

Einfluss von biologischen Aerosolpartikeln auf Wolken – Simulationen auf regionaler Skala

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN
von der Fakultät für Physik des
Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte
DISSERTATION
von

Dipl.-Met. Matthias Hummel
aus
Bergisch Gladbach

Tag der mündlichen Prüfung:
Referent:
Korreferent:

25.04.2014
Prof. Dr. Corinna Hoose
Prof. Dr. Thomas Leisner

In the midst of the word he was trying to say,
In the midst of his laughter and glee,
He had softly and suddenly vanished away –
For the Snark was a Boojum, you see.

aus „The Hunting of the Snark (An Agony in 8 Fits)“
von Lewis Carroll

Zusammenfassung

Die Eigenschaften von Wolken in der Erdatmosphäre und damit ihre Rolle für das Klima werden maßgeblich durch die Bildung von Eisparkeln beeinflusst. Einige primäre biologische Aerosolpartikel (PBAP) – z.B. bestimmte Bakterien, Pilzsporen oder Pollen – können als Eiskeim (IN) fungieren und so zur heterogenen Eisnukleation in Mischphasenwolken beitragen. Herausforderungen bei der Abschätzung des Einflusses von PBAP auf Wolken sind lokal und saisonal sehr variable PBAP-Konzentrationen sowie stark variierende Eigenschaften der PBAP in Bezug auf Partikelgröße und Eisaktivität. Darüber hinaus bringen voneinander abweichende PBAP-Messmethoden Unsicherheiten in der Anzahlkonzentration hervor.

Die vorliegende Arbeit quantifiziert die Konzentrationen von verschiedenen PBAP und den Anteil der daraus gebildeten biologischen Eiskeime (BIN) mit Modellsimulationen auf regionaler Skala. Über das Immersionsgefrieren können BIN die Wolkenmikrophysik beeinflussen. Das verwendete Atmosphärenmodell COSMO-ART wird von Beobachtungsdaten angetrieben, um die dynamische Atmosphärenströmung zu simulieren. Anhand der Wechselwirkung mit der Strömung ist eine zeitliche Entwicklung von Hydrometeoren und Aerosolpartikeln gegeben. Die vorliegende Arbeit erweitert das Modell um die Ausbreitung von PBAP (Bakterien, Pilzsporen sowie Birken- und Kiefernpollen) sowie organisch behaftetem Bodestaub ausgehend von detaillierten Emissionsparametrisierungen. Für diese PBAP sind temperaturabhängige, IN-spezifische Parametrisierungen nach einem singulären, deterministischen Ansatz dem Modell hinzugefügt, die von größtenteils kooperativ erfolgten Laborstudien mit unterschiedlichen BIN sowie Bodestaub-IN abgeleitet wurden.

Mit einer mittleren simulierten Anzahlkonzentration von $\sim 10 L^{-1}$ tragen PBAP nur geringfügig zur Gesamtaerosolbelastung bei. Der Beitrag von Pollen ($0,04 L^{-1}$) und Bakterien ($3,5 L^{-1}$) zur PBAP-Konzentration liegt im Vergleich zu Literaturangaben in derselben Größenordnung. Pilzsporen ($6,7 L^{-1}$) zeigen in einem direkten Vergleich eine gute Übereinstimmung zu fluoreszierenden biologischen Aerosolpartikeln (FBAP). Anhand der gemessenen FBAP-Konzentration wurde eine spezifischere Emissionsparametrisierung für Pilzsporen abgeleitet. Auf einem Modellgebiet für Westeuropa beträgt der Massenanteil von Pilzsporen an der trockenen Gesamtaerosolmasse 15% innerhalb eines exemplarischen, einwöchigen Zeitraums.

Die vertikale Ausbreitung der PBAP, die bisher lediglich stichprobenartig gemessen und nur auf kleinräumiger oder globaler Skala simuliert wurde, zeigt eine Abnahme der mittleren Anzahlkonzentration um zwei bis drei Größenordnungen zwischen Erdoberfläche und Tropopause (bei $\sim 10 km$ Höhe). Die Bodestaubanzahlkonzentration ist in der untersten Modellschicht in vergleichbarer Größenordnung wie die von PBAP, nimmt mit der Höhe allerdings weniger stark ab.

Die mittlere Anzahlkonzentration der in Wolken enthaltenen BIN zeigt in einem Vertikalprofil zwei unterschiedliche Bereiche. Unterhalb des durch Bakterien-IN dominierten Maximums in 2 km Höhe ist die IN-Konzentration durch die Temperatur limitiert. Oberhalb davon bedingt die mit der Höhe absinkende PBAP-Konzentration den Verlauf. In etwa 2 km Höhe, bei einer mittleren Temperatur von -9°C beträgt die mittlere BIN-Konzentration $\sim 10^{-4}\text{ L}^{-1}$. Im Einzelfall können bei dieser Temperatur IN-Konzentrationen von $\sim 10^{-2}\text{ L}^{-1}$ auftreten. Über das gesamte Temperaturspektrum der heterogenen Eisnukleation (von -38°C bis -2°C) hinweg sind jeweils unterschiedliche BIN eisaktiv und dominieren abwechselnd die Gesamtkonzentration der BIN. Die mittleren, offline berechneten Konzentrationen von Bakterien-IN befinden sich innerhalb eines Größenbereichs von Messungen eisaktiver Bakterien im Wolkenwasser. Diagnostische Bodenstaub-IN haben bei -9°C ähnliche Konzentrationen wie Bakterien-IN, sind bei kälteren Temperaturen jedoch nicht durch ihre Partikelkonzentration limitiert. Bei -30°C haben diagnostische Bodenstaub-IN eine Konzentration von $>10\text{ L}^{-1}$.

Durch einen Vergleich von zwei Szenarien – (1) ausschließlich mit Mineralstaub-IN (mit konstanter Konzentration von 100 L^{-1} , angepasst an atmosphärische Hintergrundbedingungen) und (2) zusätzlich zu Szenario 1 mit BIN – wird der Einfluss von BIN auf Wolken bestimmt. Bis 4 km Höhe bewirken BIN eine mittlere Zunahme der Eispartikelkonzentration ($\Delta N_i = 0,24\text{ L}^{-1}$ bei $0,5\text{ km}$ Höhe). Darüber hinaus setzt ein indirekter Aerosoleffekt ein, bei dem BIN die Vereisung der Wolke in unteren Modellschichten vorantreiben und so weniger Flüssigwasser oberhalb von 4 km Höhe verfügbar ist ($\Delta N_c = -50\text{ L}^{-1}$ bei 2 km Höhe; $\Delta N_i = -0,08\text{ L}^{-1}$ bei 6 km Höhe). Somit ist mit der vorliegenden Arbeit gezeigt, dass BIN die Eigenschaften von Wolken auf regionaler Skala über verschiedene Effekte mit lokal und zeitlich unterschiedlicher Effektivität beeinflussen. Die gezeigten Ergebnisse sind allerdings für den verwendeten Zeitraum und Ausschnitt der Simulation spezifisch und können je nach meteorologischen Bedingungen deutlich abweichen.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1.	Atmosphärische Relevanz von primären biologischen Aerosolpartikeln	1
1.2.	Eigenschaften biologischer Aerosolpartikel	3
1.3.	Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen	4
1.4.	Der Einfluss von biologischen Aerosolpartikeln auf Wolken	5
1.5.	Überblick über Messungen und Modellstudien von biologischen Aerosolpartikeln und Eiskeimen	7
1.5.1.	<i>Messmethoden für biologische Aerosolpartikel</i>	7
1.5.2.	<i>Bisherige Simulationen zur Emission von biologischen Aerosolpartikeln</i>	9
1.5.3.	<i>Bisherige Modellstudien zum Einfluss von biologischen Eiskeimen auf Wolken und Niederschlag</i>	10
1.6.	Zielsetzung der vorliegenden Arbeit	11
2	Das regionale atmosphärische Modellsystem COSMO-ART mit der Erweiterung zur Simulation von primären biologischen Aerosolpartikeln	15
2.1.	Beschreibung der zugrundeliegenden Modellstruktur	15
2.1.1.	<i>Strömungsmodell</i>	15
2.1.2.	<i>Koordinatensystem</i>	18
2.1.3.	<i>Anfangs- und Randdaten</i>	20
2.2.	Das Zwei-Momenten-Schema der Wolkenmikrophysik	21
2.3.	Das gekoppelte Modul zur Ausbreitung von Aerosolen und reaktiven Spurengasen (ART)	24
2.3.1.	<i>Verteilung von partikelhaltigen und gasförmigen Komponenten</i>	24
2.3.2.	<i>Anpassung des Staubmoduls zur Simulation von Bodenstaub mit organischen Komponenten</i>	26
2.4.	Die Modellerweiterung zur Ausbreitung von biologischen Aerosolpartikeln	33
2.4.1.	<i>Atmosphärische Ausbreitung</i>	33
2.4.2.	<i>Emissionsparametrisierung für Pollen</i>	35
2.4.3.	<i>Emissionsparametrisierung für Bakterien</i>	37
2.4.4.	<i>Emissionsparametrisierung für Pilzsporen</i>	38
3	Eigenschaften von biologischen Aerosolpartikeln hinsichtlich der heterogenen Eisnukleation	43
3.1.	Allgemeine Beschreibung der atmosphärischen Eisnukleation	43
3.2.	Beschreibung von Laborergebnissen	44

3.3.	Überblick über in anderen Modellen verwendete Parametrisierungen zur Eiskondensation von biologischen Aerosolpartikeln	50
3.4.	Der singuläre Ansatz für die Parametrisierung von biologischen Aerosolpartikeln	52
3.5.	Anwendung der Parametrisierung auf Bodenstaubpartikel	55
4	Die resultierenden Bio-Aerosol Konzentrationen	57
4.1.	Beschreibung des verwendeten Modellsetups	57
4.2.	Analyse der Emissionsflüsse	58
4.3.	Konzentrationen in der untersten Modellschicht im Vergleich zu Messungen oder Simulationen auf globaler Skala	61
4.3.1.	<i>Pollen</i>	61
4.3.2.	<i>Bakterien</i>	64
4.3.3.	<i>Pilzsporen</i>	66
4.4.	Vertikale Ausbreitung von biologischen Aerosolpartikeln	77
4.5.	Ausbreitung von Bodenstaubpartikeln	83
4.6.	Zusammenführung der Ergebnisse	88
5	Modellsimulationen zur Wirkung biologischer Eiskeime unter atmosphärischen Bedingungen	91
5.1.	Allgemeine Beschreibung der Simulationen	91
5.2.	Diagnostische biologische Eiskeime	93
5.2.1.	<i>Vertikale Ausbreitung</i>	93
5.2.2.	<i>Temperaturabhängigkeit</i>	94
5.2.3.	<i>Horizontale Verteilung</i>	98
5.3.	Vergleich der simulierten Eiskeimkonzentrationen mit Messungen	103
5.4.	Diagnostische Eiskeime von Bodenstaubpartikeln	105
5.5.	Eispartikelkonzentration für verschiedene Szenarien	108
5.6.	Zusammenführung der Ergebnisse	118
6	Diskussion und Ausblick	121
A	Literaturverzeichnis	127
B	Symbolverzeichnis	139
	Danksagung	144

