeffizienten der im Kapitel 4.3 beschriebenen Simulation zur Untersuchung des Auswaschens basieren. Für den benötigten Extinktionskoeffizienten der Gasphase des Aerosols wird ein konstanter Wert von 0,012 angenommen. Dieser lässt sich aus der Koschmieder-Formel ableiten, wenn angenommen wird, dass in einer reinen Atmosphäre, in der nur Rayleighstreuung an den Luftmolekülen stattfindet, die Sichtweite etwa 340 km beträgt. In Abbildung 5.4 sind die horizontalen Verteilungen der lokalen Sichtweite  $l_{\text{lok}}$  nach

Koschmieder und der aus der Methode nach Riemer abgeleiteten minimalen Sichtweite  $l_{\min}$  für den 18.08.2005 um 6:00 UTC und um 14:00 UTC dargestellt. Generell zeigt sich eine hohe horizontale Variabilität der lokalen und minimalen Sichtweiten. Die Sichtweiten variieren zwischen etwa 5 km und über 100 km. Um 6:00 UTC ergeben sich großräumig geringere Werte als um 14:00 UTC. Der Grund hierfür liegt zum einen im Verhalten der Extinktionskoeffizienten unter Einfluss der relativen Feuchte, welche in den frühen Morgenstunden ein tageszeitliches Maximum aufweist und zum anderen in der Akkumulation der Partikel bei geringen morgendlichen Grenzschichthöhen.

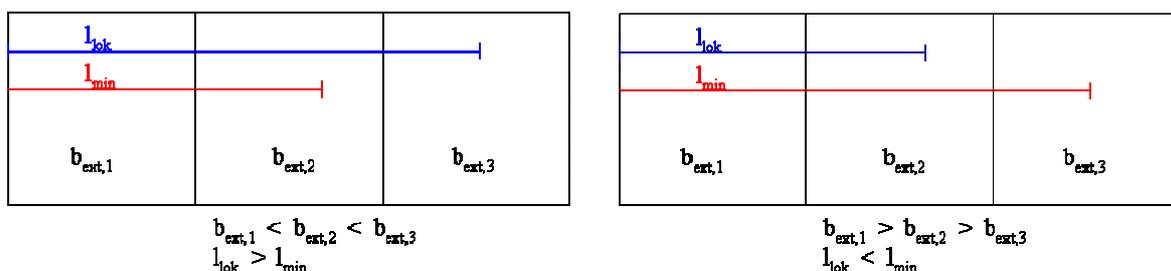


**Abbildung 5.4:** Simulierte horizontale Verteilungen für den 19.08.2005 der lokalen Sichtweite nach Koschmieder (1924) um 6:00 UTC (a) und 14:00 UTC (c) sowie die horizontale Verteilung der minimalen Sichtweite nach Riemer (2002) um 6:00 UTC (b) und 14:00 UTC (d).



**Abbildung 5.5:** Differenz der minimalen Sichtweite und der lokalen Sichtweite für den 19.08.2005 um 6:00 UTC (links) und 14:00 UTC (rechts). Blaue Farben bedeuten hier, dass die lokale Sichtweite gegenüber der minimalen Sichtweite erhöht ist.

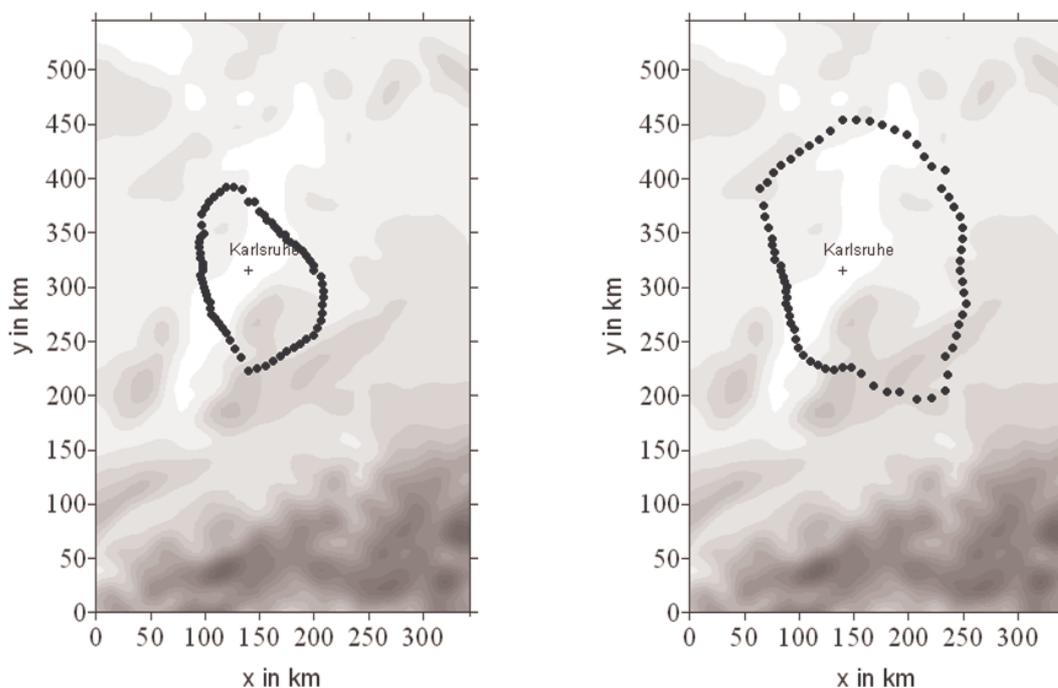
Hier muss allerdings beachtet werden, dass wenn der Abstand des Aufpunktes zur Berechnung der minimalen Sichtweite zum Modellrand kleiner ist als die minimale Sichtweite hier die Ergebnisse mit großen Unsicherheiten behaftet sein können, da an den Rändern nicht alle Quadranten und somit alle Richtungen berücksichtigt werden können. Dabei können insbesondere bei großen Sichtweiten Fehler auftreten. Abbildung 5.5 zeigt die Differenz der minimalen und lokalen Sichtweite  $\Delta l = (l_{\min} - l_{\text{lok}})$ . Aus der Betrachtung der Differenz kann folgende Fallunterscheidung getroffen werden. Im Fall hoher Sichtweiten, d.h. im Fall einer reinen wenig getrübbten Atmosphäre, zeigt sich ein deutlicher Unterschied zwischen lokaler und minimaler Sichtweite. Dabei ist die lokale der minimalen Sichtweite gegenüber deutlich erhöht. Im Fall mittlerer Sichtweiten im Größenbereich zwischen 40 km und 7 km zeigen die lokale und minimale Sichtweite vergleichbare Werte. In diesem Fall ist die lokale Sichtweite der minimalen Sichtweite gegenüber leicht erhöht, wenn der Extinktionskoeffizient im Aufpunkt ein lokales Maximum darstellt (Vgl. Abb. 5.6 links). Umgekehrt ist die minimale der lokalen Sichtweite gegenüber leicht erhöht, wenn der Extinktionskoeffizient im Aufpunkt ein lokales Minimum darstellt (Vgl. Abb. 5.6 rechts).



**Abbildung 5.6:** Schematische Darstellung der lokalen Sichtweite  $l_{\text{lok}}$  und der minimalen Sichtweite  $l_{\text{min}}$  für den Fall (links) wenn der Extinktionskoeffizient ein lokales Minimum darstellt und (rechts) wenn der Extinktionskoeffizient ein lokales Maximum darstellt.

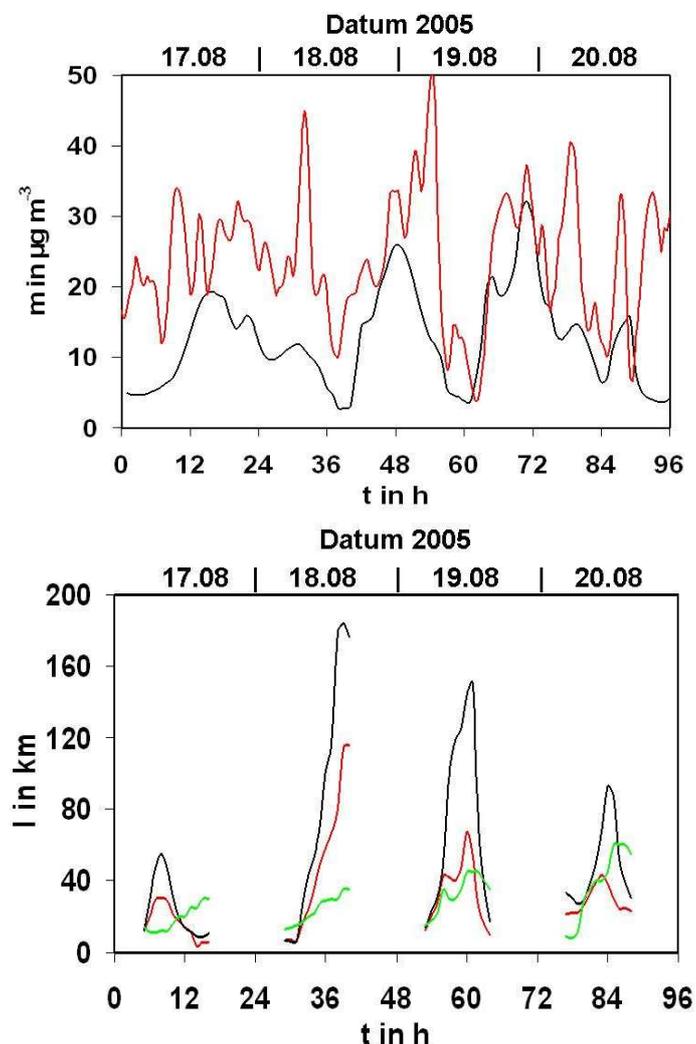
Bei Sichtweiten unterhalb der horizontalen Auflösung des Modells von 7 km müssen die lokale und minimale Sichtweite identisch sein, da hier in beiden Berechnungsmethoden identische Extinktionskoeffizienten verwendet werden und bei der Methode der Kontrastreduktion mit einem konstanten Extinktionskoeffizienten gerechnet werden muss, da die Extinktionskoeffizienten ebenfalls in dieser Auflösung vorliegen.

Die Abbildung 5.7 zeigt die horizontale Verteilung der nach der Methode der Kontrastreduktion berechneten Sichtweiten für den Gitterpunkt Karlsruhe (Sichtrosen). Hier zeigt sich eine deutliche Abhängigkeit der Sichtweite von der gewählten Blickrichtung mit einem signifikanten Unterschied zwischen der minimalen und maximalen Sichtweite. Weiter verändern sich die Sichtbedingungen in Laufe des Tages. In den Morgenstunden werden generell niedrigere Sichtweiten simuliert als in den Nachmittagsstunden. Das Maximum der Sichtweite liegt zu beiden betrachteten Zeitpunkten in südöstlicher Richtung. Das Minimum der Sichtweite ist in westlicher Richtung gelegen. In Abbildung 5.8 sind die Tagesgänge der simulierten lokalen und minimalen Sichtweiten im Vergleich zu gemessenen Sichtweiten des Deutschen Wetterdienst (DWD) dargestellt. Die Sichtweiten des DWD werden für Werte unter 10 km mit dem Transmissiometer, Videograph III bestimmt. Dabei handelt es sich um einen Rückstreulichtmesser mit dem, basierend auf der Messung der atmosphärischen Extinktion unter Verwendung der Koschmieder-Formel, die Sichtweite abgeleitet wird. Sichtweiten zwischen 10 km und 70 km werden von einem Beobachter unter Verwendung ausgemessener Sichtziele bestimmt. Sichtweiten über 70 km werden nicht weiter quantifiziert. Hier wird noch einmal deutlich, dass die lokale und minimale Sichtweite sich mit zunehmender Sichtweite signifikant voneinander unterscheiden. Die lokale Sichtweite ist in



**Abbildung 5.7:** Simulierte Sichtrosen für den Gitterpunkt Karlsruhe am 19.08.2005 um 6:00 UTC (links) und 14:00 UTC (rechts).

diesen Fällen gegenüber der minimalen Sichtweite erhöht. Weiter geht ein typischer Tagesgang mit einem Maximum der Sichtweite in den Mittags- und frühen Nachmittagsstunden einher. Die minimalen Sichtweiten stehen in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Sichtweiten am 19. und 20.08.2005. Hier werden am Mittag Sichtweiten zwischen 40 und 60 km erreicht. Am zweiten dargestellten Tag, dem 18.08.2005, wird die Sichtweite deutlich überschätzt. Zu diesem Zeitpunkt lässt sich eine Unterschätzung der Massenkonzentrationen durch das Modell erkennen. Die Atmosphäre ist im Modell also „sauberer“ als in der Realität. Damit wird auch die Extinktion vom Modell unterschätzt und somit die Sichtweite überschätzt. Am ersten Tag wird das Maximum der Sichtweite zu früh simuliert. Die Sichtweite in den Morgenstunden wird deutlich vom Modell überschätzt, da das Niveau der realen Massenkonzentrationen in diesen Stunden vom Modell nicht wiedergegeben wird.