1 Einleitung

1.1. Atmosphärische Relevanz von primären biologischen Aerosolpartikeln

Die Erdatmosphäre, eine Mischung aus Gasen und suspendierten flüssigen und festen Partikeln, ist durch den Austausch von Masse und Energie in ständiger Wechselwirkung mit der Erdoberfläche. Der Austausch besteht zum Teil aus Emission und Deposition von festen, unlöslichen Partikeln, unter anderem biologischen Ursprungs. Dass hierzu ebenso luftgetragene, lebensfähige Mikroorganismen zählen ist ein Indiz für die Atmosphäre als Lebensraum (Morris et al., 2011). Mikroorganismen (z.B. Bakterien) sowie Keimzellen von luftbestäubten Pflanzen (Pollen) und Pilzen (Sporen) können durch atmosphärischen Transport in andere Regionen deponieren. Durch Interaktion mit der Biosphäre können biologische Aktivitäten ausgelöst und so weitere Emissionen biologischer Primärpartikel hervorgerufen werden (Després et al., 2012). Nach Regen kann eine erhöhte Konzentration biologischer Partikel in der Atmosphäre auftreten (Huffman et al., 2013), da sie vermutlich durch Regentropfen von Blattoberflächen abplatzen. Zusätzlich zum Einfluss durch Niederschlag können im Labor beispielsweise für Kiefernpollen die Bedingungen nachgestellt werden, wenn diese in atmosphärischen Wolkentropfen enthalten sind. Selbst wenn der Tropfen innerhalb von Mischphasenwolken gefriert, besitzen Pollen die Fähigkeit, anschließend im Erdboden zu keimen. Dadurch können sie sich über den atmosphärischen Wasserkreislauf verbreiten (Williams, 2013). Schematisch dargestellt zeigt Abbildung 1-1 einen möglichen atmosphärischen Kreislauf von biologischen Primärpartikeln, wobei insbesondere deren Interaktion mit Wolken im Folgenden genauer erläutert und im Rahmen der vorliegenden Arbeit thematisiert wird.

Die Interaktion der biologischen Partikel mit den chemischen und physikalischen Prozessen der Atmosphäre ist für deren Wolkenbeeinflussung, das Themengebiet der vorliegenden Arbeit, von zentraler Bedeutung. Besonderes Interesse gilt dabei dem Einfluss auf die Wolkenmikrophysik, da einige biologische Primärpartikel den Phasenübergang von Wasserdampf zu Tropfen oder von Flüssigwasser zu Eis in einem aufsteigenden Luftpaket früher als andere Partikel einleiten können (Möhler et al., 2007). Die Analyse von Wolkenwasser-, Schnee- und Regenproben unter atmosphärischen Hintergrundbedingungen bestätigt die Existenz von Bakterien und Pilzsporen innerhalb von Wolken (Bauer et al., 2002). Zusammen mit einigen anderen atmosphärischen Aerosolpartikeln können manche Bakterien als Eiskeime wirken, welche den Gefriervorgang von Wolkentropfen initiieren. Einige der eisaktiven Bakterien leiten die Eisnukleation bei besonders hohen Temperaturen unter 0°C ein und stellen damit nach bisherigem Kenntnisstand die eisaktivsten Partikel in der Atmosphäre dar (Hoose und Möhler, 2012). Diese einzigartige Eigenschaft ermöglicht es

beispielsweise, industriell hergestellte Bakterien dieser Art als künstlichen Eiskeim einzusetzen, und so Wolken zur gezielten Veränderung der Wolkencharakteristika zu impfen (Ward und DeMott, 1989). Einen Hinweis auf den natürlichen Einfluss von biologischen Partikeln auf Wolken zeigt die Zusammensetzung von Eiskeimen bei Messungen im Amazonasgebiet. Deren feste Rückstände bestehen hauptsächlich aus Mineralstaub und kohlenstoffhaltigen Partikeln, wobei letztere von biologischen Partikeln dominiert sind (Prenni et al., 2009). Die *in-situ* Detektion von Eiskristallen mittels flugzeuggetragener Massenspektroskopie zeigt, dass der Anteil von biologischen Partikeln an den festen Rückständen der Eiskristalle im Einzelfall einer orografischen Wolke ein Drittel betragen kann (Pratt et al., 2009). Aus einer Vielzahl von *in-situ* Messungen in Cirrus-Wolken geht hervor, dass biologische Partikel einen vernachlässigbar kleinen Anteil der Eiskristallresiduen ausmachen. Der gezeigte Unterschied zu Messungen in Bodennähe oder unterer Troposphäre verdeutlicht, dass biologische Partikel zuvor in geringerer Höhe durch trockene oder feuchte Deposition oder mittels heterogenen Eisnukleation aus der Atmosphäre entfernt werden und somit das Cirrus-Wolkenniveau nicht als trockene Partikel erreichen (Cziczo et al., 2013).

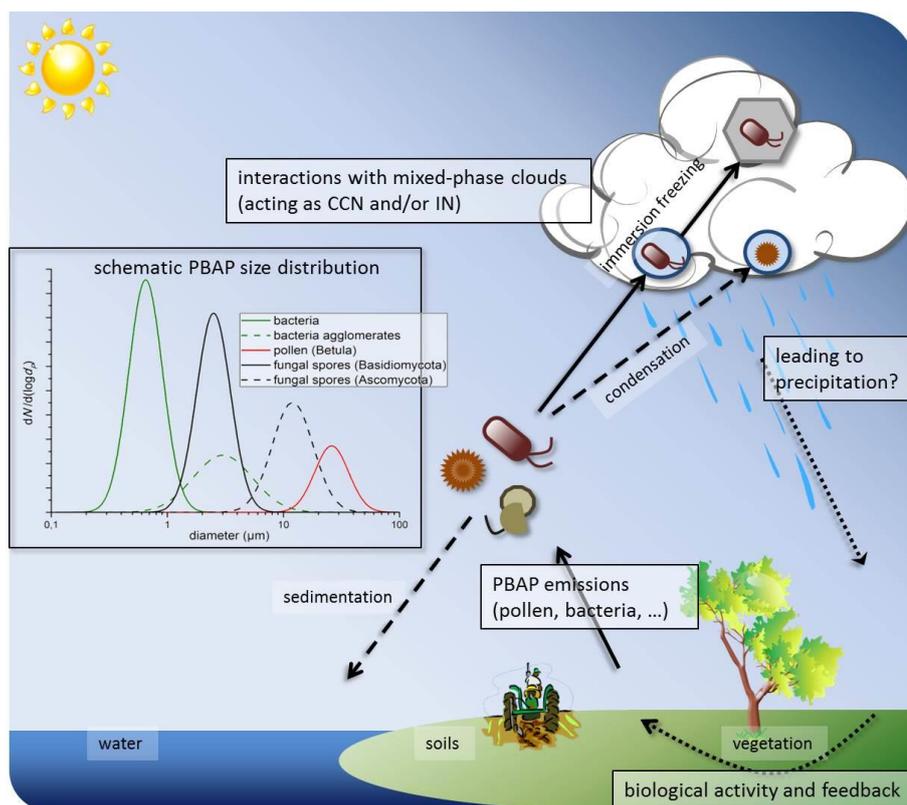


Abbildung 1-1: Schematische Darstellung möglicher atmosphärischer Prozesse von biologischen Primärpartikeln mit dem Fokus auf Wolkenwechselwirkungen und einer potentiellen Rückkopplung durch Beeinflussung der Biosphäre aufgrund von biologisch induziertem Niederschlag (verändert nach Després et al., 2012). Zusätzlich ist eine schematische Größenverteilung biologischer Primärpartikel skizziert (Größenbereich nach Jones und Harrison, 2004; ungefähre Größenordnung der atmosphärischen Konzentration nach Després et al., 2012).

1.2. Eigenschaften biologischer Aerosolpartikel

Das atmosphärische Aerosol ist eine Suspension von in der Luft schwebenden, polydispersen Partikeln unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung. Die Variation im Partikeldurchmesser umfasst mehrere Größenordnungen und reicht von wenigen Nanometern bis zu einigen zehn Mikrometern, unterteilt in drei Moden: (i) die Nukleationsmode (5 - 100 nm), (ii) die Akkumulationsmode (0,1 - 2 µm) und (iii) die Grobpartikelmode (>2 µm) (John, 2011). Partikel in der Nukleationsmode entstehen durch Kondensation von photochemisch oxidierten, flüchtigen, organischen Vorläufergasen auf einem Cluster. Die Cluster sind hauptsächlich aus Sulfat, Ammonium, Nitrat und organischen Verbindungen zusammengesetzt und bilden sekundäre Aerosolpartikel. Durch Akkumulation tragen Nukleationspartikel zur nächst größeren Partikelmode bei.

Zu der mittleren und großen Mode tragen insbesondere Primärpartikel bei, die direkt in die Atmosphäre emittiert werden. Sie beinhalten hauptsächlich Mineralstaub, Ruß und Seesalz, aber auch luftgetragene Mikroorganismen und vergleichbare Partikel biologischen Ursprungs, bezeichnet als primäre biologische Aerosolpartikel (PBAP). Die Gruppierung unter dem Begriff „PBAP“ beinhaltet alle lebenden und abgestorbenen Mikroorganismen (z.B. Bakterien, Viren, Algen, Flechten) sowie Reproduktionseinheiten, Aussonderungen, Bestandteile und Bruchstücke von biologischen Organismen (z.B. Pollen, Pilzsporen, Pflanzenfragmente, Tiergewebe) (Després et al., 2012). PBAP stellen eine Teilmenge innerhalb der gesamten atmosphärischen Aerosolpartikel dar. Ihr Anteil an der räumlich und zeitlich variierenden Aerosolzusammensetzung ist nicht genau bekannt und wird in globalen, jährlich gemittelten Abschätzungen möglicherweise unterschätzt (Jaenicke et al., 2007).

Einige PBAP (z.B. Pollen) zählen zu den größten Partikeln in der Atmosphäre. Zwischen den verschiedenen Arten von PBAP besteht ein deutlicher Größenunterschied, der bei Messungen der Partikelgrößenverteilung zur Differenzierung genutzt werden kann. Typische Durchmesser von PBAP reichen von 0,3 µm für Viren, über die Größe von einzelnen Bakterien (Abbildung 1-2a), Bakterienagglomeraten (0,25 - 8 µm) und Pilzsporen (1 - 30 µm, Abbildung 1-2b) bis hin zu 17 µm bis 35 µm für luftgetragene Pollen (Abbildung 1-2c) (Jones und Harrison, 2004). Schematisch dargestellt und Abbildung 1-1 hinzugefügt ist eine mögliche Größenverteilung von häufig vorkommenden PBAP in den genannten Bereichen mit ungefähren Größenordnungen nach Després et al. (2012).

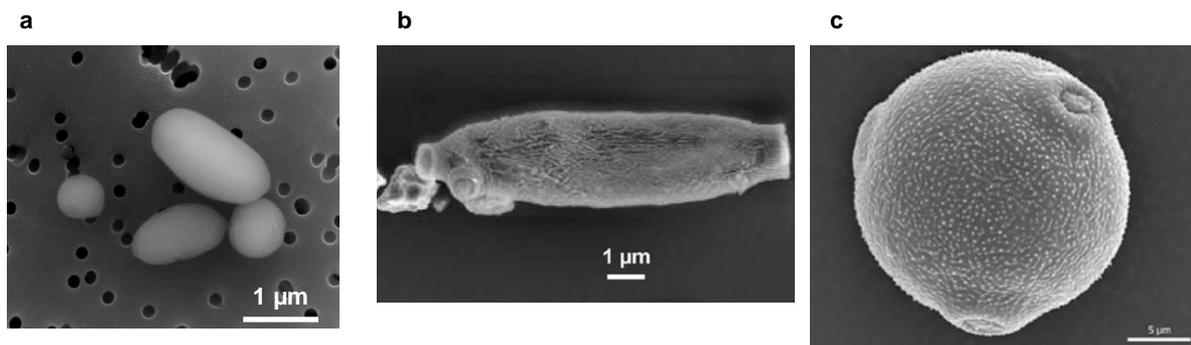


Abbildung 1-2: Aufnahmen von PBAP mittels Elektronenmikroskopie (SEM): (a) Bakterien der Art *Pseudomonas syringae* des Stammes 32b74 (Schaupp, 2013), (b) Pilzsporen der Art *Cladosporium sp.* (Wittmaack et al., 2005) und (c) Birkenpollen (Fischer, 2011).

Aufgrund der Größen- und damit auch Massenunterschiede zwischen Aerosolpartikeln wirken unterschiedliche äußere Einflüsse wie hydrodynamische Kräfte, die Trägheitskraft oder die gravitationsbedingte Sedimentation verschieden intensiv auf die Bewegung eines Partikels. Durch die daraus resultierende Relativbewegung der Partikel zueinander oder durch eine unterschiedliche Brownsche Bewegung können Partikel miteinander koagulieren. Dabei ist ein Abprallen der Kollisionspartikel voneinander wegen der geringen kinetischen Energie unwahrscheinlich (Seinfeld und Pandis, 2006). PBAP haben meist eine geringe Anzahlkonzentration und stoßen daher vernachlässigbar selten untereinander zusammen. Große PBAP könnten allerdings als Kollektor dienen und deutlich kleinere Partikel einsammeln. PBAP werden maßgeblich durch Sedimentation und Deposition aus der Atmosphäre entfernt. So besitzt ein Partikel mit einem Radius von $10 \mu\text{m}$ bedingt durch Sedimentation eine mittlere atmosphärische Lebensdauer von einem Tag (Jaenicke, 1978).

1.3. Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen

Wolkentropfen entstehen primär mittels Kondensation von Wasserdampf auf der Oberfläche von Aerosolpartikeln bei wasserübersättigten Umgebungsbedingungen. Einige Aerosolpartikel wirken als besonders effektiver Wolkenkondensationskeim (cloud condensation nuclei, CCN) und werden, verglichen mit weniger effektiven Partikeln, bei relativ geringer Wasserübersättigung zu Wolkentropfen aktiviert. Dabei ist ausschlaggebend, ob die Übersättigung einen aerosolspezifischen Schwellenwert erreicht, bei dem der CCN einen kritischen Radius erreicht hat und zu einem Tropfen aktiviert wird. Partikel wachsen daraufhin mittels Wasserdampfkondensation zu Wolkentropfen an, während der Wasserdampfdruck in der unmittelbaren Umgebung des Partikels sinkt. Ein weiteres Wachstum der Wolkentropfen zu der Größe von Regentropfen geschieht durch Koagulation mit oder Anlagerung von flüssigen Tropfen, da ab einem Durchmesser von etwa $20 \mu\text{m}$ die Kondensation von Wasserdampf den benötigten Massenzuwachs nicht effizient genug verrichten kann.

Das Gefrieren von Wolkentropfen mittels homogener Eiskernung, ohne Einwirken von Aerosolpartikeln, findet erst bei Temperaturen unterhalb von -38°C statt. In der heterogenen Eiskernung hingegen fungiert ein Aerosolpartikel als initialer Eiskeim (ice nuclei, IN), der den Gefriervorgang eines unterkühlten Wolkentropfens bei Eisübersättigung einleitet und dadurch die Temperaturschwelle zur Eisbildung verringert. Die Umgebungsluft ist bei Eisättigung stets wasseruntersättigt, weshalb in einer Mischphasenwolke die Koexistenz von Eiskristallen und Wolkentropfen im Gleichgewichtszustand nicht möglich ist. Dadurch können Eiskristalle effektiv durch die Deposition von Wasserdampf, der den Tropfen entzogen wird, anwachsen. Dieser Vorgang wird als Wegener-Bergeron-Findeisen-Prozess bezeichnet und beruht auf der Differenz des Sättigungsdampfdrucks über einer Wasser- und Eisoberfläche, welche bei $-11,8^{\circ}\text{C}$ maximal ist (Pruppacher und Klett, 1997).

Die heterogene Eiskernung, ausgelöst durch bei vergleichsweise hohen Temperaturen eisaktive IN, kann somit die Entwicklung einer Mischphasenwolke maßgeblich beeinflussen. Eine Veränderung der Wolkencharakteristik kann die Niederschlagsmengen und -dauer sowie die Strahlungseigenschaften modifizieren. Generell können Aerosolpartikel zusätzlich zu dem direkten Strahlungsantrieb aufgrund der Streuung und Absorption von einfallendem, kurzwelligem sowie reflektiertem, langwelligem Sonnenlicht über die Wolkenwechselwirkung den Strahlungsantrieb indirekt verändern. In flüssigen Wolken bewirkt eine erhöhte CCN-Konzentration bei konstantem Wolkenwasseranteil, dass mehr kleinere Wolkentropfen vorhanden sind, wodurch weniger Regentropfen anwachsen, Niederschlag verringert und die Lebensdauer der Wolke verlängert wird (cloud albedo effect und cloud lifetime effect). In Mischphasenwolken wirkt eine erhöhte IN-Anzahlkonzentration dem entgegen, indem der Wolkenwassergehalt teilweise auf die Eispartikel übertragen wird und deren Wachstum beschleunigt (glaciation indirect effect; Lohmann und Feichter, 2005; Tao et al., 2012).

1.4. Der Einfluss von biologischen Aerosolpartikeln auf Wolken

Eine Abschätzung des Klimaeinflusses von PBAP bringt verschiedene Herausforderungen mit sich. Der direkte Strahlungsantrieb kann nur ungenau abgeschätzt werden, da neben den Unsicherheiten in der global und jahreszeitlich verteilten Anzahlkonzentration und Größenverteilung die Strahlungseigenschaften der PBAP nur unzureichend bekannt sind (Després et al., 2012). Pollen können beispielsweise die optischen Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols beeinflussen, wenn ihre Konzentration besonders hoch ist. Ihre optische Dicke trägt bei Untersuchungen Anfang Mai 2009 in Südkorea zwischen 2% und 34% zur optischen Dicke des Gesamtaerosols bei (Noh et al., 2013). Über einen indirekten Effekt, durch Beeinflussung der Wolkencharakteristik, könnten PBAP zusätzlich einen Einfluss auf die Strahlungsbilanz haben. Viele PBAP gelten als effektive CCN, da ihre Partikelgröße meist die anderer Partikel übertrifft und außerdem die Oberfläche einiger PBAP teilweise

hydrophil ist (Ariya et al., 2009). Somit könnten PBAP in kontinentalen Gebieten einen ähnlichen Effekt wie Seesalzpartikel über dem Meer haben, indem sie die Aktivierung anderer CCN, aufgrund einer Reduzierung des Wasserdampf-sättigungsdrucks, unterdrücken. Einige der größten PBAP (u.a. Pollen) könnten als sogenannte riesige CCN (giant CCN) fungieren, bei denen der Kelvineffekt für die Wasserdampfkondensation vernachlässigbar ist (Pope, 2010). Experimentell konnte bei einigen PBAP festgestellt werden, dass sie besonders effektive IN sind, die den Gefrierprozess von Tropfen bei deutlich höheren Temperaturen einleiten als vergleichbare, atmosphärisch relevante IN (z.B. Després et al., 2012). Unterhalb von -15°C ist der Einfluss von PBAP als biologischer Eiskeim (BIN) in der Atmosphäre vermutlich wesentlich geringer, weil hier der Anteil an eisaktiven IN von Mineralstaubpartikeln, die atmosphärisch am häufigsten nachgewiesenen IN, deutlich zunimmt (DeMott und Prenni, 2010). Die Analyse des Gefrierhaltens von einzelnen PBAP, Pflanzenresten, gesiebten Bodenproben, Partikelwaschwasser, Niederschlagsrückständen und Gletschertauwasser bestätigt die Existenz effektiver IN, die teilweise zwischen -2°C und -15°C eisaktiv sind (Després et al., 2012; Hoose und Möhler, 2012; Murray et al., 2012). Im Einzelnen zeigen die Ergebnisse, dass Tropfen mit einem Pollen als IN teilweise bei -9°C (Diehl et al., 2002; Schaupp, 2013) und mit einer Bakterienzelle als IN teilweise bei -8°C gefrieren (Möhler et al., 2008; Schaupp, 2013). Sind mehrere Partikel in einem Tropfen enthalten, steigt die Wahrscheinlichkeit, dass mindestens einer davon bei einer spezifischen Temperatur als IN fungiert. Ohne genaue Spezifizierung der Zellen- oder Partikelanzahl pro Tropfen initiieren einige gramnegative Bakterien (z.B. *Pseudomonas syringae*) den Gefriervorgang bei -3°C (z.B. Joly et al., 2013) und einige Pilzsporen (z.B. *Penicillium digitatum*) bei -10°C (Jayaweera und Flanagan, 1982). In aktuellen Studien konnte gezeigt werden, dass PBAP-Waschwasser bei einer ähnlichen Temperatur etwa genauso häufig gefriert, wie eine Suspension der jeweiligen PBAP. Eisnukleationsaktive (ice nucleating active, INA) Makromoleküle, die auf der Oberfläche von einigen PBAP vermutet werden und möglicherweise die Eisnukleation einleiten (Christner et al., 2008), können abgelöst vom Trägerpartikel ihre Nukleationseigenschaften weiterhin beibehalten (Pummer et al., 2012; Hartmann et al., 2013). Bakterien besitzen Proteinkomplexe, die teilweise als INA Makromoleküle dienen (Wolber et al., 1986). Bei Pollen lösen höchstwahrscheinlich Polysaccharide der Zellmembran die Eisnukleation des Waschwassers aus (Pummer et al., 2012). Unter atmosphärischen Bedingungen könnte der Einfluss der Photochemie eine Oxidation der gelösten Makromoleküle bewirken und dadurch deren Eigenschaften bezüglich der Eisnukleation verändern. Agglomerate von INA Makromolekülen oder Bakterien mit mineralischen Bodenstaubpartikeln zeigen hingegen eine ähnliche Anfangstemperatur der Eisnukleation wie atmosphärische Bakterienproben und sind damit bei signifikant höheren Temperaturen eisaktiv als reine Mineralstaubpartikel (Conen et al., 2011; Steinke, 2013; O'Sullivan et al., 2014). Die erhöhte Eisaktivität tritt sowohl bei Luftproben in der freien Troposphäre als auch bei bodennahen oder *in-situ* Staubproben von fruchtbarem Erdboden auf. Zudem können Bakterien mit mineralischen Trägerpartikeln ihre atmosphärische Verweildauer steigern, weshalb ihr Ferntransport häufig zusammen mit Mineralstaub auftritt (Bovallius et al., 1978;

Lighthart, 1997; Hara und Zhang, 2012; Creamean et al., 2013). Die Agglomerate von organischen Komponenten und luftgetragenen mineralischen Partikeln werden in der vorliegenden Arbeit als Bodenstaub (soil dust) bezeichnet.