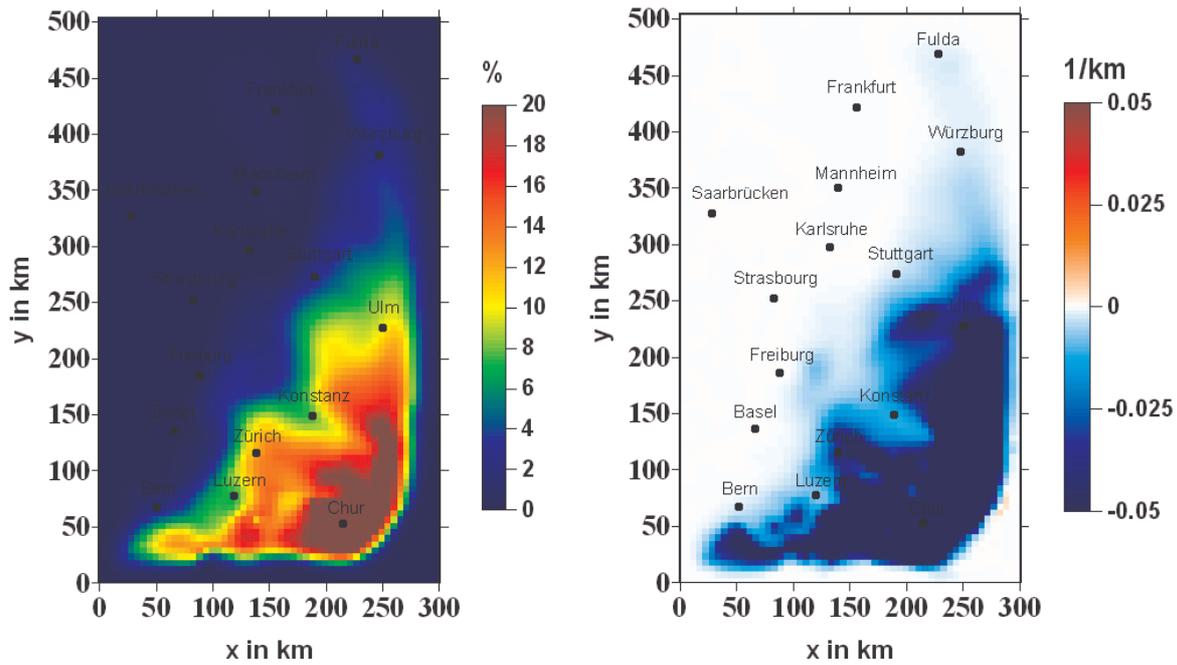
**Abbildung 5.8:** (oben) Zeitlicher Verlauf der simulierten Partikelmasse (schwarz) im Vergleich zu Messungen an der Station Eggenstein-Leopoldshafen des Landesamtes für Umweltschutz Baden-Württemberg (rot) und (unten) zeitlicher Verlauf der lokalen Sichtweite (schwarz) und der minimalen Sichtweite (rot) im Vergleich zu Messungen an der DWD Station Karlsruhe (grün). Beide Abbildungen beziehen sich auf den Zeitraum von 17.-20.08.2005.

Als Fazit ergibt sich:

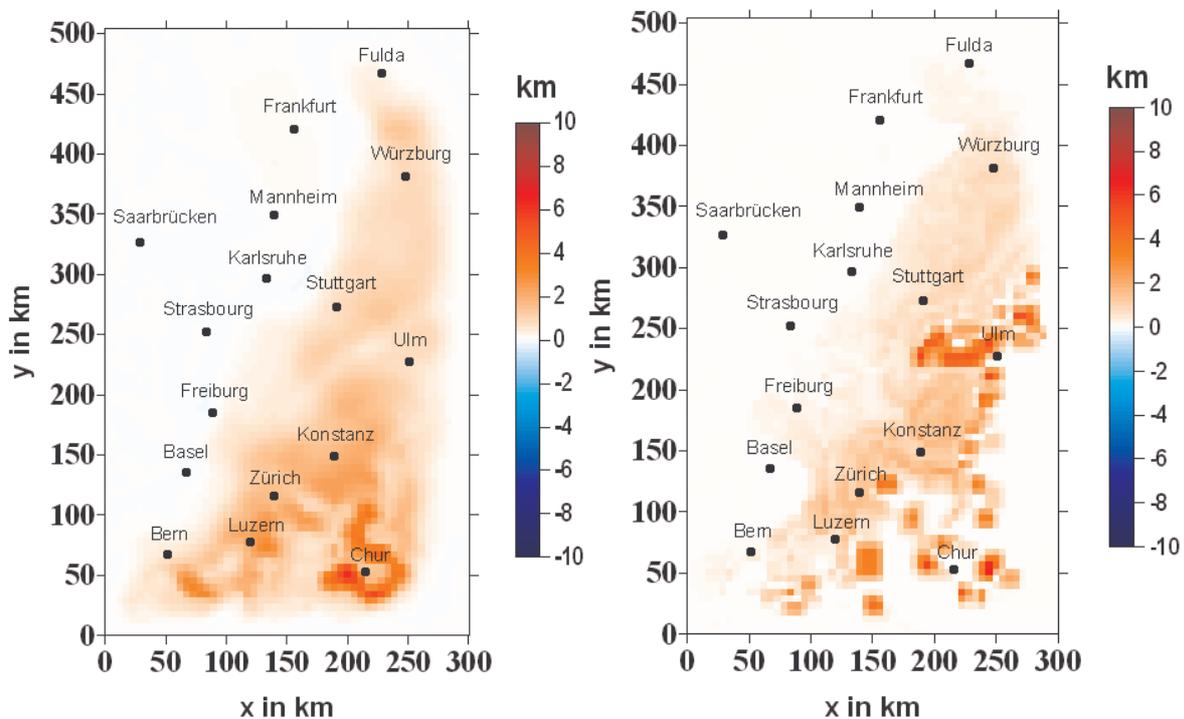
- Wird das Niveau der realen atmosphärischen Partikelmassenkonzentrationsverhältnisse vom Modell gut wiedergegeben, so zeigen die simulierten minimalen Sichtweiten nach der Methode der Kontrastreduktion nach Riemer (2002) eine gute Übereinstimmung mit gemessenen Sichtweiten.
- Die nach der Koschmieder-Formel berechneten Sichtweiten tendieren zur Überschätzung der realen Verhältnisse.
- Entscheidend für die Sichtweite sind dabei die mittleren Verhältnisse. Die in den Messungen der Partikelmasse auftretenden kurzzeitigen Fluktuationen, aufgrund Standort bedingter Emissionsereignisse, sowie Anomalien in den meteorologischen Feldern haben einen geringen Einfluss auf die Sichtweite. Dies gilt insbesondere in einer weniger belasteten Atmosphäre, in der hohe Sichtweiten auftreten, da die Sichtweite ein horizontales integrales Maß für die Partikelbelastung dargestellt.
- Mit dem COSMO-ART Modell können basierend auf den simulierten Extinktionskoeffizienten sehr gute Ergebnisse in der Sichtweitenmodellierung erzielt werden.

### 5.3 Der Einfluss des Auswaschprozesses auf die Sichtweite

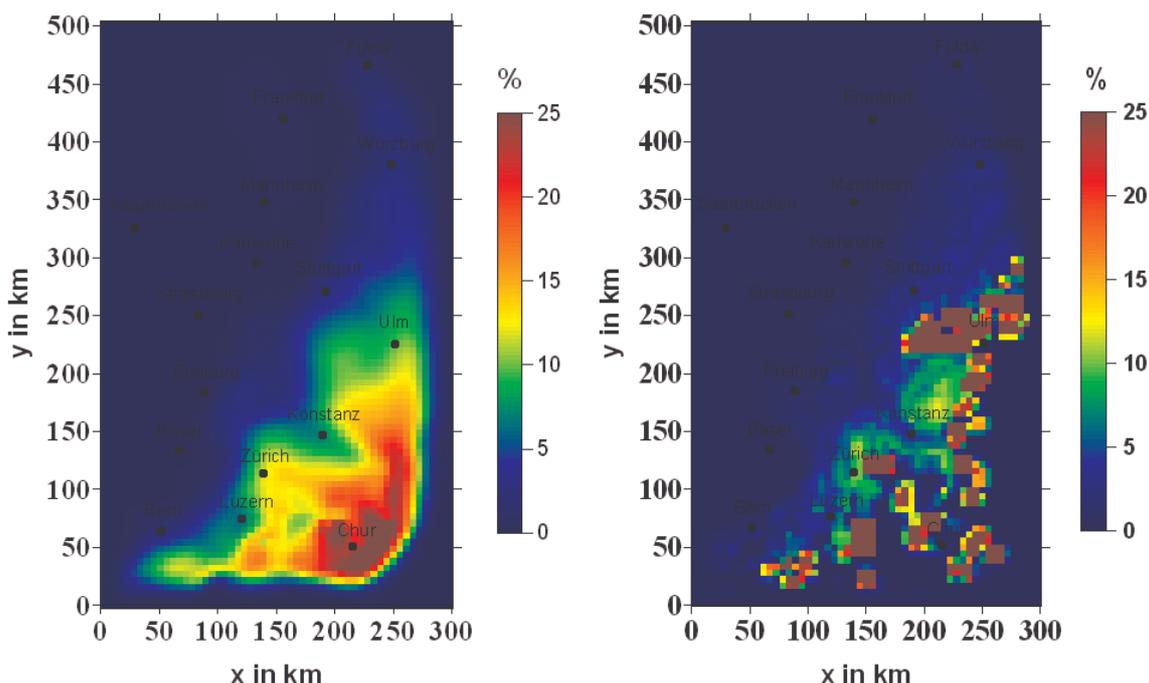
Die Simulationen im vorangegangenen Abschnitt wurden mit dem um den Auswaschprozess erweiterten COSMO-ART Modell erstellt. Im Folgenden soll nun der Einfluss des Auswaschprozesses auf die Sichtweite untersucht werden. Im Kapitel 4.2.3 wurde gezeigt, dass der Auswaschprozess eine Reduktion der Partikelanzahl- und Massenkonzentration zur Folge hat. Es ist daher anzunehmen, dass infolge des Auswaschens die Extinktion in der Atmosphäre an Aerosolpartikeln reduziert wird und somit eine Erhöhung der Sichtweite resultiert. Um den Einfluss des Auswaschprozesses zu untersuchen wird hier die Referenzsimulation ohne Berücksichtigung des Auswaschens (Vgl. Kap. 4.2.3) mit der Simulation unter Berücksichtigung des Auswaschens verglichen. Während eines Niederschlagsereignisses findet zusätzlich zu der Extinktion an Aerosolpartikeln, Extinktion an den Niederschlagstropfen statt. Diese soll hier nicht weiter betrachtet werden. Es wird daher ein Simulationszeitpunkt gewählt, bei dem keine Niederschlagsereignisse im Modellgebiet simuliert wurden, der aber zeitnah an einem solchen Ereignis liegt. In Abbildung 5.9 ist die Verringerung der Partikelmassenkonzentration für die Simulation mit Auswaschen gegenüber der Referenzsimulation dargestellt (linke Abbildung). Die rechte Abbildung zeigt die Differenz der simulierten Extinktionskoeffizienten. Die dargestellten Ergebnisse zeigen die horizontalen Verteilungen für den 20.08.2005 um 15:00 UTC. Negative Differenzen bedeuten hier einen verringerten Extinktionskoeffizienten in der Simulation mit Auswaschen. Die Ergebnisse bestätigen die Erwartungen. In der Simulation mit Auswaschen werden niedrigere Koeffizienten simuliert als im Referenzlauf. Dabei treten die größten



**Abbildung 5.9:** Verringerung der Gesamtpartikelmassenkonzentration in % in der Simulation mit Auswaschen (links). Differenz des Extinktionskoeffizienten (rechts) hier wurde der Referenzlauf von der Simulation mit Auswaschen subtrahiert. Dargestellt sind die Ergebnisse für den 20.08.2005 um 15:00 UTC in 40 m Höhe.



**Abbildung 5.10:** Differenz der lokalen Sichtweite (links) und der minimalen Sichtweite (rechts), der Referenzlauf wurde hier von der Simulation mit Auswaschen subtrahiert. Dargestellt sind die Ergebnisse für den 20.08.2005 um 15:00 UTC in 40 m Höhe.



**Abbildung 5.11:** Zunahme in % der lokalen Sichtweite (links) und der minimalen Sichtweite (rechts) in der Simulation mit Auswaschen gegenüber des Referenzlaufes. Dargestellt sind die Ergebnisse für den 20.08.2005 um 15:00 UTC in 40 m Höhe.

Differenzen im Südteil des Simulationsgebietes auf, wo in den Vormittagsstunden des 20.08.2005 Niederschlagsereignisse simuliert wurden (Vgl. Kap. 4.2.3). In der Abbildung 4.10 sind die Differenzen der lokalen Sichtweite (rechte Abbildung) und der minimalen Sichtweite dargestellt (linke Abbildung). Auch hier bestätigen sich die Erwartungen. In der Simulation mit Auswaschen werden höhere Sichtweiten infolge des reduzierten atmosphärischen Partikelgehaltes und der daraus folgenden verringerten Extinktion simuliert. Die Verteilung der Differenz der minimalen Sichtweite ist gröber strukturiert als jene der lokalen Sichtweite. Dies ist begründet in der Richtungsabhängigkeit der minimalen Sichtweite. Dabei ist es entscheidend ob die Richtung der minimalen Sichtweite in ein Gebiet mit vom Auswaschen beeinflussten Partikelkonzentrationen oder in ein vom Auswaschen unbeeinflusstem Gebiet zeigt. Liegt die minimale Sichtweite in ein vom Auswaschen unbeeinflusstem Gebiet, so ist keine Differenz zwischen den minimalen Sichtweiten der beiden Simulationen zu erwarten. Die relative Zunahme der Sichtweite in der Simulation unter Berücksichtigung des Auswaschens gegenüber dem Referenzlauf ist in Abbildung 5.11 dargestellt. Hier zeigt sich eine gebietsweise stärkere Zunahme der minimalen Sichtweite im Vergleich zur lokalen Sichtweite. Das Maximum der relativen Zunahme der lokalen Sichtweite liegt bei 35 % im Gebiet südöstlich von Chur und das der Zunahme der minimalen Sichtweite bei 100 % im Gebiet südöstlich von Luzern.

Der vorangegangene Vergleich zeigt, dass der Auswaschprozess über die Wechselwirkungen zwischen atmosphärischen Partikeln und meteorologischen Feldern auch einen indirekten Einfluß auf die meteorologischen Parameter hat.

## 6 Schlussbetrachtungen

Die vorliegende Arbeit liefert einen Beitrag zur genaueren Beschreibung des Auswaschens von Aerosolpartikeln infolge der Kollision der Partikel mit sedimentierenden Niederschlagstropfen im Rahmen numerischer Ausbreitungsmodelle. Studien verschiedener Autoren belegen, dass der Auswaschprozess in aktuellen Ausbreitungsmodellen unzureichend genau wiedergegeben wird (Sparmacher et al., 1993; Rasch et al., 2000; Mircea et al., 2000). Die exakte physikalische Berechnung des Auswaschprozesses im Rahmen von numerischen Modellen ist bei der Betrachtung von polydispersen Aerosolpartikel- und Tropfengrößenverteilungen aufgrund der hohen Anforderungen an die Rechenleistung gegenwärtig nicht möglich. Daher ist eine Parametrisierung dieses Prozesses notwendig. Derzeitige Berechnungen des Auswaschprozesses basieren zumeist auf konstanten oder als Funktion der Niederschlagsrate formulierten Partikelverlusten (z.B. Seinfeld und Pandis, 1998). Eine Berücksichtigung der bestehenden Abhängigkeit des Prozesses von der Partikel- und Tropfengrößenverteilung kann mit diesen Verfahren nicht realisiert werden. Des Weiteren bleiben oftmals die durch Kondensation bzw. Evaporation verursachten phoretischen Kräfte sowie die aufgrund elektrischer Ladung der Partikel und Tropfen wirkenden elektrischen Anziehungskräfte unberücksichtigt (Mircea und Stefan, 1998).