1.5. Überblick über Messungen und Modellstudien von biologischen Aerosolpartikeln und Eiskeimen

1.5.1. Messmethoden für biologische Aerosolpartikel

Für die Einteilung der PBAP in einen biologischen Stamm muss die Detektion meist an die verschiedenen Arten angepasst werden, was systematische Detektionsfehler hervorbringen kann. Der zwischen verschiedenen Arten abweichende Partikeldurchmesser dient häufig zur Charakterisierung der Art, obwohl selbst einzelnen Arten in ihrer Größe stark schwanken können und eine eindeutige Abgrenzung anhand des Durchmessers nicht immer möglich ist. Zudem können bei PBAP häufig Abweichungen zwischen dem physikalischen und aerodynamischen Durchmesser existieren (Reponen et al., 2001; Huffman et al., 2010). Im Allgemeinen können PBAP-Konzentrationen mit offline (zeitverzögerten) und online (zeitgenauen) Messtechniken ermittelt werden. Bei einem Offlineverfahren wird eine Luftprobe mit luftgetragenen PBAP eingesammelt und deren PBAP anschließend unter einem Mikroskop (eingefärbt oder unbehandelt) oder durch Kultivieren der Zellen gezählt. Alternativ kann das enthaltene genetische Material vervielfältigt und durch Sequenzierung oder Elektrophorese-Trennung analysiert werden. Pollen können anhand ihrer Größe in einer Pollenfalle eingesammelt und gezählt werden. Die Pollenfalle besteht aus einer sich langsam drehenden Trommel ($1\text{ mm} \pm 30\text{ min}$) mit einem Klebestreifen, über den ein definiertes Luftvolumen (10 L/min) strömt. Die Summe der Pollenkörner stellt den Tagesmittelwert pro Luftvolumen dar (z.B. Wahl, 1989). Bei einem Onlineverfahren können die chemischen oder optischen Eigenschaften eines PBAP oder eines Indikators unmittelbar mit der Erfassung mittels Chromatografie, Massenspektroskopie, Fluoreszenzspektroskopie, LIDAR oder Durchfluss-Zytometrie dargestellt werden. Kurze Erläuterungen der einzelnen Verfahren sind in Després et al. (2012) und Georgakopoulos et al. (2009) angegeben.

Eine häufig angewandte Methode zur Unterteilung in biologische und nicht-biologische Partikel nutzt deren Autofluoreszenz, indem die Partikel bei einer charakteristischen Wellenlänge im ultravioletten Bereich angeregt und die resultierende Emission detektiert wird (UV-LIF, **UltraViolet Light Induced Fluorescence**) (Hairston et al., 1997; Pan et al., 1999). Fluorophore sind Moleküle, die in jedem biologischen Material verbreitet sind (Gabey et al., 2010). Im Speziellen wird die Fluoreszenzanregung bei etwa 360 nm für die Charakterisierung von Riboflavin und reduzierte Pyridin-Nukleotide (z.B. NAD(P)H) verwendet, die als Indikator für lebendes biologisches Material gelten. Eine Wellenlänge im Bereich von 270 nm erzeugt die Fluoreszenz von bestimmten Aminosäuren (z.B. Tryptophan), die in allen

Proteinen enthalten sind (Després et al., 2012; Pöhlker et al., 2012). Darüber hinaus existieren viele weitere Fluorophore. Im Allgemeinen ist das Zusammenspiel zwischen gemessener Fluoreszenz eines komplexen biologischen Partikels und der Zuweisung zu einem bestimmten Fluorophor sehr vielschichtig (Pöhlker et al., 2013). Eine ausführliche Beschreibung der Messtechnik ist unter anderem in Brosseau et al. (2000), Hairston et al. (1997) und Foot et al. (2008) angegeben. Es gilt zwei Arten von Instrumenten zu unterscheiden: Der UV-APS (**UltraViolet Aerodynamic Particle Sizer**, TSI, Inc., Shoreview, MN, USA) bestimmt die Partikelgröße aerodynamisch, bewirkt die Partikelanregung mit einem einzelnen Nd:YAG Laserpuls bei 355 nm und erfasst die integrierte (nicht-verteilte) Fluoreszenzemission in einem einfachen Wellenlängenbereich zwischen 420 nm und 575 nm (Huffman et al., 2010). Das WIBS (**Waveband Integrated Bioaerosol Sensor**; Version 3 und 4) misst die Partikelgröße optisch und bewirkt die Partikelanregung durch zwei sequenziell gepulste Xenon Blitzlichter bei einer Wellenlänge von 280 nm und 370 nm (Kaye et al., 2005; Foot et al., 2008). Die Fluoreszenz jedes einzelnen Partikels wird in einer von zwei Regionen, bei 310 nm bis 400 nm oder bei 400 nm bis 600 nm , gemessen, wodurch drei Fluoreszenzparameter (FL1_280, FL2_280 und FL3_370) zur Verfügung stehen (Gabey et al., 2010; Robinson et al., 2013; Toprak und Schnaiter, 2013). Der Unterschied in den Wellenlängenbereichen für Extinktion und Emission der Fluoreszenz zwischen WIBS und UV-APS sowie eine unterschiedliche Empfindlichkeit der Geräte suggeriert, dass die Anzahlkonzentration von fluoreszierenden biologischen Aerosolpartikeln (FBAP) nicht notwendigerweise identisch ist.

Eine grobe Zuordnung der FBAP zu einem biologischen Stamm kann über ihre Partikelgröße erfolgen. Im kleinsten Größenbereich (bis etwa $1\ \mu\text{m}$) sind Bakterien die häufigsten PBAP (Gabey et al., 2011; Després et al., 2012). Allerdings kann ein geringer Anteil von fluoreszierenden Partikeln $\sim 1\ \mu\text{m}$ nicht-biologischen Ursprungs sein und als FBAP gezählt werden. Diese beinhalten höchstwahrscheinlich anthropogene Partikel aus Verbrennungsprozessen und Zigarettenrauch (meist $<1\ \mu\text{m}$), einzelne oxidierte organische Aerosolpartikel (Bones et al., 2010; Lee et al., 2013) und einige humin-ähnliche Stoffe (Gabey et al., 2013). Im Vergleich zur Fluoreszenzmikroskopie von eingefärbten Pilzsporen und Bakterien folgen FBAP-Messungen größenunabhängig eher dem Tagesgang der Bakterienkonzentration, wobei nicht-biologische Partikel zur Messunsicherheit beitragen können (Gabey et al., 2013). In nahezu allen Messungen mit Umgebungsluft zeigt die FBAP-Größenverteilungen von WIBS und UV-APS einen deutlichen Anstieg der Anzahlkonzentration in einem Bereich von $2\ \mu\text{m}$ bis $3\ \mu\text{m}$, und in vielen Fällen dominieren fluoreszierende Partikel mit diesem Durchmesser die Messungen (Gabey et al., 2010; Huffman et al., 2010; Huffman et al., 2012; Huffman et al., 2013; Toprak und Schnaiter, 2013). Pilzsporen und Bakterienagglomerate sind die zahlreichsten PBAP im Bereich von $2\ \mu\text{m}$ bis $3\ \mu\text{m}$ (Jones und Harrison, 2004; Fang et al., 2008; Després et al., 2012). Pilzsporen dominieren üblicherweise FBAP-Messungen in diesem Größenbereich. Diese Aussage wird unterstützt durch FBAP-Messungen zusammen mit Fluoreszenzmikroskopie (Huffman et al., 2012), was bisher lediglich für das Amazonasgebiet durchgeführt wurde. Zusätzlich besagen DNS-basierte Studien, dass der Massenanteil von Pilzsporen an der gesamten organischen Partikelmasse im Bereich zwischen $2\ \mu\text{m}$ bis $10\ \mu\text{m}$

durchschnittlich 60% beträgt (Bauer et al., 2008). Bezogen auf die Gesamtmasse der Aerosole größer als $0,2 \mu\text{m}$ liegt der Anteil von PBAP unter Hintergrundbedingungen (Sibirien) im Jahresdurchschnitt bei 28% (Matthias-Maser et al., 2000) und an der Gesamtmasse der Aerosole größer als $1 \mu\text{m}$ in biologisch dominierten Gebieten (Amazonas) bei 65% bis 85% (Martin et al., 2010; Pöschl et al., 2010). Dennoch wird angenommen, dass die FBAP-Konzentrationen im Allgemeinen die PBAP-Konzentrationen unterschätzen, denn einige PBAP zeigen lediglich ein sehr geringes Signal in der Fluoreszenzemission (Huffman et al., 2012). Allerdings werden von der LIF Messtechnik auch nicht-biologische, fluoreszierende Partikel detektiert. Unter Berücksichtigung der daraus resultierenden Ungenauigkeit bietet die LIF Technik FBAP-Messungen in Echtzeit und ermöglicht eine erste Abschätzung der Gesamt-PBAP- und Pilzsporenkonzentration.

Im oberen Bereich der FBAP-Größenverteilung tritt teilweise eine Mode auf, die höchstwahrscheinlich von Pollen kommt (Huffman et al., 2010). Pollenzählungen mit einer Pollenfalle sind im Alpenraum meist von Birkenpollen dominiert (z.B. Makra et al., 2010). Flugzeugbasierte Messungen zwischen Mitte März und Ende Mai zählen oft einen hohen Anteil von Birkenpollen in etwa 2 km Höhe, der teilweise bei über $\frac{3}{4}$ der Gesamtanzahl der Pollen liegt (Rempe, 1937; Gregory, 1961). Bei Abwesenheit von Birkenpollen in diesem Gebiet sind es meist Kiefern- oder Buchenpollen, die einen hohen Anteil aufweisen.

1.5.2. Bisherige Simulationen zur Emission von biologischen Aerosolpartikeln

In globalen Klimamodellen (global circulation model, GCM), die die Simulation des Aerosoltransportes beinhalten, ist die Anzahlkonzentration und Massendichte von PBAP meist um Größenordnungen geringer als die von Mineralstaub (Jacobson und Streets, 2009; Hoose et al., 2010b; Sesartic et al., 2012). Zwischen den unterschiedlichen Modellberechnungen besteht eine große Abweichung in der Angabe der globalen Quellstärke der PBAP. Der deutliche Unterschied in den Simulationen ergibt sich aus der Betrachtung verschiedener PBAP-Arten. Die jährlichen Emissionen von Pilzsporen und Blattfragmenten innerhalb Europas sowie in Teilen Nordafrikas und des Mittleren Ostens extrapoliert auf die globale Skala wird mit etwa 10 Tg/a angegeben (Winiwarter et al., 2009). PBAP-Konzentrationen oder Emissionsstärken aus andere Simulationen auf regionaler Skala (z.B. Vogel et al., 2008) lassen sich bei kleiner Modellausdehnung häufig nicht auf die globale Skala extrapolieren und können aufgrund räumlicher und zeitlicher Variationen nicht direkt miteinander verglichen werden.

Im dritten IPCC-Bericht (Intergovernmental Panel on Climate Change) hat die globale Quellstärke von PBAP mit einem Durchmesser von $< 2,5 \mu\text{m}$ lediglich einen geringen Anteil an der Gesamtmasse der Partikelemissionen (Penner et al., 2001). Die indirekte Abschätzung aus der Differenz zwischen der natürlichen Aerosolmasse und der aufsummierten Masse

einzelner Kategorien beträgt 56 Tg/a , enthält jedoch signifikante Unsicherheiten (Penner, 1995). Die Simulation der Anzahlkonzentration von Bakterien, Pilzsporen und Pollen, dessen Ziel die Untersuchung der Aerosol-Wolken-Wechselwirkung ist, beinhaltet eine globale PBAP-Quellstärke von 78 Tg/a , umgerechnet mit der Annahme von monodispers größenverteilten Partikeln (Hoose et al., 2010b). Zur Berechnung von globalen, atmosphärischen Phosphorquellen wird ein zeitlich konstanter Emissionsfluss für PBAP angenommen, der räumlich mit der Biomasse oberhalb des Erdbodens verteilt und mit Messungen im Amazonasgebiet skaliert ist. Die Größenverteilung ist gleichmäßig in zwei Moden ($2,5 - 5 \mu\text{m}$ und $5 - 10 \mu\text{m}$) aufgeteilt und ergibt zusammen eine PBAP-Quellstärke von 186 Tg/a (Mahowald et al., 2008). In einer weiteren Modellberechnung beinhaltet der Einfluss zukünftiger, anthropogener Emissionen auf das Klima unter anderem die Rückkopplung durch veränderte PBAP-Konzentrationen aufgrund von anthropogen beeinflussten Emissionen. In dieser Simulation mit polydispers größenverteilten PBAP ist ein für das Jahr 2000 berechneter Ausgangswert der Quellstärke von Bakterien ($0,5 - 10 \mu\text{m}$), Pilzsporen ($2 - 3,5 \mu\text{m}$) und Pollen ($10 - 125 \mu\text{m}$) von 312 Tg/a enthalten (Jacobson und Streets, 2009).

1.5.3. Bisherige Modellstudien zum Einfluss von biologischen Eiskeimen auf Wolken und Niederschlag

Bisherige Modellberechnungen zur Eisnukleation von PBAP sind in GCM (Hoose et al., 2010a; Sesartic et al., 2012; Sesartic et al., 2013), Regionalmodellen mit kleinräumiger Domäne und idealisierten Initialaerosolkonzentrationen (Grützun et al., 2008) oder angepasst an Feldmessungen (Phillips et al., 2009) sowie Boxmodellen, die die Hebung eines Luftpaketes simulieren (Levin et al., 1987; Diehl und Wurzler, 2004), realisiert worden. In beiden GCM (ECHAM5-HAM, CAM-Oslo) wird dieselbe Emissionsparametrisierung für Bakterien verwendet (Burrows et al., 2009a). Die zonalen und jährlichen Mittelwerte der Anzahlkonzentrationen von Bakterien sind in beiden globalen Modellen in derselben Größenordnung vorhanden (Hoose et al., 2010a; Sesartic et al., 2012). Beide GCM beinhalten zudem Pilzsporen als IN, die auf unterschiedlichen Emissionsparametrisierungen beruhen (Heald und Spracklen, 2009; Sesartic und Dallafior, 2011). Die zonalen und jährlich gemittelten Konzentrationen von Pilzsporen sind im CAM-Oslo eine und im ECHAM5-HAM zwei Größenordnungen niedriger als die von Bakterien. Im CAM-Oslo sind darüber hinaus Pollen-IN simuliert, die allerdings wesentlich geringere Konzentrationen als Bakterien haben.

Aus den Simulationen mit CAM-Oslo geht hervor, dass PBAP im Vergleich zu Mineralstaub und Ruß nur in geringem Maß zur globalen atmosphärischen Eisbildung beitragen. Ursache sind die deutlich geringeren atmosphärischen Anzahlkonzentrationen, die im zonalen und jährlichen Mittel mehrere Größenordnungen niedriger sind als die von Mineralstaub- oder Rußpartikeln (Hoose et al., 2010a). Berechnungen mit ECHAM5-HAM beinhalten

zusätzlich die Aktivierung von PBAP (Bakterien und Pilzsporen) im Kontaktmode, der im zonalen und jährlichen Mittel gegenüber dem Immersionsgefrieren dominiert. In einem Szenario mit der Annahme, dass 1% der Bakterien und Pilzsporen eisaktiv sind, sind beide gleich bedeutend für die Eisnukleation wie Mineralstaub. Die PBAP ersetzen Mineralstaub lediglich als IN ohne die mikrophysikalischen Eigenschaften der Wolke zu verändern. Eine Sensitivitätsstudie, bei der 100% der Bakterien und Pilzsporen eisaktiv sind, bewirkt eine Reduktion des Flüssigwassergehalts um 7% im globalen Mittel (Sesartic et al., 2012; Sesartic et al., 2013).

Simulationen mit dem Regionalmodell LM (**Lokal Modell**) bei idealisiertem Setup geben mit Bakterien-IN die höchste Massendichte von flüssigen plus festen Wolkenpartikeln an, die allerdings durch die starke Eisaktivität der Bakterien bei hohen Temperaturen überschätzt werden könnte (Grützun et al., 2008). Gemäß den Simulationen auf regionaler Skala, mit Bedingungen angepasst an Feldmessungen, könnten PBAP die Ausdehnung und Eigenschaften von Wolken maßgeblich modifizieren, wenn die PBAP in ausreichend hohen Konzentrationen vorliegen (Phillips et al., 2009). Anhand von Boxmodellen wird deutlich, dass PBAP, insbesondere Bakterien, in einem aufsteigenden Luftpaket früher zu IN aktiviert werden als andere eisaktive Aerosolpartikel. Dies bewirkt ein effektiveres Gefrieren der Tropfen bezogen auf deren Anzahlkonzentration (Diehl und Wurzler, 2004).

1.6. Zielsetzung der vorliegenden Arbeit

Mit der vorliegenden Arbeit soll die Effektivität von biologischen Eiskeimen (BIN) in Mischphasenwolken eingeschätzt werden. Es wird die Frage beantwortet, ob BIN über die heterogene Eisnukleation die Entwicklung von Mischphasenwolken beeinflussen können und in welchem Umfang die mögliche Beeinflussung stattfindet. Dafür wird die Ausbreitung einzelner PBAP mit einem regionalen Atmosphärenmodell (COSMO-ART) simuliert. Zusätzlich werden Parametrisierungen zur heterogenen Eisnukleation der betrachteten PBAP abgeleitet und in das Modell implementiert.

Die Simulationen der vorliegenden Arbeit werden mit einem regionalen Modell durchgeführt, da somit gegenüber einem GCM die räumliche und zeitliche Variation der PBAP-Konzentration detaillierter berechnet und die Verteilung der Bewölkung aufgelöst werden kann. Im Umkehrschluss wird die Ausbreitung der PBAP nur auf einem begrenzten geografischen Abschnitt simuliert, wodurch Ferntransporte und Emissionen von verschiedenen Klimazonen nicht abgebildet sind.

Die wissenschaftliche Ausgangssituation der vorliegenden Arbeit beinhaltet mit Hinblick auf die Fragestellung zwei wichtige Aspekte. Zum einen zeigen unterschiedliche Messungen, die unter anderem abseits von PBAP-Quellgebiete, wie beispielsweise auf Bergstationen in der freien Troposphäre durchgeführt wurden, dass PBAP in der Atmosphäre häufig vorkom-

men und ihre Konzentration einen signifikanten Bestandteil der Anzahl und Masse der atmosphärischen Aerosolzusammensetzung ausmachen kann. Zum anderen konnte für einige PBAP nachgewiesen werden, dass sie die Eisnukleation von Tröpfchen bei höheren Temperaturen auslösen, als es bei den meisten anderen atmosphärischen Eisnukleatoren, wie Mineralstaub oder Ruß, der Fall ist. Durch diese Eigenschaft haben PBAP das Potential, den Gefrierprozess in einem aufsteigenden, sich abkühlenden Luftpaket innerhalb einer Mischphasenwolke früher auszulösen. Somit kann die Vereisung der Wolke in einer geringeren Höhe einsetzen, wodurch die Entwicklung der Wolke verändert stattfindet.

Für die heterogene Eisnukleation von PBAP wird eine temperaturabhängige Parametrisierung auf deren Anzahlkonzentration angewandt, wenn Wolkentropfen am gleichen Orts- und Zeitpunkt des Modells vorhanden sind. Die Parametrisierung wird von Laborergebnissen für Birken- und Kiefernpollen, Bakterien der Spezies *Pseudomonas syringae* und Pilzsporen der Gattung *Cladosporium* abgeleitet. Innerhalb der Pollen stellen Birkenpollen die Partikel mit den womöglich besten Eisnukleationseigenschaften dar, da die Mediangefroretemperatur, bei der in einem Set von Pollensuspensionen die Hälfte der Proben gefriert, höher ist, als bei anderen Pollen (Pummer et al., 2012). So orientiert sich die Auswahl eines einwöchigen Zeitraums, über den die Simulationen im regionalen Modell laufen, an der Blütezeit von Birken, nachgewiesen durch eine erhöhte Konzentration im Alpenraum (genauer beschrieben in Kapitel 4.1). Die Parametrisierung der Eisnukleation von Birkenpollen wird von experimentellen Analysen an der Aerosol- und Wolkensimulationskammer AIDA (**A**erosol **I**nteraction and **D**ynamics in the **A**tmosphere) (Möhler et al., 2003; Möhler et al., 2006) abgeleitet. Zusätzlich zu Birkenpollen werden Kiefernpollen als weitere besonders eisaktive Pollenart (Pummer et al., 2012) in dem Modell berücksichtigt. Deren Eisnukleation wird anhand von Ergebnissen aus Diehl et al. (2002) parametrisiert.

Für die Berechnung der Eisnukleation von Bakterien kann, ähnlich wie bei Birkenpollen, eine Parametrisierung aus Ergebnissen von AIDA-Messungen abgeleitet werden. Die Messreihe beinhaltet Experimente mit Bakterien der Gattung *Pseudomonas*, hauptsächlich *P. syringae* (verschiedene Stränge). Die Parametrisierung der Eisnukleation von Pilzsporen ist aus Daten von Iannone et al. (2011), durchgeführt mit der Gattung *Cladosporium*, abgeleitet. Somit ist die Berechnung der Eisnukleation von Bakterien und Pilzsporen in der vorliegenden Arbeit nur für bestimmte Arten definiert. Im Gegensatz dazu wird die Ausbreitung der Gesamtanzahl von Bakterien und Pilzsporen simuliert. Diese Diskrepanz wird mit einem konstanten Anteil der jeweiligen eisaktiven Art an der Gesamtanzahl abgeschätzt.

Die Vorgehensweise, mit der die Simulation von BIN auf regionaler Skala umgesetzt wird, ist in den Kapiteln 2 und 3 beschrieben. Zunächst wird in Kapitel 2.1 die zugrundeliegende Modelldynamik erläutert und die verwendete Datengrundlage dargelegt. Die Beschreibungen zur Umsetzung der Wolkenmikrophysik sowie zur Ausbreitung von nicht-biologischen Aerosolpartikeln ist in den Kapiteln 2.2 und 2.3 gegeben. Kapitel 2.4 zur Simulation von PBAP hat einen besonderen Fokus auf die verwendeten Emissionsparametri-

sierungen. In Kapitel 3 wird die heterogene Eisnukleation von PBAP erörtert und die Parametrisierung anhand von Laborergebnissen beschrieben.