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neue Parametrisierung für die Berechnung der zeitlichen Änderung der Momente einer kontinuierlichen polydispersen Partikelgrößenverteilung infolge des Auswaschens formuliert. Diese Parametrisierung basiert auf der von Slinn (1977) und Davenport und Peters (1977) gegebenen Beschreibung des Auswaschprozesses mittels Partikel-Tropfen-Kollisionseffizienzen. Berücksichtigt werden hierbei die Kollision beeinflussenden physikalischen Mechanismen Brownsche Partikelbewegung, Trägheitsimpaktion, Interzeption, Thermophorese, Diffusiophorese und die Anziehung infolge elektrischer Kräfte. Mit dem Ziel die Anforderungen an die Rechnerleistung zu minimieren, wurden die Parametrisierungsgleichungen als Funktion der Momente der Partikel- sowie Tropfengrößenverteilungsfunktion formuliert. Hierzu mussten die Gleichungen der einzelnen Kollisionseffizienzen als Potenz des Partikel- und Tropfendurchmessers geschrieben werden. Dies erforderte eine Approximation des Terms für die Trägheitsimpaktion und des in den Gleichungen auftretenden Cunningham Korrekturfaktors. Um die Thermophorese in den Parametrisierungsgleichungen berücksichtigen zu können, mussten der thermophoretische Koeffizient für das freimolekulare, das molekulare Regime und das Übergangsregime separat behandelt werden.

Die Notwendigkeit die Abhängigkeit des Auswaschprozesses von den Durchmessern der Kollisionspartner zu berücksichtigen, zeigte die Diskussion der Partikel-Tropfen-

Kollisionseffizienz. Die Kollisionseffizienz variiert in dem betrachteten Partikelgrößenbereich um bis zu zwei Größenordnungen. Infolge der hohen Brownschen Bewegung kleiner Aerosolpartikel werden im Größenbereich unter 100 nm hohe Kollisionseffizienzen erreicht. Als weiterer effizienter Kollisionsmechanismus konnte die Trägheitsimpaktion großer Partikel im Supermikrometerbereich nachgewiesen werden. Die Kollisionseffizienz in beiden genannten Größenbereichen erreicht hier ihr Maximum, welches für wenige Nanometer und mehrere Mikrometer große Partikel nahe Eins liegt. Zwischen diesen beiden Partikelgrößenbereichen tritt ein charakteristisches Minimum im Effizienzverlauf auf. Es konnte gezeigt werden, dass hier die Brownsche Partikelbewegung und die Trägheitsimpaktion wenig effiziente Kollisionsmechanismen darstellen. In diesem Größenbereich werden die Effizienzen signifikant durch das Auftreten von thermophoretischen und diffusiophoretischen Kräften in Abhängigkeit der diese Kräfte bestimmenden Temperatur- und Wasserdampfkonzentrationsgradienten beeinflusst.

Obwohl die absoluten Beiträge zur Kollisionseffizienz der Interzeption sowie der Anziehung aufgrund elektrischer Kräfte mit zunehmendem Partikeldurchmesser ansteigen, sind die relativen Beiträge dieser beiden Mechanismen als gering einzuschätzen. Die Begründung liegt in der Überlagerung dieser beiden Mechanismen durch die beschriebenen die jeweiligen Größenbereiche dominierenden Prozesse.

Mit einem Boxmodell wurden zwei Aspekte untersucht. An einer idealisierten polydispersen Aerosolpartikelpopulation wurden die Bedeutung des charakteristischen Verlaufs der Kollisionseffizienz sowie die Bedeutung der Eigenschaften eines Niederschlagsereignisses für das Auswaschen geklärt. Im zweiten Teil der Boxmodellstudien wurde der durch das Auswaschen verursachte Partikelverlust realer atmosphärischer Aerosolpartikelverteilungen bestimmt und mit Feldmessungen verglichen.

Die Studien an einer trimodalen idealisierten Partikelverteilung zeigten deutliche Unterschiede im Partikelverlust infolge des Auswaschens in den drei klassischen Partikelgrößenbereichen. Der geringste Partikelverlust trat im Akkumulationspartikelbereich auf, welcher im Bereich des Minimums der Kollisionseffizienz angesiedelt ist. Im Grobpartikelbereich, dem als dominierender Kollisionsmechanismus die Trägheitsimpaktion zuzuordnen ist, wurden die höchsten Partikelverlustraten ermittelt. Mittlere Partikelverlustraten traten im Aitkenpartikelbereich auf, in dem die Brownsche Partikelbewegung den dominierenden Kollisionsmechanismus darstellt.

Weiter konnte eine Abnahme der Standardabweichungen in allen drei Moden, also eine Verringerung der Breite der Gesamtpartikelverteilung mit zunehmender Dauer des Niederschlagsereignisses nachgewiesen werden. Es zeigte sich eine Verschiebung der Mediandurchmesser der einzelnen Moden in bezüglich des Auswaschprozesses weniger effiziente Größenbereiche. Dies bedeutet eine Zunahme des Mediandurchmessers der Mode im Aitkenpartikelbereich und eine Abnahme des Mediandurchmessers der Mode im Grobpartikelbereich. Zum anderen verringerte sich im zeitlichen Verlauf die geometrische Standardabweichung also die Breite der Verteilungen der einzelnen Moden.

Um den Einfluss der Eigenschaften eines Niederschlagsereignisses auf den Auswaschprozess zu klären, wurde das Auswaschen in zwei unterschiedlichen Niederschlagsklassifikationen simuliert. Hier wurde ein schwaches Niederschlagsereignis durch eine hohe

Gesamttröpfenanzahl bei geringem Flüssigwassergehalt und kleinem mittleren Tropfendurchmesser charakterisiert und ein starkes Niederschlagsereignis mit geringer Gesamttröpfenanzahl bei hohem Flüssigwassergehalt und großem mittleren Tropfendurchmesser unterschieden. Bei der Approximation der jeweiligen Tropfenspektren der betrachteten Ereignisse wurden zwei verschiedene Verteilungsfunktionen gewählt, eine Exponentialverteilung und eine 2-parametrische Gammaverteilung. Die Simulationsergebnisse zeigten, dass der Partikelverlust infolge des Auswaschens stark von dem vom Tropfenspektrum aufgespannten Kollisionsvolumen abhängt. Schwache Niederschlagsereignisse mit einer hohen Anzahl kleiner Tropfen und daraus resultierenden deutlich erhöhten Kollisionsvolumina verursachen ein wesentlich effizienteres Auswaschen von Aerosolpartikeln gegenüber starken Niederschlagsereignissen mit einer geringeren Anzahl großer Tropfen. Die Variation, der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Tropfenverteilungsfunktionen, ergab hingegen nur geringe Unterschiede im Partikelverlust, begründet in den vergleichbaren Kollisionsvolumina.

Neben den idealisierten Studien wurden mit dem Boxmodell durch den Niederschlag verursachte Partikelverlusten verschiedener realer aus Messungen abgeleiteter troposphärischer Aerosolpartikelverteilungen bestimmt. Die simulierten Verlusten variierten in Abhängigkeit der betrachteten Aerosolpartikelverteilungen und Niederschlagsereignisse um bis zu zwei Größenordnungen im Bereich von  $8 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  –  $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . Ein Vergleich der simulierten Verlusten mit in Feldmessungen ermittelten Verlusten zeigte eine gute Übereinstimmung.

Die neu entwickelte Parametrisierung des Auswaschprozesses wurde in das mesoskalige Modellsystem COSMO-ART implementiert. In der derzeitigen Realisierung des Auswaschprozesses im COSMO-ART Modell bleiben die Thermophorese, die Diffusiophorese und die Anziehung aufgrund des Wirkens elektrischer Kräfte unberücksichtigt. Im COSMO-ART Modell werden zeitlich konstante Standardabweichungen für die die einzelnen Moden approximierenden Lognormalverteilungen verwendet. Daher kann die zeitliche Änderung der Standardabweichung infolge des Auswaschprozesses nicht berücksichtigt werden. Es wurde gezeigt, dass bei der Berechnung des Auswaschprozess mit konstanter Standardabweichung auch die Mediandurchmesser der einzelnen die Moden approximierenden Lognormalverteilungen konstant gehalten werden müssen. Mit diesen Vereinfachungen wird letztendlich der Auswaschprozess in den aerosoldynamischen Gleichungen für das Nullte und das Dritte Moment als zusätzliche Senke für die Partikel berücksichtigt.

Da das Auswaschen von Aerosolpartikel eine bedeutende Senke für die in der Atmosphäre suspendierten Partikel darstellt, leistet diese Erweiterung einen Beitrag dafür, das troposphärische Aerosol im regionalen Bereich mit einem Modell realistischer zu beschreiben. Das Modellsystem erlaubt die Simulation der raum-zeitlichen Entwicklung der Konzentrationsfelder gas- und partikelförmiger Luftbeimengungen unter Berücksichtigung von lokalen Emissionen, Transportprozessen, Depositionsprozessen sowie chemischen Umwandlungen und aerosoldynamischen Prozessen. Mit der um das Auswaschen erweiterten Modellversion wurde eine sommerliche 5-Tages-Periode im August 2005 simuliert. Das

Modellgebiet umfasste Südwestdeutschland und große Teile der Alpen. Um die benötigten Konzentrationen auf den seitlichen Rändern zu erhalten, wurde das Modell in sich selbst genestet.

Der Vergleich der simulierten Partikelmassenkonzentrationen mit operationell gemessenen zeigte, dass das Modell die Konzentrationen atmosphärischer Luftbeimengungen in dem betrachteten Fall realistisch wiedergibt, verdeutlichte allerdings auch die Grenzen des Modells. Die hohe zeitliche Variabilität der gemessenen Konzentrationen kann vom Modell nicht wiedergegeben werden. Dies ist begründet in der räumlichen und zeitlichen Auflösung des Modells und der den Simulationen zugrunde liegenden Emissionsdaten.

Der Auswaschprozess wurde anhand des in den Morgenstunden des vierten Simulationstages im Südteil des Simulationsgebietes auftretenden Niederschlages untersucht. Es konnte eine deutliche Beeinflussung der Partikelkonzentrationen in der Horizontalen sowie Vertikalen nachgewiesen werden. In Abhängigkeit der Stärke und Dauer des Niederschlagsereignisses ergaben sich in Bodennähe ein Partikelanzahlverlust von bis zu 15 % und ein Partikelmassenverlust von bis zu 25 %. Wie in den Boxmodellstudien konnte auch in den dreidimensionalen Simulationen die Abhängigkeit des Auswaschens vom Partikeldurchmesser gezeigt werden. Der höchste Partikelverlust trat auch hier in den im Aitken- und Grobpartikelbereich angesiedelten Moden auf. Durch den atmosphärischen Transport der Aerosolpartikel werden die durch den Auswaschprozess verringerten Partikelkonzentrationen in vom Niederschlag unbeeinflusste Gebiete verbreitet. Der Transport und die lokalen Emissionen bewirken eine Einmischung von Partikeln in vom Niederschlag beeinflusste Gebiete. Dies wirkt sich in diesen Gebieten in einer Verringerung des Nettopartikelverlustes aus.

Die simulierten dreidimensionalen Partikelkonzentrationsfelder wurden im Weiteren dazu genutzt, ausgesuchte optische Eigenschaften der Partikel zu berechnen. Auf Basis der berechneten Partikelmassenkonzentrationsverteilungen wurde gezeigt, wie in parametrisierter Form auf den Extinktionskoeffizienten geschlossen werden kann. Die auf der Basis von Mie-Rechnungen formulierte Parametrisierung ermöglicht die Berechnung der Extinktion an Aerosolpartikeln in effizienter Weise im Rahmen dreidimensionaler numerischer Ausbreitungsmodelle. Die horizontale Verteilung des Extinktionskoeffizienten ist charakterisiert durch eine hohe raum-zeitliche Variabilität. Der Tagesgang des Extinktionskoeffizienten weist ein typisches Maximum in den frühen Morgenstunden auf. Dieses Verhalten kann auf den Tagesgang der relativen Feuchte zurückgeführt werden. Dieser Tagesgang ist charakterisiert durch ein Maximum in den späten Nacht- und frühen Morgenstunden. Die erhöhten relativen Feuchten bewirken eine Zunahme des Flüssigwassergehalts in der Aerosolpartikelmasse und somit speziell im Aitken- und Akkumulationsgrößenbereich größere Partikeldurchmesser mit einer effektiveren Extinktion. Die Kenntnis des dreidimensionalen Feldes der Extinktionskoeffizienten wurde im Modellgebiet dazu verwendet, die Sichtweite zu bestimmen. Um die Sichtweite abzuleiten, wurden zwei verschiedene Verfahren genutzt und miteinander verglichen. Anhand der durch Koschmieder (1928) gegebenen Formel konnte eine lokale Sichtweite aus dem Extinktionskoeffizienten am Aufpunkt bestimmt werden. Ein Problem dieser Methode ist,

dass die horizontale Variabilität des Extinktionskoeffizienten nicht berücksichtigt werden kann. Die so berechneten Sichtweiten stellen daher nur eine grobe Abschätzung der atmosphärischen Verhältnisse dar. Um die horizontale Variabilität des Extinktionskoeffizienten in der Berechnung der Sichtweite berücksichtigen zu können und somit eine richtungsabhängige Sichtweite abzuleiten, wurde ein Verfahren nach Riemer (2002) verwendet. Dieses basiert auf der Reduktion des Kontrastes eines zu beobachtenden Objekts mit zunehmender Entfernung vom Beobachter. Mit dieser Methode wurde für verschiedene Raumrichtungen die Sichtweite bestimmt. Die sich daraus ergebende minimale Sichtweite wurde mit jener lokalen aus dem Koschmieder-Verfahren verglichen. Der Tagesgang der Sichtweiten ist eng mit dem Tagesgang der Extinktionskoeffizienten verknüpft und weist ein charakteristisches Maximum in den Mittagsstunden auf, in denen minimale Extinktionskoeffizienten zu beobachten waren. Es zeigte sich, dass die lokalen Sichtweiten zu einer Überschätzung der atmosphärischen Verhältnisse tendieren, speziell im Fall einer sauberen ungetrübten Atmosphäre mit hohen Sichtweiten. Der Vergleich gemessener Sichtweiten mit simulierten minimalen Sichtweiten ergab eine sehr gute Übereinstimmung. Des Weiteren konnte am Beispiel der Sichtweite gezeigt werden, dass der Auswaschprozess über die Wechselwirkungen der Aerosolpartikel mit meteorologischen Feldern, einen indirekten Einfluss auf meteorologische Parameter hat.