Im Anschluss an die Methodik werden die Modellergebnisse zur Ausbreitung der PBAP dargestellt (Kapitel 4). Kapitel 5 beinhaltet die Simulationsergebnisse der BIN, zunächst als diagnostische Größe unter Betrachtung von Modellmittelwerten und Einzelanalysen (Kapitel 5.2 und 5.3). Anschließend werden die Ergebnisse mit Mineralstaub-IN verglichen, die anhand einer konstanten Hintergrundkonzentration berechnet werden (Kapitel 5.4). Mit und ohne Zugabe von PBAP wird der Einfluss von BIN auf die heterogene Eisnukleation von Mineralstaub analysiert (Kapitel 5.5). Abschließend werden die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit diskutiert und ein Ausblick zu zukünftigen Modellansätzen gegeben (Kapitel 6).

2 Das regionale atmosphärische Modellsystem COSMO-ART mit der Erweiterung zur Simulation von primären biologischen Aerosolpartikeln

2.1. Beschreibung der zugrundeliegenden Modellstruktur

2.1.1. Strömungsmodell

Die Grundlage einer dynamischen Entwicklung der Simulationen, wie sie in der vorliegenden Arbeit gezeigt sind, besteht aus einer kompressiblen Strömung in einer feuchten Atmosphäre, beschrieben durch die thermo-hydrodynamischen Gleichungen des regionalen Modells COSMO (**C**onsortium for **S**mall scale **M**odeling). Entwickelt wurde das Modell ursprünglich vom Deutschen Wetterdienst für den operationellen Betrieb einer numerischen Wettervorhersage sowie für wissenschaftliche Anwendungen. Die Simulationen können die meso- β (20 – 200 km) und meso- γ (2 – 20 km) Skala abdecken. Die zugrundeliegenden Gleichungen beziehen sich in der Horizontalen auf rotierte Kugelkoordinaten und in der Vertikalen auf geländefolgende Koordinaten. Viele physikalische Prozesse werden in Form von Parametrisierungen berücksichtigt, von denen nur einige in dieser Arbeit spezifiziert werden. Sie sind detailliert in Doms und Schättler (2002) beschrieben.

Die Thermo-hydrodynamik des Modells beinhaltet die prognostischen Eulerschen Bewegungsgleichungen sowie Gleichungen für Wärme- und Massenflüsse und die Zustandsgleichung. Für die Beschreibung einer atmosphärischen Strömung wird angenommen, dass die Atmosphäre ein ideales Gemisch aus trockener Luft und Wasser in allen drei Aggregatzuständen (Wasserdampf, Flüssigwasser und Eis) ist. Trockene Luft und Wasserdampf werden wie ideale Gase behandelt. Flüssigwasser und Eis hingegen werden als inkompressible Substanzen berücksichtigt und sind in verschiedene Hydrometeore (Wolkentropfen, Regentropfen, reine Eiskristalle, bereifte Eiskristalle und Graupel oder Hagel) unterteilt. In dem hier verwendeten Zwei-Momenten-Ansatz kann sowohl die Massendichte L_x als auch die Anzahlkonzentration N_x der Hydrometeore x in ihrer zeitlichen Entwicklung berechnet werden.

Die Erhaltungssätze für Bewegung, Masse und Wärme werden durch Bilanzgleichungen (2-1) bis (2-4) dargestellt. Prozesse im Zusammenhang mit der Phasenänderung des Wassers werden durch die Gesamtmasse, als Summe der Einzelmassen von trockener Luft, Wasserdampf, Flüssigwasser und Eis, in Form einer Erhaltungsgröße berücksichtigt. Für die Gleichung (2-3) der thermischen Energie wird die Temperatur T als prognostische Größe verwendet. Dafür wird T aus der Budgetgleichung der Enthalpie bezogen, wodurch Informationen zur Drucktendenz (dp/dt) aus einer weiteren prognostischen Gleichung benötigt

werden. Dadurch wird die Gesamtdichte feuchter Luft ρ in einer diagnostischen Gleichung (2-5) wiedergegeben.

$$\rho \frac{d\vec{v}}{dt} = -\nabla p + \rho \vec{g} - 2\vec{\Omega} \times (\rho \vec{v}) - \nabla \cdot \vec{T} \quad (2-1)$$

$$\frac{dp}{dt} = -\frac{c_p}{c_v} p \nabla \cdot \vec{v} + \left(\frac{c_p}{c_v} - 1\right) Q_h + \frac{c_p}{c_v} Q_m \quad (2-2)$$

$$\rho c_p \frac{dT}{dt} = \frac{dp}{dt} + Q_h \quad (2-3)$$

$$\rho \frac{dL_x}{dt} = -\nabla \cdot \vec{J}^x + S^x \quad (2-4)$$

$$\rho = p \{R_d(1 + \alpha)T\}^{-1} \quad (2-5)$$

mit der baryzentrischen Windgeschwindigkeit \vec{v} , der Winkelgeschwindigkeit der Erdrotation $\vec{\Omega}$, dem Spannungstensor \vec{T} , der spezifischen Wärme bei konstantem Druck c_p oder Volumen c_v , dem Massenmischungsverhältnis L_x , dem Diffusionsfluss \vec{J} und der Rate des Phasenübergangs S_x . Eine Zusammenstellung der in der vorliegenden Arbeit verwendeten Symbole befindet sich im Symbolverzeichnis (Appendix B).

Diese grundlegenden Gleichungen gelten nur für ein infinitesimales Zeitintervall δt und für infinitesimale räumliche Ausdehnungen δx , δy und δz . Um physikalische Prozesse sinnvoll wiederzugeben, sollten die Inkremente nicht infinitesimal sein, sondern irgendwo zwischen mikroskopischer und makroskopischer Ausdehnung liegen. Um Anwendungen auf der Mesoskala abzudecken, ist somit eine Mittelung der Grundgleichungen notwendig. Bei der verwendeten Reynolds-Mittelung werden kleinräumige und vom Modell nicht-auflösbare turbulente Fluktuationen berücksichtigt, indem jede Variable über eine bestimmte Raum- und Zeitskala integriert wird. Dafür wird eine beliebige Variable ψ in ihren Mittelwert $\bar{\psi}$ über ein finites Zeit- und Raumintervall Δt , bzw. $\Delta V = \Delta x \Delta y \Delta z$ und ihre stark fluktuierende, nicht-auflösbare Perturbation ψ' aufgeteilt:

$$\psi = \bar{\psi} + \psi' \quad (2-6)$$

$$\bar{\psi} = \frac{1}{\Delta V \Delta t} \iint \psi dt dV \quad (2-7)$$

$$\overline{\psi'} = 0 \quad (2-8)$$

Der Mittelwert $\bar{\psi}$ variiert nur langsam und kann vom Modell aufgelöst werden. Zusätzlich wird ein mit der Masse gewichtetes Mittel $\hat{\psi}$ und die Abweichung vom massengewichteten Mittelwert ψ'' verwendet:

$$\psi = \hat{\psi} + \psi'' \quad (2-9)$$

$$\hat{\psi} = \frac{\overline{\rho\psi}}{\bar{\rho}} \quad (2-10)$$

$$\overline{\psi''} = 0 \quad (2-11)$$

Mit der Reynolds-Mittelung werden vereinfachte thermodynamische Bedingungen auf die grundlegenden Gleichungen angewandt. Zusammengefasst werden (i) alle molekularen Flüsse, außer den Diffusionsflüssen für Flüssigwasser und Eis vernachlässigt, (ii) die spezifische Wärme feuchter Luft durch die von trockener Luft ersetzt (aufgrund von $q^v \gg q^l, q^i$), (iii) Einflüsse auf die Drucktendenz, die durch Änderungen in der Konzentration der Wasserbestandteile aufgrund von Diffusionsflüssen und Phasenänderungen auftreten, vernachlässigt und (iv) Temperaturänderungen durch Auftriebswärme und Feuchtigkeitsflüsse vernachlässigt. Die folgenden Gleichungen beschreiben die Entwicklung eines nicht-hydrostatischen, kompressiblen, mittleren Flusses:

$$\bar{\rho} \frac{\hat{d}\hat{\mathbf{v}}}{dt} = -\nabla\bar{p} + \bar{\rho}\vec{g} - 2\vec{\Omega} \times (\rho\hat{\mathbf{v}}) - \nabla \cdot \vec{\bar{T}} \quad (2-12)$$

$$\frac{\hat{d}\bar{p}}{dt} = -\frac{\hat{c}_{p,d}}{\hat{c}_{v,d}} \bar{p} \nabla \cdot \vec{\bar{v}} + \left(\frac{\hat{c}_{p,d}}{\hat{c}_{v,d}} - 1 \right) \overline{Q_h} \quad (2-13)$$

$$\bar{\rho} \hat{c}_{p,d} \frac{\hat{d}\hat{T}}{dt} = \frac{\hat{d}\bar{p}}{dt} + \overline{Q_h} \quad (2-14)$$

$$\bar{\rho} \frac{\hat{d}\hat{q}^v}{dt} = -\nabla \cdot \vec{\bar{F}}^v + (\bar{S}^l + \bar{S}^i) \quad (2-15)$$

$$\bar{\rho} \frac{\hat{d}\hat{q}^{l,i}}{dt} = -\nabla \cdot (\vec{\bar{P}}^{l,i} + \vec{\bar{F}}^{l,i}) + \bar{S}^{l,i} \quad (2-16)$$

$$\bar{\rho} = \bar{p} \left\{ R_d \left(1 + \left(\frac{R_v}{R_d} - 1 \right) \hat{q}^v - \hat{q}^l - \hat{q}^i \right) \hat{T} \right\}^{-1} \quad (2-17)$$

mit dem turbulenten Fluss $\vec{\bar{F}}$ und dem Niederschlagsfluss $\vec{\bar{P}}$. Die in den Gleichungen auftretende mittlere diabatische Erwärmungsrate wird in folgender Form berechnet:

$$\overline{Q_h} = \hat{L}_v \bar{S}^l + \hat{L}_s \bar{S}^i - \nabla \cdot \vec{\bar{R}} - \nabla \cdot \vec{\bar{H}} \quad (2-18)$$

Neben den molekularen Flüssen und Quelltermen beinhalten die Gleichungen (2-12) bis (2-17) die mittleren Kovarianzen der nicht-auflösbaren Turbulenz in Form des Reynoldsschen Spannungstensors $\vec{\bar{T}}$, den turbulenten Fluss von Wasserdampf $\vec{\bar{F}}^v$, Flüssigwasser $\vec{\bar{F}}^l$ und

Eis \vec{F}^i sowie fühlbarer Wärme \vec{H} . Deren Formulierungen sowie weitere Details zur Beschreibung der grundlegenden Modellgleichungen des nicht-hydrostatischen regionalen Modells sind in Doms und Schättler (2002) formuliert.

2.1.2. Koordinatensystem

Der Anwendungsbereich der regionalen Modellierung mit COSMO ist auf einem ausgedehnten horizontalen Bereich gültig. Hier führt die Krümmung der Erdoberfläche zu signifikanten Unterschieden zwischen den Bewegungsgleichungen eines Fluides auf einem tangentialen Kartesischen Koordinatensystem und auf einem Kugelkoordinatensystem. Zwei grundlegende numerische Probleme treten aufgrund der Meridiankonvergenz und der Singularität an den Polen (falls die Modelldomäne einen Pol enthält) auf. Um das zu umgehen, wird bei der Transformation in orthogonale Kugelkoordinaten (λ, φ, r) von einfach rotierten Kartesischen Koordinaten ausgegangen. Das kartesische Ausgangssystem hat den Ursprung im Erdmittelpunkt. Die vertikale Z -Achse ist geneigt, um zu einem verlagerten Nordpol zu zeigen. Längen- und Breitengrad λ bzw. φ sind bezüglich der rotierten Z -Achse definiert. $r = z + a$ bezeichnet die Entfernung vom Erdmittelpunkt mit dem mittleren Radius der Erdoberfläche a und einer geometrischen Höhe z über dem mittleren Meeresspiegel.