Die Simulation des atmosphärischen Aerosols stellt auch heute noch eine große Herausforderung dar. Obwohl in den letzten Jahrzehnten große Fortschritte erzielt werden konnten, bleibt immer noch eine große Unsicherheit. Selbst grundlegende Fragen, wie die Bildung von Aerosolpartikeln aus gasförmigen Vorläufersubstanzen oder der Einfluss einer Aerosolpartikelpopulation auf die Wolken- und Niederschlagsbildung, bleiben ungeklärt. Ein weiteres Problem ergibt sich daraus, dass aus Kapazitäts- und Verständnisgründen nicht alle Komponenten des atmosphärischen Aerosols berücksichtigt werden können. Hier bestehen vor allem bei der Behandlung des organischen Anteils am atmosphärischen Aerosol große Verständnislücken. Weiter zeigte sich, dass das atmosphärische Aerosol vor allem in den unteren Atmosphärenschichten stark von lokalen Emissionen beeinflusst wird. Eine detaillierte Charakterisierung der Emissionen und deren raum-zeitlicher Variabilität bildet somit die Voraussetzung für qualitativ hochwertige Simulationen. Unter diesen Randbedingungen leistet die vorliegende Arbeit einen Beitrag zu einer verbesserten Simulation des atmosphärischen Aerosols. Im Rahmen dieser Arbeit konnte bei der Parametrisierung des Auswaschprozesses eine deutliche Verbesserung erzielt werden, begründet durch die Berücksichtigung der Abhängigkeit des Prozesses vom Partikel- und Tropfendurchmesser sowie der phoretischen und elektrischen Mechanismen. Die entwickelte Parametrisierung eröffnet die effiziente und genauere Behandlung des Auswaschprozesses in Ausbreitungsmodellen mit einer im Vergleich zu bestehenden Formulierungen höheren Genauigkeit. Im Bezug auf das Auswaschen bleiben dennoch einige Fragen, die hier nicht im Mittelpunkt der Betrachtungen standen, ungeklärt, wie beispielsweise der Einfluss der atmosphärischen Turbulenz auf die Partikel-Tropfen-Kollisionen.

Das im Rahmen dieser Arbeit erweiterte Modellsystem COSMO-ART ermöglicht ein breites Anwendungsfeld zur Untersuchung des Einflusses des Aerosols auf die physikalischen und

chemischen Bedingungen der Atmosphäre auf der regionalen Skala. In dieser Arbeit wurde das Modell zur Bestimmung des Einflusses in der Atmosphäre suspendierter Partikel auf die Sichtweite verwendet. Die Ergebnisse stehen im wesentlichen in guter Übereinstimmung mit den realen Verhältnissen. Allerdings blieben in dieser Arbeit der Einfluss verschiedener meteorologischer Variablen, wie beispielsweise der Bewölkung und der damit verbundenen Abschattung, auf den Kontrast unberücksichtigt. Weitere denkbare Einsätze des Modells sind Fragestellungen zur Charakterisierung urbaner Partikelbelastungen oder der Klimawirksamkeit des anthropogenen Aerosols. Eine vollständige Validierung des Modells anhand von atmosphärischen Messungen ist sehr schwierig. In-situ Datensätze, die eine komplette Charakterisierung der chemischen und physikalischen Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols zulassen, sind kaum vorhanden. Die fortschreitende Entwicklung in der Messtechnik der letzten Jahre bietet heute eine weitere Möglichkeit der Verifikation von Modellergebnissen mittels Fernerkundungsverfahren wie Lidar-, Photometer-, und Satellitenmessungen. Satellitenmessungen bieten die Möglichkeit eines flächenhaften Vergleichs von Grobstrukturen im regionalen Bereich in den verschiedenen simulierten Feldern, während Lidarmessungen hochauflösende Messungen für kleinere Gebiete liefern.

# Symbolverzeichnis

Symbol	Einheit	Bedeutung
<b>Großbuchstaben</b>		
$B_O(x), B_B(x)$	$W\ m^{-2}\ \mu m^{-1}\ sr^{-1}$	spektrale Strahldichte des Hintergrundes und eines Objektes
$C(x)$		Kontrast
$C_{min}$		minimaler Kontrast
$C_{Ext}, C_{Streu}, C_{Abs}$	$m^2$	Extinktions-, Streu- und Absorptionsquerschnitt
$Ca_{kxx}$	$m^k\ m^{-3}\ s^{-1}$	lokalzeitlich Änderung des k-ten Momentes infolge intramodaler Koagulation
$Ca_{kxy}$	$m^k\ m^{-3}\ s^{-1}$	lokalzeitlich Änderung des k-ten Momentes infolge intermodaler Koagulation
$C_C$		Cunninghamkorrekturfaktor
$Co_{kl}$	$s^{-1}$	lokalzeitliche Änderung des k-ten Momentes infolge Kondensation
$D_D$	$m$	Tropfendurchmesser
$D_{Par}(v_P)$	$m^2\ s^{-1}$	Diffusionskoeffizient eines Partikels bezogen auf das Partikelvolumen
$D_{Diff}$	$m^2\ s^{-1}$	Diffusionskoeffizient eines Partikels bezogen auf den Partikeldurchmesser
$D_W$	$m^2\ s^{-1}$	Diffusionskoeffizient des Wasserdampfes
$E_{Ext}, E_{Streu}, E_{Abs}$		Extinktions-, Streu- und Absorptionsenergie
$E, E_{ges}$		Kollisionseffizienz
$E_{BD}$		Kollisionseffizienz bestimmt durch Brownsche Diffusion
$E_{Int}$		Kollisionseffizienz bestimmt durch Interzeption
$E_{Imp}$		Kollisionseffizienz bestimmt durch Impaktion
$E_{Therm}$		Kollisionseffizienz bestimmt durch Thermophorese
$E_{Diff}$		Kollisionseffizienz bestimmt durch Diffusiophorese
$E_e$		Kollisionseffizienz bestimmt durch elektrische Anziehung
$F^{v,l,f}$	$kg\ m^{-2}\ s^{-1}$	turbulenter Fluss des Wasserdampfes, flüssig Wassers und Eises
$F^{\Psi_i}$	$kg\ m^{-2}\ s^{-1}$	turbulenter Fluss der Substanz i (Gasphase)
<b>H</b>	$K\ m\ s^{-1}$	turbulenter Fluss sensibler Wärme
$I_0$	$W\ m^{-2}$	Intensität des einfallenden Lichtes

$I^x$		die Quellen und Senken der verschiedenen Phasen des Wassers
$J^x$		der diffusive Fluss für die verschiedenen Phasen des Wassers
$L_i$	$s^{-1}$	Senken der Substanz $i$ infolge chemischer Reaktionen
$L_v, L_s$	$J\ kg^{-1}$	latente Verdampfungswärme und latente Sublimationswärme bei der Referenz Temperatur $T_0$
$M_k$	$m^k\ m^{-3}$	$k$ -tes integrales Moment der Partikelanzahldichteverteilungsfunktion
$M_{kl}$	$m^k\ m^{-3}$	$k$ -tes integrales Moment der Partikelanzahldichteverteilungsfunktion eines Modes $l$
$M_0$	$m^{-3}$	0-tes integrales Moment der Partikelanzahldichteverteilungsfunktion
$M_2$	$m^2\ m^{-3}$	2-tes integrales Moment der Partikelanzahldichteverteilungsfunktion
$M_3$	$m^3\ m^{-3}$	3-tes integrales Moment der Partikelanzahldichteverteilungsfunktion
$M_{air}$	$kg\ mol^{-1}$	Molekulargewicht der Luft
$M_w$	$kg\ mol^{-1}$	Molekulargewicht des Wassers
$N$	$m^{-3}$	Gesamtanzahldichte aller Teilchen in einem Luftvolumen
$N_D$	$m^{-3}$	Gesamtanzahldichte der Tropfen
$N_{Koll}$	$s^{-1}$	Gesamtanzahl der Partikel-Tropfen-Kollisionen
$N_p$	$m^{-3}$	Gesamtpartikelanzahldichte
$N_{pl}$	$m^{-3}$	Gesamtpartikelanzahldichte des Modes $l$
$N_{ukl}$	$m^{-3}\ s^{-1}$	lokalzeitlich Änderung des Momentes $k$ infolge Nukleation
$Q_{Ext}, Q_{Streu}, Q_{Abs}$		Extinktions-, Streu- und Absorptionseffizienz
$Q_h$		diabatische Erwärmungsrate aufgrund von Strahlungsflüssen und Phasenumwandlungen
$P_i$	$s^{-1}$	Quellen der Substanz $i$ infolge chemischer Reaktionen
$R_0$	$m$	Konstante in der Berechnung der atmosphärischen Verweilzeit von Aerosolpartikeln
$R_d$	$J\ kg^{-1}\ K^{-1}$	Gaskonstante für die trockene Luft
$R_v$	$J\ kg^{-1}\ K^{-1}$	Gaskonstante für den Wasserdampf
$RH$	%	Relative Feuchte
$S_p$	$m^2\ m^{-3}$	Oberflächendichte des Aerosols
$T$	$K$	Temperatur
$T_{air}$	$K$	Lufttemperatur
$T_s$	$K$	Oberflächentemperatur eines Tropfens
$V_p$	$m^3\ m^{-3}$	Volumendichte des Aerosols
$V_{Koll}$	$m^{-3}\ s^{-1}$	Kollisionsvolumen

W Verhältnis der dynamischen Viskosität des Wasser zu jener der Luft

---

**Kleinbuchstaben**


---

$a_m$		Massenakkomodationskoeffizient
$b_{Ext}, b_{Streu}, b_{Abs}$	$m^{-1}$	Extinktions-, Streu- und Absorptionskoeffizient
$c_p(v_p)$	$m s^{-1}$	Driftgeschwindigkeit der Aerosolpartikel aufgrund äußerer Kräfte
$c_{pd}$	$J kg^{-1} K^{-1}$	die spezifische Wärmekapazität des Wasserdampfes bei konst. Druck
$c_{pv}$	$J kg^{-1} K^{-1}$	die spezifische Wärmekapazität des Wasserdampfes bei konst. Volumen
$c_{pair}$	$J kg^{-1} K^{-1}$	die spezifische Wärmekapazität der Luft bei konst. Druck
$d_p$	$m$	Partikeldurchmesser
$d_{g,l}$	$m$	mittlerer geometrischer Durchmesser der Anzahldichteverteilung des Modes l
$d_{g,l,2}$	$m$	mittlerer geometrischer Durchmesser der Oberflächendichteverteilung des Modes l
$d_{g,l,3}$	$m$	mittlerer geometrischer Durchmesser der
$\mathbf{g}$	$m s^{-2}$	Vektor der Erdbeschleunigung
$k^*$		Verhältnis der Wärmeleitfähigkeit der Luft zu jener der Partikel
$k_{air}$	$J m s^{-1} K^{-1}$	Wärmeleitfähigkeit der Luft
$k_p$	$J m s^{-1} K^{-1}$	Wärmeleitfähigkeit eines Partikels
$k_B$	$J K^{-1}$	Boltzmannkonstante
$l_{lok}, l_{min}$	$m$	lokale und minimale Sichtweite
$m_{Br}$		komplexer Brechungsindex
$m_D$	$kg$	Masse eines Tropfens
$m_p$	$kg$	Partikelmasse
$n(D_D)$	$m^{-3} m^{-1}$	Verteilungsdichtefunktion der Tropfenanzahldichte
$n(d_p)$	$m^{-3} m^{-1}$	Verteilungsdichtefunktion der Partikelanzahldichte
$n_l(d_p)$	$m^{-3} m^{-1}$	Verteilungsdichtefunktion der Partikelanzahldichte des Modes l
$n_S(d_p)$	$m^2 m^{-3} m^{-1}$	Verteilungsdichtefunktion der Partikeloberflächendichte
$\dot{n}_s(v_p)$	$m^{-3} s^{-1}$	Gewinn oder Verlust an Partikeln durch Quellen und Senken
$n_V(d_p)$	$m^3 m^{-3} m^{-1}$	Verteilungsdichtefunktion der Partikelvolumendichte
$n(v_p)$	$m^3 m^{-3} m^{-3}$	Verteilungsdichtefunktion der Partikelanzahldichte bezogen auf das Partikelvolumen
$p$	$Pa$	Druck

$p_0$	Pa	statischer Druck
$p_{\text{air}}$	Pa	Luftdruck
$p_S$	Pa	Dampfdruck an der Oberfläche eines Tropfens
$q^x$		Massenmischungsverhältnis der verschiedenen Phasen des Wassers
$q_D$	C	elektrische Ladung des Tropfens
$q_P$	C	elektrische Ladung des Partikels
$r_P$	m	Partikelradius
$t$	s	Zeit
$\underline{t}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-2}$	Reibungsspannungstensor
$t_{\text{Par}}$	s	atmosphärische Verweilzeit von Aerosolpartikeln
$u^*(d_p)$	$\text{m s}^{-1}$	Gesamtpartikelgeschwindigkeit
$\mathbf{v}$	$\text{m s}^{-1}$	Geschwindigkeitsvektor
$V_P$	$\text{m}^{-3}$	Volumen eines Partikels
$V_{\text{sed},k,l}$	$\text{m s}^{-1}$	Sedimentationsgeschwindigkeit für das k-te Moment der Mode l,
$V_{\text{Par}}$	$\text{m s}^{-1}$	Partikelgeschwindigkeit
$V_t$	$\text{m s}^{-1}$	unbeschleunigte Fallgeschwindigkeit eines Tropfens
$W_l$		Flüssigwassergehalt