Unter Berücksichtigung der Orografie treten am Modellunterrand schwierige numerische Lösungen der Bewegungsgleichung auf. Unter Verwendung eines nicht-rechtwinkligen geländefolgenden Koordinatensystems wird dieses Problem verringert. Die zeitunabhängige vertikale Koordinate ζ kann durch eine monotone Funktion der geometrischen Höhe z beschrieben werden, dessen unterste Schicht gleichförmig zur Orografie ist. Das Modellsetup bietet drei verschiedene Optionen für eine geländefolgende vertikale Koordinate. Alle in dieser Arbeit gezeigten Simulationen wurden mit der Hybridkoordinate, basierend auf dem Referenzdruck, durchgeführt ($\zeta = \eta$). Abbildung 2-1 zeigt das Verhalten dieser geländefolgenden Hybridkoordinate anhand einer Schichtung über einem Gaußhügel mit einer Höhe von 3 km.

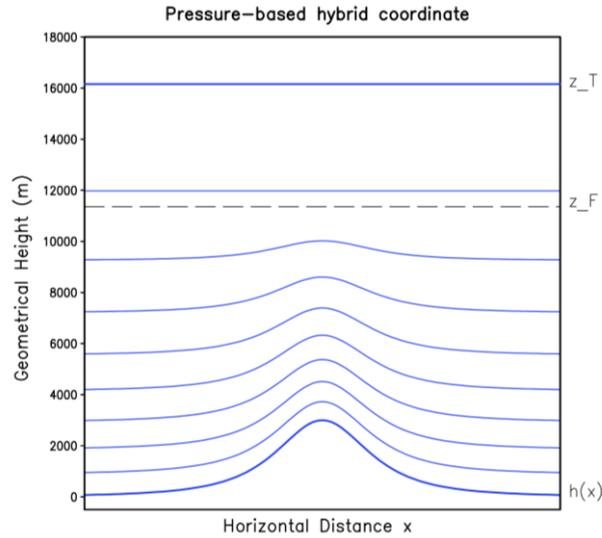


Abbildung 2-1: Geländefolgende Koordinatenebenen für einen Gaußhügel mit einer Höhe von 3 km anhand einer geometrischen Höhe von zehn η -Level mit $\Delta\eta = 0,1$ von $\eta_T = 0,1$ am Oberrand (mit einer Höhe von z_T) bis $\eta = 1,0$ am Boden. Die Verteilung der Levelinkremente ist im physikalischen Raum nicht gleich weit voneinander entfernt (Doms und Schättler, 2002).

Die stetigen Differentialgleichungen sind analytisch lösbar, indem sie in finite Differenzgleichungen transformiert werden. Der Modellraum wird durch eine endliche Anzahl an Gitterpunkten aufgespannt, wobei sich i , j , und k auf jeweils eine Richtung beziehen. Die horizontale Position eines Gitterpunktes ist angegeben durch:

$$\lambda_i = \lambda_0 + (i - 1)\Delta\lambda, \quad i = 1, \dots, N_\lambda \quad (2-19)$$

$$\varphi_j = \varphi_0 + (j - 1)\Delta\varphi, \quad j = 1, \dots, N_\varphi \quad (2-20)$$

wobei λ_0 und φ_0 die südliche bzw. westliche Kante des Modellraums auf dem rotierten Gitter angeben. In horizontaler Ausrichtung werden die prognostischen Variablen auf einem Rechengitter mit konstanten Abständen ($\Delta\lambda$, $\Delta\varphi$) zwischen den Variablen angeordnet. Die vertikale Position wird durch $\zeta_k = k$, mit $k = 1, \dots, N_\zeta$ bestimmt und ist in halbe und ganze Level unterteilt (Arakawa C-grid). Die Level erstrecken sich zwischen der Obergrenze bei $\zeta = \frac{1}{2}$ und der Untergrenze bei $\zeta = N_\zeta + \frac{1}{2}$, an der die Oberfläche der Koordinate deckungsgleich mit der Bodenhöhe wird. Alle skalaren, prognostischen und diagnostischen Variablen befinden sich in der Mitte von jeder Gitterbox und sind repräsentativ für das komplette Gitterboxvolumen. Die Geschwindigkeitskomponenten befinden sich an den Stirnseiten der entsprechenden Gitterbox.

Um die numerische Effizienz zu erhöhen, erfolgt die zeitliche Integration der Modellgleichungen auf unterschiedlichen Ebenen. Dabei werden die prognostischen Gleichungen in Bestandteile bezüglich Wellen mit hoher Phasengeschwindigkeit und relativ kurzen Schritten der expliziten zeitlichen Integration sowie Bestandteile mit relativ langsamer Variation als Vielfaches der kleinen Zeitschritte getrennt. Die kleinen Zeitschritte werden durch den Abstand begrenzt, an dem die explizite zeitliche Integration der schnellen Schallwellen stabil

bleibt. Durch Fallenlassen der hydrostatischen Annahme sind Schallwellen als ungewollter, meteorologisch unbedeutender Nebeneffekt Bestandteil der Lösung. Die der vorliegenden Arbeit zugrunde liegenden Simulationen sind mit einem Runge-Kutta Verfahren zweiter Ordnung mit zwei Ebenen nach Wicker und Skamarock (2002) durchgeführt, das detailliert im Anwendungsbereich von COSMO in Doms und Schättler (2002) beschrieben ist.

Damit die verwendeten Simulationen der Zielsetzung dieser Arbeit gerecht werden, die zeitliche und räumliche Entwicklung von biologischen Aerosolen und deren Einfluss auf Mischphasenwolken zu untersuchen, sind zwei Erweiterungen zu der Basisversion von COSMO aktiviert. Wie bereits erwähnt, werden mit dem zusätzlich verwendeten Zwei-Momenten-Mikrophysikschema sowohl die Anzahlkonzentration als auch die Massendichte der Hydrometeore berechnet. Eine ausführlichere Beschreibung, inklusive der darin enthaltenen Parametrisierungen für homogene und heterogene Eisnukleation, folgt in Kapitel 2.2. Eine zweite Erweiterung simuliert die räumliche und zeitliche Ausbreitung von reaktiven Gasen und Partikeln in Wechselwirkung mit den meteorologischen Feldern der Basisversion. Die Erweiterung heißt ART (**A**erosols and **R**eactive **T**race gases) und ist in Kapitel 2.3 beschrieben.

2.1.3. Anfangs- und Randdaten

Das mesoskalige Modellsystem COSMO-ART wird durch Anfangs- und Randdaten für die meteorologischen Zustände bzw. den Partikel- und Spurengasgehalt angetrieben. Die meteorologischen Felder werden sechsstündig aktualisiert und bestehen aus interpolierten Daten der globalen operationellen atmosphärischen Modellanalyse des ECMWF (**E**uropean **C**entre for **M**edium-**R**ange **W**eather **F**orecasts). Für Aerosole und Gase werden keine Anfangs- und Randkonzentrationen eingelesen. Alle gasförmigen Bestandteile sind auf homogen verteilte Startkonzentrationen gesetzt. Die Emissionsraten von chemischen Komponenten des ART-Moduls sowie Ruß werden stündlich aus Analysedaten von TNO/MACC (**T**oegepast-**N**atuurwetenschappelijk **O**nderzoek (applied scientific research) / **M**onitoring **A**tmospheric **C**omposition and **C**limate) aktualisiert. Für Aerosolpartikel werden individuelle Startmassendichten verwendet, die zusammen mit individuellen Werten für die Größenverteilung deren Partikeldichte und Anzahlkonzentration zum Modellstart definieren. Primäre Partikelemissionen von Mineralstaub und Seesalz sind als Parametrisierung in Abhängigkeit von meteorologischen Bedingungen und Oberflächeneigenschaften enthalten (Kapitel 2.3). Landnutzungsdaten und konstante Oberflächeneigenschaften werden aus der GLC2000 (**G**lobal **L**and**C**over 2000) Datenbank bezogen. Als Vorbereitung auf die Simulation werden alle Parameter im Voraus aufbereitet, um dem rotierten Kugelkoordinatensystem des COSMO-ART zu entsprechen. Die Simulationen der vorliegenden Arbeit wurden auf einem Gebiet durchgeführt, das große Teile von Westeuropa einschließt, vom portugiesischen Festland bis ins nördliche Finnland. Es erstreckt sich auf dem rotierten Gitter bei einer

Auflösung von $0,125^\circ$ ($\cong 14 \text{ km}$) über 2849 km longitudinal und 3803 km latitudinal (Abbildung 2-2). In vertikaler Richtung reicht das Modell von der Erdoberfläche bis in 24 km Höhe, unterteilt in 40 geländefolgende Levels. Die großen Zeitschritte des dynamischen Runge-Kutta-Schemas betragen 30 s .

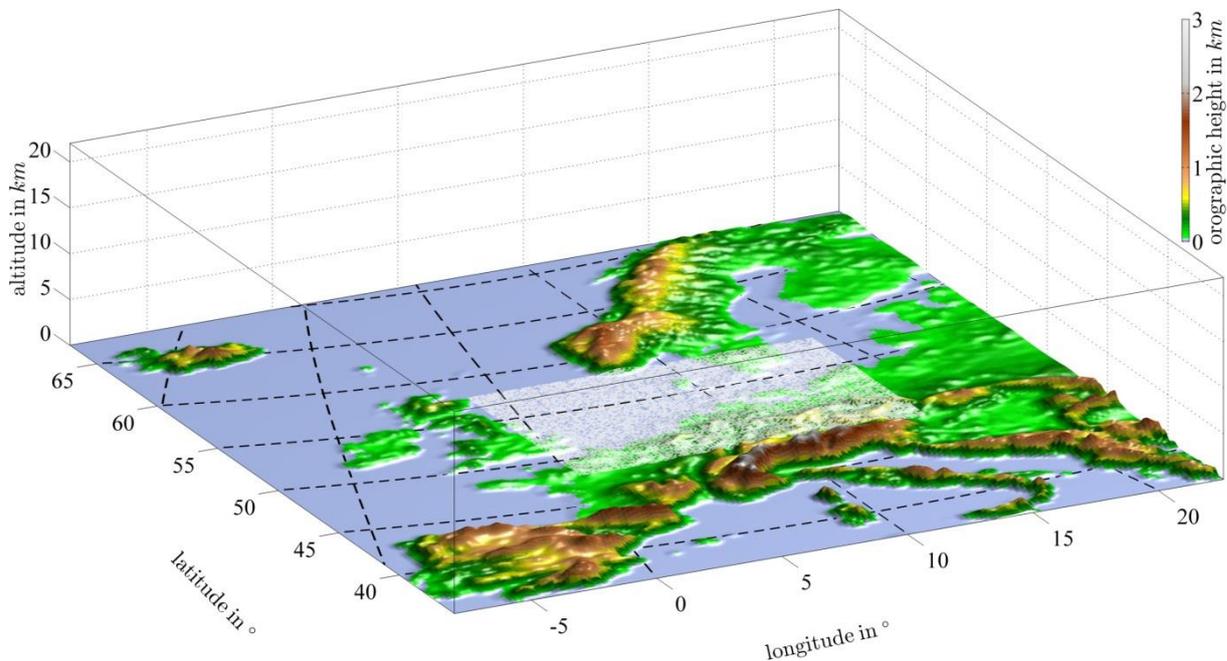


Abbildung 2-2: Das in der vorliegenden Arbeit verwendete Modellgebiet als Ausschnitt von Europa mit Angaben der Längen- und Breitengrade sowie der Höhe in km . Die Farbskala bezieht sich auf die Höhe der Orografie über dem Meeresspiegel in km . Innerhalb des weiß markierten Bereichs wurde der in Kapitel 5.5 beschriebene Vergleich zweier Szenarien durchgeführt.