---

griechische Buchstaben

---

$\Psi_i$		Massenmischungsverhältnis der Substanz i (Gasphase)
$\alpha$		empirischer Parameter für die Berechnung der elektrischen Anziehung
$\alpha_{\text{Therm}}$		thermophoretischer Koeffizient
$\beta$	$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$	Koagulationskoeffizient
$\Gamma$		Gammafunktion
$\varepsilon$		Retentionseffizienz
$\lambda(d_p, D_D)$	$\text{s}^{-1}$	Partikelverlustrate infolge des Auswaschens
$\lambda_{\text{air}}$	m	mittlere frei Weglänge in Luft
$\mu_{\text{air}}$	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$	dynamische Viskosität der Luft
$\mu_W$	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$	dynamische Viskosität des Wassers
$\pi$		Kreiszahl
$\rho$	$\text{kg m}^{-3}$	Gesamtdichte feuchter Luft
$\rho^x$	$\text{kg m}^{-3}$	Partialdichte der einzelnen Komponenten der feuchten Luft
$\rho_i$	$\text{kg m}^{-3}$	Partialdichte einer Luftbeimengung i
$\rho_{\text{air}}$	$\text{kg m}^{-3}$	atmosphärische Luftdichte
$\rho_P$	$\text{kg m}^{-3}$	Dichte eines Partikels
$\rho_W$	$\text{kg m}^{-3}$	Dichte von Wasser
$\sigma_{g,l}$		geometrische Standardabweichung des Modes l

---

$\tau_0$	s	Konstante in der Berechnung der atmosphärischen Verweilzeit von Aerosolpartikeln
$\tau_{\text{Par}}$	s	Partikelrelaxationszeit
$\tau_{\text{wet}}$	s	partielle Verweilzeit für die nasse Deposition
$\Omega$	$\text{s}^{-1}$	die konstante Winkelgeschwindigkeit der Erdrotation

---

---

#### Dimensionslose Kennzahlen

---

Eu	Eulerzahl
Kn	Knudsenzahl
Pe	Pecletzahl
Pr	Prandtlzahl
Re	Reynoldszahl
Sc	Partikel-Schmidtzahl
$Sc_w$	Schmidtzahl für den Wasserdampf in Luft
St, $S^*$	Stokeszahl, kritische Stokeszahl



# Abbildungsverzeichnis

2.1	Gegenüberstellung verschiedener Größeneinteilungen atmosphärischer Partikel.....	13
2.2	Schematische Darstellung der mikrophysikalischen Prozesse, die die Eigenschaften des troposphärischen Aerosols bestimmen.....	15
2.3	Berechnete troposphärische Verweilzeit von Aerosolpartikeln mit den in den verschiedenen Größenbereichen dominierenden Verlustprozessen.....	17
2.4	Chemische Zusammensetzung und Massenkonzentration troposphärischer Aerosolpartikel in verschiedenen Regimen.....	18
2.5	Schematische Darstellung der Näherung einer Aerosolpartikelpopulation mittels der modalen Technik unter Verwendung dreier überlagernder Einzelpopulationen und der sektionalen Technik.....	21
3.1	Schematische Darstellung des Modellsystems COSMO-ART .....	28
3.2	Koordinaten des gedrehten COSMO-Gitters mit der geographische Länge (blau) und Breite (rot)im ungedrehten Gitter. ....	41
3.3	Gittervolumen mit der Anordnung der prognostischen Variablen auf einem Arakawa-C/Lorenz Gitter.....	42
3.4	Klemp und Wilhelmson (1978) Algorithmus zur Trennung der langsamen und schnellen Prozesse bei der zeitlichen Integration.....	42
3.5	Der seitliche Antrieb der Simulationen für die Gasphase und Partikelphase im kleinen Modellgebiet bereitgestellt aus simulierten Konzentrationsfeldern eines höher aufgelösten Modelllaufes.....	43
4.1	Schematische Darstellung zur Interpretation der Kollisionseffizienz .....	47

4.2 Kollisionseffizienz $E_{ges}$ als Funktion des Partikelradius für einen Tropfen mit 0.1 mm Durchmesser und einem Tropfen mit 1 mm Durchmesser .....	59
4.3 Kollisionseffizienzen der einzelnen auf die Kollisionseffizienz wirkenden Prozesse nach den Gleichungen 4.8-4.13 als Funktion des Partikeldurchmessers.....	60
4.4 Die von der Thermophorese bestimmte Kollisionseffizienz als Funktion des Partikeldurchmessers für verschiedene Temperaturdifferenzen $\Delta T$ zwischen Tropfenoberfläche und umgebender Luft.....	61
4.5 Die von der Diffusiophorese bestimmte Kollisionseffizienz als Funktion des Partikeldurchmessers für verschiedene relative Feuchten RH und Temperaturdifferenzen $\Delta T$ zwischen Tropfenoberfläche und umgebender Luft.....	61
4.6 Die von der elektrischen Anziehung bestimmte Kollisionseffizienz als Funktion des Partikeldurchmessers für verschiedene Ladungsverteilungen.....	61
4.7 Thermophoretischer Koeffizient als Funktion der Knudsenzahl berechnet nach der Formel von Talbot (4.28).....	67
4.8 Partikelanzahldichteverteilung der Testverteilung.....	74
4.9 Tropfenanzahldichteverteilung berechnet mit verschiedenen Flüssigwassergehalten, Gesamttröpfenanzahldichten und Verteilungsfunktionen.....	76
4.10 Kollisionsvolumen der Niederschlagstropfenverteilungen für die verschiedenen Niederschlagsklassifikationen und Tropfenverteilungsfunktionen.....	77
4.11 Zeitliche Entwicklung der Anzahldichteverteilung der Testaerosolpartikel unter Einfluss des Auswaschprozesses für die verschiedenen Tropfenanzahldichteverteilungen und Niederschlagsklassifikationen.....	78
4.12 Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses der momentanen Gesamtpartikelanzahldichte der einzelnen Moden zur Gesamtpartikelanzahldichte zum Zeitpunkt $t = 0$ .....	79
4.13 Zeitlicher Verlauf des Verhältnisses des momentanen mittleren geometrischen Durchmessers zu jenem zum Zeitpunkt $t = 0$ der jeweiligen Moden.....	80
4.14 Zeitlicher Verlauf der Standardabweichung der einzelnen Moden.....	81
4.15 Zeitlicher Verlauf der Gesamtpartikelanzahl aufsummiert über alle Moden.....	82
4.16 Zeitlicher Verlauf der Partikelverlustrate aufsummiert über alle Moden.....	82

4.17	Zeitlicher Verlauf der Partikelanzahldichteverteilungen der Boxmodellsimulationen A und B.....	83
4.18	Die zeitlichen Verläufe des Verhältnisses der momentanen Gesamtpartikelanzahldichte zur Gesamtpartikelanzahldichte zum Zeitpunkt $t = 0$ sowie der Partikelverlustrate.....	83
4.19:	Zeitliche Verläufe des Verhältnisses der momentanen über alle Moden aufsummierten Partikelanzahldichte zu der Partikelanzahldichte zum Zeitpunkt $t = 0$ .....	86
4.20	Partikelanzahldichteverteilungen des kontinentalen Hintergrundaerosols, des ländlichen Aerosols und des urbanen Aerosols.....	88
4.21	Zeitliche Entwicklung der Partikelanzahldichteverteilung unter Einfluss des Auswaschprozesses (a) kontinentales Hintergrund Aerosol, (b) ländliches Aerosol und (c) urbanes Aerosol.....	89
4.22	Zeitliche Verläufe der Partikelverlustrate und des Verhältnisses der momentanen über alle Moden aufsummierten Partikelanzahldichte zu der Partikelanzahldichte zum Zeitpunkt $t = 0$ .....	90
4.23	Zeitliche Entwicklung der Partikelanzahldichteverteilung der Simulation mit konstanter Standardabweichung.....	93
4.24	Zeitliche Entwicklung der Partikelanzahldichteverteilung der Simulation mit konstanter Standardabweichung und konstantem geometrischen mittleren Durchmesser und der Simulation mit variablen Parametern.....	94
4.25	Orographie der verwendeten Simulationsgebiete, des großskaligen Gebiets und des kleinskaligen Gebietes.....	95
4.26	Emissionen von $\text{SO}_2$ , $\text{NO}_x$ , $\text{NH}_3$ und Rußpartikeln mit $d_p < 1 \mu\text{m}$ .....	96
4.27	Simuliertes Windfeld und Orographie und simuliertes Temperaturfeld am 20.08.2005 um 8:00 UTC in etwa 40 m Höhe über dem Grund.....	97
4.28	Simulierte Massenkonzentrationen von $\text{NO}_x$ und $\text{PM}_{10}$ und Messwerte an der Station Eggenstein-Leopoldshafen des Landesamtes für Umweltschutz Baden-Württemberg für den Zeitraum vom 17.08.2005 bis 20.08.2005.....	98

4.29	Simulierte Gesamtpartikelanzahlkonzentrationsdichte. Die unteren Abbildungen repräsentieren den durch das Auswaschen bewirkten Partikelverlust in % und die akkumulierte Niederschlagsmenge in $\text{kg}/\text{m}^2$ .....	99
4.30	Simulierte Gesamtpartikelmassenkonzentrationsdichte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in etwa 40 m Höhe für den 20.08.2005 um 8:00 UTC. Die unteren Abbildungen zeigen den durch das Auswaschen bewirkten Massenverlust in % und die zwischen 7:00 und 8:00 gefallene Niederschlagsmenge in $\text{kg}/\text{m}^2$ (d).....	101
4.31	Vertikale Verteilungen der Anzahldichte. Die unteren Abbildungen zeigen die vertikalen Verteilungen der Massendichte.....	102
4.32	Zeitlicher Verlauf der bodennahen Partikelmassenkonzentrationen.....	103
4.33	Massenverlust (in %) der beiden Moden im Aitkenpartikelgrößenbereich als Folge des Auswaschens für den 20.08.2005, 8:00 UTC in etwa 40 m Höhe über Grund.....	104
4.34	Massenverlust (in %) der beiden Moden im Akkumulationspartikelgrößenbereich als Folge des Auswaschens für den 20.08.2005, 8:00 UTC in etwa 40 m über Grund.....	104
4.35	Massenverlust (in %) der reinen Rußmode s und der Mode im Grobpartikelgrößenbereich c als Folge des Auswaschens für den 20.08.2005 um 8:00 UTC.....	105
5.1	Horizontale Verteilungen der Partikelextinktionskoeffizienten am 18.08.2005 um 6:00 UTC und am 18.08.2005 um 14:00 UTC.....	111
5.2	Horizontale Verteilungen der Partikelmassenkonzentration aufsummiert über die Moden i, im, j, jm und s am 18.08.2005 um 6:00 UTC und am 18.08.2005 um 14:00 UTC.....	111
5.3	Horizontale Verteilung der Relativen Feuchte am 18.08.2005 um 6:00 UTC und am 18.08.2005 um 14:00 UTC 40 m über Grund.....	112
5.4	Simulierte horizontale Verteilungen für den 19.08.2005 der lokalen Sichtweite nach Koschmieder (1924) um 6:00 UTC und 14:00 UTC sowie die horizontale Verteilung der minimalen Sichtweite nach Riemer (2002) um 6:00 UTC und 14:00 UTC.....	116
5.5	Differenz der minimalen Sichtweite und der lokalen Sichtweite für den 19.08.2005 um 6:00 UTC und 14:00 UTC.....	117

- 
- 5.6 Schematische Darstellung der lokalen Sichtweite  $I_{\text{lok}}$  und der minimalen Sichtweite  $I_{\text{min}}$  für den Fall wenn der Extinktionskoeffizient ein lokales Minimum darstellt und wenn der Extinktionskoeffizient ein lokales Maximum darstellt..... 117
- 5.7 Simulierte Sichtrosen für den Gitterpunkt Karlsruhe am 19.08.2005 um 6:00 UTC und 14:00 UTC..... 118
- 5.8 Zeitlicher Verlauf der simulierten Partikelmasse (schwarz) im Vergleich zu Messungen an der Station Eggenstein-Leopoldshafen des Landesamtes für Umweltschutz Baden-Württemberg und zeitlicher Verlauf der lokalen Sichtweite sowie der minimalen Sichtweite im Vergleich zu Messungen an der DWD Station Karlsruhe..... 119
- 5.9 Verringerung der Gesamtpartikelmassenkonzentration in % in der Simulation mit Auswaschen (links) und (rechts) die Differenz des Extinktionskoeffizienten zwischen Simulation mit Auswaschen und dem Referenzlauf..... 121
- 5.10 Differenz zwischen Simulation mit Auswaschen und dem Referenzlauf der lokalen Sichtweite (links) und der minimalen Sichtweite (rechts)..... 121
- 5.11 Zunahme der lokalen Sichtweite (links) und der minimalen Sichtweite (rechts) in der Simulation mit Auswaschen gegenüber des Referenzlaufes..... 122



# Tabellenverzeichnis

2.1	Jahresgemittelte globale Partikelquellstärken der wichtigsten partikelförmigen Luftbeimengungen.....	14
2.2	Überblick ausgesuchter mesoskaliger und globaler nordamerikanischer und europäischer Ausbreitungsmodelle.....	22
3.1	Übersicht der in $MAD_{SOOT}$ verwendeten Moden mit ihrer chemischen Zusammensetzung, Mischungszustand und den Parametern der die Moden beschreibenden Lognormalverteilungen Mediandurchmesser $d_{gi}$ und Standardabweichung $\sigma_g$ .....	36
4.1	Parameter der einzelnen Moden der Testaerosolanzahldichteverteilung.....	73
4.2	Niederschlagsklassifikation nach Mircea und Stefan (1998).....	74
4.3	Die erstellten Simulationen zur Untersuchung der Sensitivität der Thermophorese, Diffusiophorese und Anziehung infolge der elektrischen Partikel-Tropfen-Ladung auf die die jeweiligen Prozesse bestimmenden Parameter.....	84
4.4	Parameter der Anzahlgrößenverteilungen nach Jaenicke (1998).....	87
4.5	Experimentell ermittelte Verlustraten verschiedener Autoren.....	91
5.1	Verwendete Koeffizienten für die Parametrisierung der Extinktionskoeffizienten der einzelnen Moden (nach Bäumer et. al 2007).....	110
5.2	Mittlere Extinktionskoeffizienten verschiedener Verschmutzungsgrade der Atmosphäre (nach Hess et. al, 1998).....	112



## Literaturverzeichnis

- Ackermann, I.J. (1997). *MADE: Entwicklung und Anwendung eines Aerosol-Dynamikmodells für dreidimensionale Chemie-Transport-Simulationen in der Troposphäre*. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität Köln. Bd. 115.
- Ackermann, I.J., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F.S. Binkowski und U. Shankar (1998). Modal aerosol dynamics model for Europe: Development and first applications. *Atmos. Environ.*, **32**, 2981-2999.
- Ackerman, A.S., O.B. Toon, D.E. Stevens, A.J. Heymsfiel, V. Ramanathan, und E.J. Welton (2000). Reduction of tropical cloudiness by soot. *Science*, **288**, 1042-1047.
- Adam J. R. und R. G. Semonin (1970). Collection efficiencies of raindrops for submicron particulates. *Precipitation Scavenging 1970*, CONF 7006001, 151-160, U.S. Atomic Energy Commission.
- Albritton, D. L., R. T. Watson, S. Solomon, R. F. Hampson und F. Ormond (1991). *Scientific assessment of ozone depletion: 1991*. In World meteorological organisation, Global ozone research and monitoring project –Report, **25**.
- Andreae, M.O. (1995). Climatic effects of changing atmospheric aerosol levels. In *World Survey of Climatology*, edited by A. Henderson-Sellers, 1620-1623, Elsevier, Amsterdam.
- Andronache, C. (2003). Estimated variability of below-cloud aerosol removal by rainfall for observed aerosol size distributions. *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 131–143.
- Andronache, C. (2004). Diffusion and electric charge contributions to below-cloud wet removal of atmospheric ultra-fine aerosol particles. *J. Aerosol Sci.*, **35**, 1467–1482.
- Andronache, C., T. Grönholm, L. Laakso, V. Phillips, und A. Venäläinen (2006). Scavenging of ultrafine particles by rainfall at a boreal site: observations and model estimations. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 4739–4754.
- Baklanov, A. (1988). Numerical Modelling in Mine Aerology, Apatity. USSR Academy of Science, 200 pp. (in Russisch).

- Bangert, M. (2007). Eine Parametrisierung für die Berechnung von Photolysefrequenzen in Chemie-Transport-Modellen. Seminararbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe (TH).
- Bär, M. und K. Nester (1992). Parameterization of trace gas dry deposition velocities for a regional mesoscale diffusion model, *Ann. Geophys.*, **10**, 912-923.
- Bäumer, D., B. Vogel und Ch. Kottmeier (2004). Parameterizing optical properties of soot-containing aerosols. European Aerosol Conference, Budapest. *J. of Aerosol Sci.*, 1195-1196.
- Bäumer, D. und B. Vogel (2007). An unexpected pattern of distinct weekly periodicities in climatological variables in Germany. *Geophys. Res. Lett.*, **34**, L03819, doi:10.1029/2006GL028559.
- Bäumer D., B. Vogel, H. Vogel, R. Rinke und Ch. Kottmeier (2008). Klimawirksamkeit von Rußpartikeln in Baden-Württemberg, BWPlus-Statuskolloquium in Stuttgart, 05./06.03.2008.
- Beekmann, M., A. Kerschbaumer, E. Reimer, R. Stern und D. Möller (2007). PM Measurement Campaign HOVERT in the Greater Berlin area: model evaluation with chemically specified observations for a one year period. *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 55-68.
- Beheng, K.D., und P. Herbert P., (1986). Mathematical studies on the aerosol concentration in drops changing due to particle scavenging and redistribution by coagulation. *Meteorol. Atmos. Phys.*, **35**, 212-219.
- Berge, E. (1990). A Regional Numerical Sulfur Deposition Model Using a Meteorological Model With Explicit Treatment of Clouds. *Tellus*, **42B**, 389-407.
- Bessagnet B., A. Hodzic, R. Vautard, M. Beekmann, S. Cheinet, C. Honoré, C. Liousse und C. Rouil (2004). Aerosol modeling with CHIMERE - preliminary evaluation at the continental scale. *Atmos. Environ.*, **38**, 2803-2817.
- Binkowski, F.S. und U. Shankar (1995). The regional particulate matter model, 1. model description and preliminary results. *J. Geophys. Res.*, **100**, 26191-26209.
- Binkowski, F.S., und S.J. Roselle (2003). Models-3 community multiscale air quality model (CMAQ) aerosol component 1. description. *J. Geophys. Res.*, **108(D6)**, 4183.
- Charlson, R.J., S.E. Schwartz, J.M. Hales, R.D. Cess, J.A. Coakley, J.E. Hansen und D.J. Hofmann (1992). Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Science*, **255**, 423-430.
- Chate, D. M. und T. S. Pranesha (2004). Field studies of scavenging of aerosols by rain events, *J. Aerosol Sci.*, **35**, 695–706.

- Chuang, C.C., J.E. Penner, K.E. Taylor, A.S. Grossman und J.J. Walton (1997). An assessment of the radiative effects of anthropogenic sulphate. *J. Geophys. Res.*, **102 (D3)**, 3761-3778.
- Covert, D. S., A. Wiedensohler, P. Aalto, J. Heintzenberg, P. H. McMurry und C. Leck (1996). Aerosol number size distributions from 3 to 500 nm diameter in the arctic marine boundary layer during summer and autumn. *Tellus*, **48(B)**, 197–212.
- Dabdub, D. L., DeHaan, N. Kumar, F. Lurmann und S. H. Seinfeld (1998). *Computationally efficient acid deposition model for California*. Report Contract **92-304**, California Air Resources Board.
- Dana, M. T. und J. M. Hales (1976). Statistical aspects of the washout of polydisperse aerosols. *Atmos. Environ.*, **10**, 45–50.
- Davenport, H. M. und L. K. Peters (1978) Field studies of atmospheric particulate concentration changes during precipitation. *Atmos. Environ.*, **12**, 997–1008.
- Davis, C. I. (1974). *The ice-nucleating characteristics of various AgI aerosols*. Ph. D. Thesis, Department of Environmental Science, University of Wyoming, Laramie, Wyoming.
- Dentener, F.J. und P.J. Crutzen (1993). Reaction of N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> on tropospheric aerosols: Impact on the global distributions of NO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub>, and OH. *J. Geophys. Res.*, **98**, 7149-7163.
- Dentener F., S. Kinne, T. Bond, O. Boucher, J. Cofala, S. Generoso, P. Ginoux, S. Gong, J. J. Hoelzemann, A. Ito, L. Marelli, J. E. Penner, J.-P. Putaud, C. Textor, M. Schulz, G. R. van der Werf und J. Wilson (2006). Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 prescribed data-sets for AeroCom. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 4321–4344.
- Doms, G., J. Förstner, E. Heise, H.-J. Herzog, M. Raschendorfer, R. Schrodin, T. Reinhardt und G. Vogel (2005). *A description of the non-hydrostatic regional model LM. Part II: physical parameterisation*. Deutscher Wetterdienst, Offenbach, [verfügbar unter: <http://cosmo-model.cscs.ch>].
- Doms, G. und U. Schättler (2002). A description of the nonhydrostatic regional model LM Part I: Dynamics and Numerics. *COSMO Newsletter*, **2**, 225–235.
- Easter, R. C., S. J. Ghan, Y. Zhang, R. D. Saylor, E. G. Chapman, N. S. Laulainen, H. Abdul-Razzak, L. R. Leung, X. Bian und R. A. Zaveri (2004). MIRAGE: Model description and evaluation of aerosols and trace gases. *J. Geophys. Res.*, **109(D2)**, 0210.
- Einstein, A. (1905). Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen. *Ann. d. Physik*. **17**, 549.

- Eldering, A., G. R. Cass und K. C. Moon (1994). An air monitoring network using continuous particle size distribution monitors: connecting pollutant properties to visibility via Mie scattering calculations. *Atmos. Environ.*, **16**, 2733–2749.
- Epstein, P. S. (1929). Zur Theorie des Radiometers. *Z. d. Physik*, **54**, 537-563.
- Fast, J. D., Jr. W. I. Gustafson, R. C. Easter, R. A. Zaveri, J. C. Barnard, E. G. Chapman und G. A. Grell (2006). Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct forcing in an urban area using a new fully-coupled meteorology, chemistry, and aerosol model. *J. Geophys. Res.*, **111**, D21305.
- Fiedler, F. (2000). Photosmog und bodennahe Ozon. In 'Promet, Photosmog I', Vol. 3/4, Deutscher Wetterdienst, S. 88-89.
- Flossmann, A. I., W. D. Hall und H. R. Pruppacher (1985). A theoretical study of the wet removal of atmospheric pollutants. Part I: The redistribution of aerosol particles captured through nucleation and impaction scavenging by growing cloud drops, *J. Atmos. Sci.*, **42** (4), 583–606.
- Friedlander, S.K. (1977). *Smoke, Dust and Haze*. John Wiley and Sons, New York.
- Fuchs N. A. (1964). *The Mechanics of Aerosols*. Macmillan, New York.
- Garland, J. A. und J. B. Rae (1970). An integrating nephelometer for atmospheric studies and visibility warning devices. *J. Sci. Instrum.*, **3**, 275–280.
- Gelbard, F. und J. H. Seinfeld (1980). Simulation of multicomponent aerosol dynamics. *J. Colloid Interface Sci.*, **78**, 541-556.
- Gelbard, F., Y. Tambour und J. H. Seinfeld (1980). Sectional representation for simulating aerosol dynamics. *J. Colloid Interface Sci.*, **76**, 485-501.
- Georgii, H.W. und P. Warneck (1999). *Chemistry of the tropospheric aerosol and of clouds, in: Global aspects of atmospheric chemistry (ed. by Deutsche Bunsen-Gesellschaft für Physikalische Chemie e.V., guest editor R. Zellner)*. Springer, New York.
- Ghan, S. J. (1994). *Encyclopedia of Climate and Weather*. Bd. 1, Kap. Cloud Climate Interactions, S. 152–156. Oxford University Press, New York, Oxford.
- Ghan, S. J., N. S. Laulainen, R. C. Easter, R. Wagener, S. Nemesure, E. G. Chapman, Y. Zhang und L. R. Leung (2001a). Evaluation of aerosol direct radiative forcing in MIRAGE. *J. Geophys. Res.*, **106**, 5295–5316.

- Ghan, S. J., R. C. Easter, J. Hudson und F.-M. Breon (2001b). Evaluation of aerosol indirect radiative forcing in MIRAGE. *J. Geophys. Res.*, **106**, 5317–5334.
- Graedel, T. E. und P. J. Crutzen (1994). *Chemie der Atmosphäre: Bedeutung für Klima und Umwelt*. Spektrum, Akad. Verl., Heidelberg; Berlin; Oxford.
- Greenfield, S. (1957). Rain scavenging of radioactive particulate matter from the atmosphere. *J. Meteorol.*, **14**, 115–125.
- Grell, G. A., S. E. Peckham, R. Schmitz, S. A. McKeen, G. Frost, W. C. Skamarock und B. Eder (2005). Fully coupled “online” chemistry within the WRF model. *Atmos. Environ.*, **39**, 6957–6975.
- Griffing, G.W. (1980). Relations between the Prevailing Visibility, Nephelometer Scattering Coefficient and Sunphotometer Turbidity Coefficient. *Atmos. Environ.*, **14 (5)**, 577-584.
- Grover, S. N., H. R. Pruppacher und A. E. Hamielec (1977). A numerical determination of the efficiency with which spherical aerosol particles collide with spherical water drops due to inertial impaction and phoretic and electric forces. *J. Atmos. Sci.*, **34**, 1655–1663.
- Hand, J. L., S. M. Kreidenweis, D. E. Sherman, J. L. Collett, Jr., S. V. Hering, D. E. Day und W. C. Malm (2002). Aerosol size distributions and visibility estimates during the Big Bend regional aerosol and visibility observational study (BRAVO). *Atmos. Environ.*, **36**, 5043-5055.
- Harrington, D. Y. und S. M. Kreidenweis (1998). Simulation of Sulfate Aerosol Dynamics, I. Model Description. *Atmos. Environ.*, **32**, 1691–1700.
- Harrison, R.M. und R. Van Grieken (Edt.) (1998). *Atmospheric particles*. IUPAC series on analytical and physical chemistry of environmental systems.
- Haywood, J.M. und K.P. Shine (1995). The effect of anthropogenic sulfate and soot aerosol on the clear sky planetary radiation budget. *Geophys. Res. Lett.*, **22 (5)**, 603-606.
- Haywood, J., und O. Boucher (2000). Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. *Reviews of Geophysics*, **38 (4)**, 513-543.
- Heintzenberg, J., K. Müller, W. Birmili, G. Spindler und A. Wiedensohler (1998). Mass-related aerosol properties over the Leipzig Basin. *J. Geophys. Res.*, **103**, 13125-13136.
- Heintzenberg, J., D. C. Covert und R. van Dingenen (2000). Size distribution and chemical composition of marine aerosols: A compilation and review. *Tellus*, **52(B)**, 1104–1122.

- Herbert, F. (1978). A theoretical model to describe the motion of aerosol particles due to the combined action of inertia, Brownian diffusion and phoretic and electric forces. *J. Atm. Sci.*, **35**, 1744–1750.
- Herbert, F., und K. D. Beheng (1986). Scavenging of airborne particles by collision with water drops—model studies on the combined effect of essential microdynamic mechanisms. *Met. Atm. Phys.*, **35**, 201–211.
- Hess, M., P. Koepke und I. Schult (1998). Optical properties of aerosols and clouds: The software package OPAC. *Bull. Amer. Met. Soc.*, **79**, 831-844.
- Hesselberg, T. (1926). Die Gesetze der ausgeglichenen atmosphärischen Bewegungen. *Beitr. Phys. Atmos.*, **12**, 141–160.
- Hinds, C., W. (1982). *Aerosol Technology properties, behavior, and measurement of airborne particles*. Wiley Interscience.
- Hobbs, P.V. (1993). *Aerosol-cloud-climate interactions*. International Geophysics Series, Vol. 54.
- Hoose, C. (2004). Numerische Simulationen zur Ausbreitung von Mineralstaub auf der regionalen Skala. Diplomarbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe (TH).
- Horvath H. und K. E. Noll (1969). The relationship between atmospheric light scattering and visibility. *Atmos. Environ.*, **3**, 543-552.
- Horvath, H. (1995). Size segregated light absorption coefficient of the atmospheric aerosol. *Atmos. Environ.*, **29**, 875-883.
- Horvath, H. (1996). Editorial. *J. Aerosol Science*, **27**, 355-357.
- Houghton, J.T., Y. Ding, D.J. Griggs, M. Noguera, P.J. van der Linden, X. Dai, K. Maskell, und C.A. Johnson (2001). Climate change 2001: The scientific basis, edited by IPCC 2001, pp. 881, Cambridge University Press, Cambridge.
- IPCC (2007). *Climate Change 2007: Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. S.Solomon, D.Qin, M.Manning, Z.Chen, M.Marquis, K. B. Averyt, M. Tignor, und H. L. Miller, eds., (Cambridge University Press, 2007), <http://www.ipcc.ch/>.
- Ito, T. (1993). Size distribution of Antarctic submicron aerosols. *Tellus*, **45(B)**, 145–159.

- Jacobson, M. Z., R. Lu, R. P. Turco und O. B. Toon (1996). Development and application of a new air pollution modeling system. Part I: Gas-phase simulations. *Atmos. Environ.*, **30(B)**, 1939–1963.
- Jacobson, M. Z. (1997a). Development and application of a new air pollution modeling system – II. Aerosol module structure and design. *Atmos. Environ.*, **31**, 131–144.
- Jacobson, M. Z. (1997b). Development and application of a new air pollution modeling system, Part 5 III: Aerosol-phase simulations. *Atmos. Environ.*, **31(A)**, 587–608.
- Jacobson, M. Z. (2000). A physically-based treatment of elemental carbon optics: Implications for global direct forcing of aerosols. *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 217–220.
- Jacobson, M. Z. (2001a). Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols, *Nature*, **409**, 695–697.
- Jacobson, M. Z. (2001b). Global direct radiative forcing due to multicomponent anthropogenic and natural aerosols. *J. Geophys. Res.*, **106**, 1551–1568.
- Jacobson, M. Z.: GATOR-GCMM (2001c). A global- through urban-scale air pollution and weather forecast model 1. Model design and treatment of subgrid soil, vegetation, roads, rooftops, water, sea, ice, and snow. *J. Geophys. Res.*, **106**, 5385–5401.
- Jaenicke, R. (1978). Über die Dynamik atmosphärischer Aitkenteilchen. Ber. Bunsengesellschaft. *Phys. Chem.*, **82**, S.1198–1202.
- Jaenicke, R. (1988). *Aerosol physics and chemistry*. in G. Fischer, Hrsg., 'Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology. Landolt-Börnstein New Series, V: Geophysics and Space Research', Vol. 4b, Springer, Berlin, S. 391- 457.
- Jaenicke, R. (1993). In P. V. Hobbs (Ed.), *Tropospheric aerosols in aerosol-cloud-climate interactions*. San Diego, USA: Academic Press.
- Jakobs, H. J., S. Tilmes, A. Heidegger, K. Nester und G. Smiatek (2002). Short-term ozone forecasting with a network model system during Summer 1999. *J. Atmos. Chem.*, **42**, 23–40.
- Johnson, R.W. (1981). Daytime visibility and nephelometer measurements related to its determination. *Atmos. Environ.*, **15**, 1835–1845.
- Jung, C.H., Y. P. Kim und K. W. Lee (2003). A moment model for simulating raindrop scavenging of aerosols. *J. Aerosol Sci.*, **34**, 1217–1233.
- Junge, C. (1952a). Die Konstitution des atmosphärischen Aerosols. *Ann. Meteorol.*

- Junge, C. (1952b). Gesetzmäßigkeiten in der Größenverteilung atmosphärischer Aerosole über dem Kontinent. Berichte des Deutschen Wetterdiensts US-Zone.
- Kaufman, Y. J., D. Tanre und O. Boucher (2002). A satellite view of aerosols in the climate system, *Nature*, **419**, 6903, 215-223.
- Kalberer, M., D. Paulsen, M. Sax, M. Steinbacher, J. Dommen, A. S. H. Prevot, R. Fisseha, E. Weingartner, V. Frankevich, R. Zenobi und U. Baltensperger (2004). Identification of Polymers as Major Components of Atmospheric Organic Aerosols. *Science*, **303**, 5664, 1659-1662.
- Kessler, E. (1969). On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulations. *Meteorological Monograph* **10(32)**, 84-93.
- Kiehl, J.T. und B.P. Briegleb (1993). The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing, *Science*, **260**, 311-314.
- Kiilsholm, S., A. Rasmussen und J.H. Sorensen (2001). A sensitivity study of the operational surface ozone forecast system DACFOS. *Phys. Chem. Earth*, **26**, 123-127.
- Kim, Y. P. und J. H. Seinfeld (1990). Simulation of multicomponent aerosol condensation by the moving sectional method. *J. Colloid Interface Sci.*, **135**, 185-199.
- Kirkevåg, A., T. Iversen, und A. Dahlback (1999). On radiation effects of black carbon and sulphate aerosols. *Atmos. Environ.*, **33**, 2621-2635.
- Klemp, J. B. and R. Wilhelmson (1978). The simulation of three-dimensional convective storm dynamics. *J. Atmos. Sci.*, **35**, 1070-1096.
- Konovalov, I. B., M. Beekmann, A. Richter und J. P. Burrows (2006). Inverse modelling of the spatial distribution of NO<sub>x</sub> emissions on a continental scale using satellite data. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 1747-1770.
- Koponen, I., A. Virkkula, R. Hillamo, V.-M. Kerminen und M. Kulmala (2002). Number size distribution and concentrations of marine aerosols: Observations during a cruise between the English Channel and the coast of Antarctica. *J. Geophys. Res.*, **107**.
- Koponen, I. K., A. Virkkula, R. Hillamo, V.-M. Kerminen und M. Kulmala (2003). Number size distributions and concentrations of the continental summer aerosols in Queen Maud Land, Antarctica. *J. Geophys. Res.*, **108**, 4587.
- Koschmieder, H. (1924). Theorie der horizontalen Sichtweite. *Beitr. Phys. Frei. Atmos.*, **12**, 33-53.

- Laakso, L., T. Grönholm, U. Rannik, M. Kosmale, V. Fiedler, H. Vehkamäki und M. Kulmala (2003) Ultrafine particle scavenging coefficients calculated from 6 years field measurements, *Atmos. Environ.*, **37**, 3605–3613.
- Larson, S.M. und G. R. Cass (1989). Characteristics of summer midday low-visibility events in the Los Angeles area. *Environ. Science and Technology*, **23**, 281–289.
- Lee, K. W. und B. Y. H. Liu (1982). Theoretical study of aerosol filtration by fibrous filters. *Aerosol Science and Technology*, **1**, 147–161.
- Liao, H., Y.L. Yung und J.H. Seinfeld (1999). Effects of aerosols on tropospheric photolysis rates in clear and cloudy atmospheres. *J. of Geophys. Res.*, **104 (D19)**, 23697-23707.
- Liao, H. und J. H. Seinfeld (2005). Global impacts of gas-phase chemistry-aerosol interactions on direct radiative forcing by anthropogenic aerosols and ozone. *J. Geophys. Res.*, **110(D1)**, 8208.
- Lippmann, M., K. Ito und A. Nadas ad R.T. Burnett (2000). *Association of Particulate Matter Components with Daily Mortality and Morbidity in Urban Populations*. Health Effects Institute, Research Report Nr. 95.
- Lundgren, K. (2006). Numerical Simulation of the Spatial and Temporal Distribution of Sea Salt Particles on the Regional Scale. Diplomarbeit, Department of Meteorology Stockholm University.
- Lurmann, F.W., A.S.Wexler, S.N. Pandis, S. Musarra, N. Kumar und J.H. Seinfeld (1997). Modelling urban aerosols - II. Application to the Californian's south coast air basin. *Atmos. Environ.*, **31(17)**, 2695-2715.
- Manins, P. (2007). Integrated modelling systems in Australia, CSIRO, presentation at the COST-728 30 / NetFAM workshop on Integrated systems of meso-meteorological and chemical transport models, Copenhagen, Denmark, 21–23 May 2007.
- Maria, S. S. und L. M. Russell (2005). Organic and Inorganic Aerosol Below-Cloud Scavenging by Suburban New Jersey Precipitation. *Environ. Sci. Technol.*, **39(13)** 4793–4800.
- Marshall, J. S. und W. M. Palmer (1948). The distribution of raindrop with size. *J. Meteorol.*, **5**, 165–166.
- Maynard, A. D. und R. L. Maynard (2002). A derived association between ambient aerosol surface area and excess mortality using historic time series data. *Atmos. Environ.*, **36**, 5561-5567.

- Memmesheimer, M., E. Friese, A. Ebel, H. J. Jakobs, H. Feldmann, C. Kessler und G. Piekorz (2004). Longterm simulations of particulate matter in Europe on different scales using sequential nesting of a regional model. *Int. J. for Environment and Pollution*, **22**, 108 - 132.
- Meng, Z., D. Dabdub und J.H. Seinfeld (1998). Size-resolved and chemically resolved model of atmospheric aerosol dynamics. *J. Geophys. Res.*, **103**, 3419-3435.
- Mie, G. (1908). Beiträge zur Optik trüber Medien. *Ann. Physik*, **25**, 377-445.
- Mircea, M. und S. Stefan (1998). A theoretical study of the microphysical parameterization of the scavenging coefficient as a function of precipitation type and rate. *Atmos. Environ.*, **32**, 2931-2938.
- Ouimette, J.R. und R.C. Flagan (1982). The extinction coefficient of multicomponent aerosols. *Atmos. Environ.*, **16(10)**, 2405-2419.
- Pilinis, C. und J.H. Seinfeld (1988). Development and evaluation of an Eulerian photochemical gas-aerosol model, *Atmos. Environ.*, **22**, 1985 - 2001.
- Pope, A. und D. Dockery (1996). Epidemiology of chronic health effects: Cross-sectional studies. In R. Wilson und J. Spengler, Hrsg., 'Particles in Our Air: Concentrations and Health Effects', Harvard University Press, Cambridge, MA, S. 149-168.
- Pope, C. A., R. T. Burnett, M. J. Thun, E. E. Calle, D. Krewski, K. Ito und G. D. Thurston, (2002). Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. *J. Amer. Med. Assoc.*, **287**, 1132-1141.
- Pregger, Th., B. Thiruchittampalam und R. Friedrich (2007). *Ermittlung von Emissionsdaten zur Untersuchung der Klimawirksamkeit von Rußpartikeln in Baden-Württemberg*. Schlussbericht im Auftrag des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums Karlsruhe, IER Universität Stuttgart.
- Pruppacher, H.R. und J.D. Klett (1978). *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Reidel, Dordrecht.
- Radke, L. F., P. V. Hobbs und M. W. Eltgroth (1980). Scavenging of aerosol particles by precipitation, *J. Atmos. Sci.*, **19**, 715-722.
- Radke, L. F., J. A. Jr. Coakley und M. D. King (1989). Direct and remote sensing observations of the effects of ships on clouds. *Science* **246**, 1146-1149.

- Raes, F., R. Van Dingenen, E. Vignati, J. Wilson, J.-P. Putaud, J.H. Seinfeld und P. Adams (2000). Formation and cycling of aerosols in the global troposphere. *Atmos. Environ.*, **34**, 4215-4240.
- Rasch, P. J., B. A. Boville und G. P. Brasseur (1995). A three-dimensional general circulation model 15 with coupled chemistry for the middle atmosphere. *J. Geophys. Res.*, **100(D5)**, 9041–9072.
- Rasch, P. J., D. B. Coleman, N. Mahowald, D. L. Williamson, S.-J. Lin, B. A. Boville und P. Hess (2006a). Characteristics of atmospheric transport using three numerical formulations for atmospheric dynamics in a single GCM framework, *J. Climate*, **19**, 2243–2266.
- Rasch, P. J., M. J. Stevens, L. Ricciardulli, A. Dai, A. Negri, R. Wood, B. A. Boville, B. Eaton und J. J. Hack (2006b). Characterization of tropical transient activity in the CAM3 atmospheric hydrologic cycle. *J. Climate*, **19**, 2222–2242.
- Reynolds, O. (1895). On the dynamical theory of incompressible viscous fluids and the determination of the criterion. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, **186**, 123-164.
- Riemer, N. (1997). *NO<sub>y</sub> als Indikator für den photochemischen Zustand der Atmosphäre - Sensitivitätsuntersuchungen mittels numerischer Simulationen*. Diplomarbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe (TH).
- Riemer, N. (2002). *Numerische Simulationen zur Wirkung des Aerosols auf die troposphärische Chemie und die Sichtweite*. Band 29 d. Reihe Wissenschaftliche Berichte des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe (TH).
- Rosenbohm, E., R. Vogt, V. Scheer, O. Nielsen, A. Dreiseidler, G. Baumbach, D. Imhof, U. Baltensperger, J. Fuchs und W. Jaeschke (2005). Particulate size distributions and mass measured at a motorway during the BAB II campaign. *Atmos. Environ.* 5696–5709.
- Rosenfeld, D. (1999), TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall. *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 3105-3108.
- Rosenfeld, D. (2000), Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution, *Science*, **287**, 1793-1796.
- Ruggaber, A., R. Dlugi und T. Nakajima (1994). Modelling radiation quantities and photolysis frequencies in the troposphere. *J. Atmos. Chem.*, **18**, 171-210.

- Ruuskanen, J., Th. Tuch, H. Ten Brink, A. Peters, A. Khlystov, A. Mirme, G. P. A. Kos, B. Brunekreef, H. E. Wichmann, G. Buzorius, M. Vallius, W. G. Kreyling und J. Pekkanen (2001). Concentrations of ultrafine, fine and PM<sub>2.5</sub> particles in three european cities. *Atmos. Env.*, **35**, 3729–3738.
- Saathoff, H., K.-H. Naumann, N. Riemer, S. Kamm, O. Möhler, U. Schurath, H. Vogel und B. Vogel (2001). The loss of NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, NO<sub>3</sub>/N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, and HO<sub>2</sub>/HOONO<sub>2</sub> on soot aerosol: A chamber and modeling study. *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 1957-1960.
- Schaap, M., R. Vautard, R. Bergström, M. van Loon, B. Bessagnet, J. Brandt, J. Christensen, K. Cuvelier, V. Foltescu, A. Graff, J. Jonson, A. Kerschbaumer, M. Krol, J. Langner, P. Roberts, L. Rouil, R. Stern, L. Tarrasón, P. Thunis, E. Vignati, L. White, P. Wind und P. Builtjes (2007a). Evaluation of long term aerosol simulations from seven regional air quality models and their ensemble in the EURODELTA study. *Atmos. Environ.* (eingereicht zur Publikation).
- Schaap M., F. Sauter, R. Timmermans, M. Roemer, G. Velders, J. Beck und P. Builtjes (2008). The LOTOS-EUROS model: description, validation and latest developments, *Int. J. Environ. Poll.*, **32(2)**, 270–290.
- Schell, B. (2000). *Die Behandlung sekundärer organischer Aerosole in einem komplexen Chemie-Transport-Modell*. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität Köln. Bd. 135.
- Seinfeld, J.H. und S.N. Pandis (1998). *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, John Wiley & Sons, Inc.
- Slinn, W. G. N. (1977). Some approximations for the wet and dry removal of particles and gases from the atmosphere. *Water, Air, and Soil Pollut.*, **7**, 513–543.
- Slinn, S.A. und W.G.N Slinn (1980). Prediction for particle deposition on natural waters, *Atmos. Environ.*, **16**, 1785-1794.
- Slinn, W. G. N. (1983). Precipitation scavenging, in *Atmospheric Sciences and Power Production 1979*. In Chap 11. Division of Biomedical Environmental Research, U.S. Department of Energy, Washington, D.C..
- Solomon, S., R. R. Garcia, F. S. Rowland und D. J. Wuebbles (1986). On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, **321**, 6072, 755-8.
- Solomon, S. (1990). Progress towards a quantitative understanding of Antarctic ozone depletion, *Nature*, **347**, 6291, 347-54.

- Stefan, S., A. Sima und M. Dima (1994). Microphysics of precipitation-raindrop size distribution. *Romanian Report in Physics*, **46**, 747.
- Stern, R., R. Yamartino und A. Graff (2006). Analyzing the response of a chemical transport model to emissions reductions utilizing various grid resolutions. 28th ITM on Air Pollution Modelling and its Application. May 15-19, 2006, Leipzig, Germany.
- Stern R., P. Builtjes, M. Schaap, R. Timmermans, R. Vautard, A. Hodzic, M. Memmesheimer, H. Feldmann, E. Renner und R. Wolke (2008). A model inter-comparison study focussing on episodes with elevated PM10 concentrations. *Atmos. Environ.*, (im Druck).
- Stockwell, W.R., P. Middleton und J. S. Chang (1990). The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modelling. *J. Geophys. Res.*, **95**, 16343-16367.
- Sun, Q. und A. S. Wexler (1998a). Modeling urban and regional aerosols near acid neutrality - application to the June 24-25 SCAQS episode. *Atmos. Environ.* **32**, 3533-3545.
- Sun, Q. und A.S. Wexler (1998b). Modeling urban and regional aerosols-condensation and evaporation near acid neutrality. *Atmos. Environ.*, **32**, 3527–3531.
- Talbot, L., R. K. Cheng, R. W. Schefer, D. R. Willis (1980). Thermophoresis in a Heated Boundary Layer. *J. Fluid Mech.*, **101 (4)**, 737-758.
- Turpin, B. J., P. Saxena und E. Andrews (2000). Measuring and simulating particulate organics in the atmosphere: problems and prospects, *Atmos. Environ.*, **34**, 2983-3013.
- Twomey, S. A. (1993). *Aerosol Effects on Climate*. Kap. Radiative Properties of Clouds, S. 275ff. University of Arizona Press.
- Uno, I., H. Amano, S. Emori, K. Kinoshita, I. Matsui und N. Sugimoto (2001). Trans-Pacific yellow sand transport observed in April 1998: A numerical simulation. *J. Geophys. Res.*, **106(D16)**, 18331–18344.
- Uno I., G. R. Carmichael, D. G. Streets, Y. Tang, J. J. Yienger, S. Satake, Z. Wang, J.-H. Woo, S. Guttikunda, M. Uematsu, K. Matsumoto, H. Tanimoto, K. Yoshioka und T. Iida (2003). Regional chemical weather forecasting system CFORS: Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment, *J. Geophys. Res.*, **108(D23)**, 8668.
- Van de Hulst, H.C. (1957). *Light Scattering by Small Particles*. Wiley and Sons, New York.

- Vogel, B., F. Fiedler und H. Vogel (1995). Influence of topography and biogenic volatile organic compounds emission in the state of Baden-Württemberg on ozone concentrations during episodes of high air temperatures. *J. Geophys. Res.*, **100**, 22907-22928.
- Vogel, H., M. Memmesheimer, E. Reimer, P. Winkler und F. Fiedler (2000). Typischer zeitlicher Verlauf von Photosmog-Episoden. In 'Promet, Photosmog I', Vol. 3/4, Deutscher Wetterdienst, S. 112-119.
- Vogel, B., C. Hoose, H. Vogel und Ch. Kottmeier (2006). A model of dust transport applied to the Dead Sea area. *Meteorol. Z.*, **14**, 611–624.
- Vogel, H., B. Vogel, Ch. Kottmeier (2006). Modelling of Pollen Dispersion with a Weather Forecast Modelsystem. Proceedings of 28<sup>th</sup> NATO/CCMS Int. Meeting on Air Pollution Modelling and its Application, Leipzig, 2006.
- Vogel, H. (2007). LM-ART-aerosols and reactive trace gases within LM, presentation at the COST728/NetFAM workshop on Integrated systems of meso-meteorological and chemical transport models, Copenhagen, Denmark, 21–23 May, 2007.
- Waldmann L. Z. und K. H. Schmidt (1966). *Thermophoresis and diffusiophoresis of aerosols: Aerosol Science*. Academic Press, New York.
- Wang, P. K. und H. R. Pruppacher (1977). An experimental determination of the efficiency with which aerosol particles are collected by water drops in subsaturated air. *J. Atmos. Sci.*, **34**, 1664–1669.
- Weber E. (1969). Present state and aim of basic research in wet scrubbers. *Staubreinhaltung der Luft*, **29**, 12-18.
- Wexler, A.S., F.W. Lurmann und J.H. Seinfeld (1994). Modelling urban aerosols - I. model development, *Atmos. Environ.* **28(3)**, 531-546.
- Whitby, K.T. und G.M. Sverdrup (1973). California aerosols: Their physical and chemical characteristics, *Adv. Environ. Sci. Technol.* **10**, 477.
- Whitby, K.T. (1978). The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmos. Environ.* **12**, 135-159.
- Whitby, E.R., P.H. McMurray, U. Shankar und F.S. Binkowski (1991). *Modal Aerosol Dynamics Modeling*. Technical Report 600/3-91/020, (NTIS PB91-161729/AS Natl. Tech. Inf. Serv. Springfield, Va.), Atmos. Res. and Exposure Assess. Lab. U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C.

- Wichmann, H.-E., C. Spix, T. Tuch, G. Wölke, A. Peters, J. Heinrich, W.G. Kreyling und J. Heyder (2000). *Daily mortality and fine and ultrafine particles in Erfurt, Germany. Part I: Role of particle number and particle mass*. Health Effects Institute, Research Report Nr. 98.
- Wilck, M. (1998). *Modal modelling of multicomponent aerosols*. University of Leipzig, Ph. D. Thesis, 149pp.
- Willis, P. T. (1984). Functional fits to some observed drop size distributions and parameterization of rain. *J. Atmos. Science*, **41**, 1648.
- Winkler, P. (2000). *Verteilung und Chemie des atmosphärischen Aerosols*. in R. Guderian und Günter Gunkel, Hrsg., 'Handbuch der Umweltveränderungen und Ökotoxikologie - Atmosphäre', Vol. 1B, Springer, Berlin, S. 1 - 145.
- Wolke, R., O. Knoth, O. Hellmuth, W. Schröder und E. Renner (2004a). The parallel model system LM–MUSCAT for chemistry-transport simulations: Coupling scheme, parallelization and applications. *Parallel Computing: Software Technology, Algorithms, Architectures, and Applications*. Elsevier, 363- 370.
- Wolke, R., O. Hellmuth, O. Knoth, W. Schröder, B. Heinrich und E. Renner (2004b). The chemistry-transport modeling system LM–MUSCAT: Description and CITYDELTA applications. *Air Pollution Modeling and its Application*, **16**, 427-439.
- World Meteorological Organization (1971). Guide to Meteorological Instrument and Observing Practices.
- Yin, Y., S. Wurzler, Z. Levin, und T.G. Reisin (2002). Interaction of mineral dust particles and clouds: Effects on precipitation and cloud optical properties. *J. Geophys. Res.*, **107 (D23)**, 4724.
- Yli-Tuomia, T., P. Aarnioa, L. Pirjola, R. Hillamo und M. Jantunena (2005). Emissions of fine particles, NO<sub>x</sub>, and CO from on-road vehicles in Finland. *Atmos. Environ.*, **39**, 6696–6706.
- Yuskiewicz, B. A., D. Orsini, F. Stratmann, M. Wendisch, A. Wiedensohler, J. Heintzenberg, B. Martinsson, G. Frank, W. Wobrock, und D. Schell (1998). Changes in submicrometer particle distributions and light scattering during haze and fog events in a highly polluted environment. *Contr. Atmos. Phys.*, **71**, 33-45.
- Zhang, Y., R. C. Easter, S. J. Ghan und H. Abdul-Razzak (2002). Impact of aerosol size representation on modeling aerosol-cloud interactions. *J. Geophys. Res.*, **107**, 4558.

Zhang, Y., B. Pun, K. Vijayaraghavan, S.-Y. Wu, C. Seigneur, S. Pandis, M. Jacobson, A. Nenes und J. H. Seinfeld (2004). Development and application of the model for aerosol dynamics, reaction, ionization and dissolution (MADRID). *J. Geophys. Res.*, **109**, D01202,

Zhang, Y. (2008). Online Coupled Meteorology and Chemistry models: History, Current Status, and Outlook. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **8**, 1833–1912.

## **Danke!**

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums Karlsruhe und der Universität Karlsruhe im Rahmen einer Doktorandenstelle der Universität Karlsruhe erstellt.

An dieser Stelle bedanke ich mich herzlich bei allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Herrn Prof. Dr. Christoph Kottmeier danke ich für die interessante Themenstellung und die kritische Korrektur dieser Arbeit. Frau Prof. Dr. Sarah Jones danke ich für die Übernahme des Korreferats.

Ganz besonders möchte ich mich bei Herrn Dr. Bernhard Vogel und Frau Dr. Heike Vogel für ihre hervorragende Unterstützung bedanken, die diese Arbeit erst ermöglichte. Ihre Anregungen, ihre konstruktive Kritik und ihre Motivation waren in jeder Phase meiner Promotion von großem Wert. Danke für die herzliche Aufnahme bei Euch.

Herrn Dr. Dominique Bäumer möchte ich für die ungezählten netten Stunden im gemeinsamen Büro bedanken. Durch dich ist unser Büro für mich ein zweites Zuhause geworden. Danke an Frau Kristina Lundgren für die stetige Sonne in unserem Büro. Ich weiß nun das es mehr als IKEA und Knäckebrötchen in Schweden gibt. Ihr beide habt dafür gesorgt, dass ich stets mit einem Lächeln im Gesicht morgens auf mein Rad gestiegen bin.

Danke an Frau Tanja Stanelle für deine Hilfe und deinen Beistand vor allem in der trüben Endphase. Danke dir für deine Fahrdienste, wenn mal wieder die Motivation das Rad zu besteigen einer kurzen Nacht zum Opfer fiel.

Danke an Frau Gabi Klinck für deine Hilfe mit dem Komputers und das immer und immer wieder neu einstellen meiner Passwörter.

Danke an all euch fleißige Helfer und all euch immer diskussionsbereiten Kollegen, Herr Dr. Winfried Straub, Herr Dr. Andreas Nowak, Herr Danny Daniel, Herr Max Bangert, Herr Tobias Tröndle, Herr Dr. Leo Ganter, Herr Dr. Hans Jürgen Panitz und Herr Dr. Christoph Popp.

DANKE an meine Familie für die bedingungslose Unterstützung, für die Freiheit meinen eigenen Weg gehen zu dürfen und dafür, dass ihr immer an mich geglaubt habt. Danke euch für die viele Hilfe in allen Lebenslagen.

Danke an meine Mutter Frau Maritta Rinke für die vielen schönen Ostpakete, die dafür gesorgt haben, dass die Kaffeevorräte im Büro nie erschöpft waren.

Danke an meinen Vater Herr Dr. Bernd Rinke dafür, dass du mich immer unterstützt hast, für deine Hilfe, die Licht in das Chaos der Wörter dieser Arbeit brachte.

Dank dir mein liebes Schwesterherz Ilka Rinke. Für deinen unendlichen Beistand, dein unermüdliches immer und immer wieder Lesen meiner Arbeit. SCHAKKA

Danke an meine Großeltern Frau Erika Lindner, Frau Hilda Rinke, Herrn Paul Lindner und Herrn Kurt Rinke dafür, dass ihr immer hinter mir standet und mich immer unterstützt habt.

Diese Arbeit möchte ich einem ganz besonderen Menschen in meinem Leben widmen meinem Großvater Kurt Rinke, der leider den Abschluss meiner Dissertation nicht mehr miterleben durfte.