2.2. Das Zwei-Momenten-Schema der Wolkenmikrophysik

Die Beschreibung der allgemeinen wolkenphysikalischen Prozesse erfolgt im Rahmen dieser Arbeit nur zusammengefasst. Eine detaillierte Beschreibung der Parametrisierungen des Zwei-Momenten-Wolkenmikrophysikschemas ist in Seifert und Beheng (2006) gegeben. In diesem Schema werden die zeitlichen Änderungsraten der Anzahlkonzentration N_x und Massendichte L_x für fünf Hydrometeore explizit berechnet, so dass alle relevanten Nukleationsprozesse parametrisiert sind. Das ermöglicht eine adäquate Betrachtung der Einflüsse von CCN und IN auf Wolken- und Niederschlagsprozesse. Sind mittels COSMO-ART Aerosolpartikel in die Simulation miteinbezogen, können diese als möglicher Nukleationskeim dienen, und so als Eingangsdaten für die Parametrisierungen der Nukleationsprozesse verwendet werden. Wie bei der Eisnukleation sind die übrigen mikrophysikalischen Parametrisierungen des Zwei-Momenten-Schemas in Prozesse der warmen Phase und der Eisphase unterteilt. Bildung und Wachstum von Wolken- und Regentropfen geschieht durch Nukleation, Kondensation und Ansammlung von Wasser. Dem wirkt die Evaporation in untersättigten Regionen und das Auseinanderbrechen aufgrund von Kollisionen entgegen.

Die Beschreibung der Anzahlgrößenverteilung der Tropfen $f_{x=l}(m)$ als Funktion ihrer Masse m wird durch partielle Potenzmomente ausgedrückt:

$$M_c^k = \int_0^{m^*} m^k f_x(m) dm \quad (2-21)$$

$$M_r^k = \int_{m^*}^{\infty} m^k f_x(m) dm \quad (2-22)$$

Ab einem Tropfenradius von $r^* = 40 \mu m$, was einer Tropfenmasse von $m^* = 2,6 \cdot 10^{-10} kg$ entspricht, wird im Modell zwischen Wolken- und Regentropfen unterschieden. Das Größenspektrum der Tropfen wird als generalisierte Γ -Verteilung beschrieben, das in zwei nicht zusammenhängende Größenverteilungsfunktionen für Wolken- ($x = c$) und Regentropfen ($x = r$) unterteilt ist. Ihre Anzahlkonzentration und Massendichte sind durch die ersten beiden partiellen Momente von $f_x(m)$ mit $M_c^0 = N_c$ und $M_r^0 = N_r$ für $k = 0$ bzw. $M_c^1 = L_c$ und $M_r^1 = L_r$ für $k = 1$ gegeben. Die Änderungsraten der partiellen Momente werden mittels mittlerer Windgeschwindigkeit, turbulenter Wärmediffusion und mittlerer Sedimentation beschrieben, und durch den Quellen- und Senkenterm S aufgrund von Nukleation, Kondensation bzw. Evaporation, Kollision bzw. Koaleszenz und Aufplatzen beeinflusst:

$$\frac{\partial M_x^k}{\partial t} = \underbrace{-\nabla \cdot [\vec{v} M_x^k]}_{\text{Advektion}} + \underbrace{\nabla \cdot [K_h \nabla M_x^k]}_{\text{Turbulenz}} - \underbrace{\frac{\partial}{\partial z} [\vec{v}_{sed,x,k} M_x^k]}_{\substack{\text{gravitationsbedingte} \\ \text{Sedimentation}}} + \underbrace{S_x^k}_{\substack{\text{mikrophysikalische} \\ \text{Quellen / Senken}} \quad (2-23)$$

Der Durchmesser D und die Endfallgeschwindigkeit v der fünf Hydrometeore sind über Potenzgesetze mit der jeweiligen Masse verknüpft:

$$D(m) \cong a m^b \quad (2-24)$$

$$v(m) \cong \alpha m^\beta \left(\frac{\rho_0}{\rho} \right)^\gamma \quad (2-25)$$

mit den konstanten Koeffizienten $a, b, \alpha, \beta, \gamma$ (Tabelle 1 in Seifert und Beheng (2006)). Für Wolken- und Regentropfen sind die Koeffizienten so gewählt, dass sie einem sphärischen Partikel entsprechen. Hydrometeore der Eisphase sind nicht-sphärisch und $D(m)$ bezieht sich in dem Fall auf den maximalen Durchmesser typischer Formen, die gemäß Locatelli und Hobbs (1974) bzw. Heymsfield und Kajikawa (1987) berechnet wurden. Für jede Hydrometeoriklasse sind obere und untere Grenzen der mittleren Masse definiert, damit ein physikalisch sinnvoller Bereich eingehalten wird.

Die Depositionsnukleation zu Wolkeneis ist nur in eisübersättigten Bereichen möglich. Die Nukleationsrate ist als Beziehung der verfügbaren Eiskeimanzahl N_{IN} , bei entsprechender Temperatur T und entsprechendem Sättigungsverhältnis bezüglich einer Eisoberfläche S_i , zu der im Gitterpunkt bereits vorhandenen Eiskristallanzahl N_i definiert:

$$\left. \frac{\partial N_i}{\partial t} \right|_{nuc} = \begin{cases} \frac{N_{IN}(S_i, T) - N_i}{\Delta t} & \text{if } S_i \geq 1 \text{ and } N_i < N_{IN}(S_i, T) \\ 0 & \text{else} \end{cases} \quad (2-26)$$

Die Änderung der Massendichte bei Neubildung von Wolkeneis wird durch Anwenden der minimalen Masse der Eiskristalle $m_{i,nuc} = 1 \cdot 10^{-12} \text{ kg}$ ($D(m_{i,nuc}) = 51,6 \mu\text{m}$) auf die Änderung der Wolkeneisanzahlkonzentration berechnet:

$$\left. \frac{\partial L_i}{\partial t} \right|_{nuc} = m_{i,nuc} \left. \frac{\partial N_i}{\partial t} \right|_{nuc} \quad (2-27)$$

Die Anzahl der Eiskeime kann durch eine aerosolunabhängige Parametrisierung (z.B. Meyers et al., 1992) berechnet werden. Für die Simulationen in der vorliegenden Arbeit ist diese durch aerosolspezifische Parametrisierungen ersetzt (Kapitel 3). Das weitere Wachstum von Eiskristallen durch Deposition von Wasserdampf geschieht, wenn die Umgebung der Eiskristalle wasserübersättigt ist. Die Wachstumsrate von Eiskristallen durch Wasserdampfdeposition ist von der Beschreibung für Tropfen abgeleitet. Dabei ist der Partikelradius durch eine Aufnahmefähigkeit in Abhängigkeit der Kristallgeometrie (für sphärische Partikel identisch dem Radius) ersetzt (Pruppacher und Klett, 1997). Bei der Berechnung für die Eisphase wird eine konstante Aufnahmefähigkeit für hexagonale Platten angenommen. In beiden Formulierungen (für Tropfen und Eiskristalle) wird der Einfluss der Oberflächenkrümmung und der Lösungseffekt vernachlässigt.

Alternativ zur Depositionsnukleation können Eiskristalle durch das Gefrieren von Wolkentropfen entstehen. Dies geschieht entweder homogen unterhalb von -38°C oder heterogen via Immersions- oder Kontaktgefrieren, indem ein Partikel als Eiskeim fungiert (Kapitel 3). Die Änderungsrate der Eiskristallanzahl wird ähnlich der Depositionsnukleationsrate in Gleichung (2-26) berechnet, allerdings ist die Anzahl der verfügbaren Eiskeime $N_{IN}(T)$ nur von T abhängig. Der gegenläufige Transferprozess von der Eisphase in die Flüssig- und Gasphase geschieht durch Schmelzen (und anschließendem Verdampfen) der Eispartikeln, abhängig vom Durchmesser und der Temperatur relativ zu 0°C . Die turbulente interne Zirkulation des Schmelzwassers wird dabei berücksichtigt.

Die mögliche Interaktion verschiedener Hydrometeore miteinander, durch Kollision aufgrund relativer Geschwindigkeitsunterschiede, ist in einer Einflussmatrix zusammengefasst (Tabelle 2 in Seifert und Beheng, 2006). Im Allgemeinen ist die Änderungsrate der Potenzmomente kollidierender Hydrometeore durch einander entgegen gerichteter Kollisionsintegrale gegeben. Der Kern des Integrals wird durch eine mittlere Kollisions- und Haftungseffizienz, nur abhängig von der mittleren Masse, einem charakteristischen Geschwindigkeitsunterschied und einem geometrischen Term, abhängig von den Durchmessern beider Hydrometeore, ausgedrückt. Durch Annahme einer Γ -verteilten Anzahlkonzentration und Potenzgesetzen für die Masse-Durchmesser- und Masse-Geschwindigkeits-Beziehung in den Gleichungen (2-24) bzw. (2-25) können die Geschwindigkeitsunterschiede und somit das Kollisionsintegral analytisch integriert werden.

2.3. Das gekoppelte Modul zur Ausbreitung von Aerosolen und reaktiven Spurengasen (ART)

2.3.1. Verteilung von partikelhaltigen und gasförmigen Komponenten

Die zeitliche und räumliche Verteilung von Aerosolpartikeln und Gasen wird in dem beidseitig miteinander wechselwirkenden Modellsystem COSMO-ART auf Grundlage der dynamischen Entwicklung einer Strömung simuliert. Für Aerosolpartikel und Gase wird dieselbe Gitterstruktur und zeitliche Integration wie für meteorologische Variablen in COSMO verwendet. Dadurch kann die Wechselwirkung zwischen Prozessen der Gas- und Aerosolphase und meteorologischen Variablen wiedergegeben werden. Zusätzlich zum Transport nicht-reaktiver Spurengase und Aerosole können Prozesse der Gasphasenchemie und Aerosoldynamik (z.B. Koagulation) berechnet werden. Das beinhaltet die Entstehung von Sekundäraerosolen durch Nukleation und Kondensation von Gasphasenbestandteilen und die Emission von Primäraerosolen als Funktion von meteorologischen Bedingungen und Oberflächenparametern. Die in Stockwell et al. (1990) detailliert beschriebene und nach Vogel et al. (2009) aktualisierte Gasphasenchemie beinhaltet die photochemische Entstehung gasförmiger Vorläufer für Sekundäraerosole.

Für die Beschreibung aerosoldynamischer Prozesse in COSMO-ART muss die Veränderung von physikalischen und chemischen Eigenschaften der atmosphärischen Aerosolpartikel berücksichtigt werden. Um den damit einhergehenden Größenbereich der Partikel zu erfassen, kann die Anzahlkonzentration einer Aerosolpopulation mithilfe einer kontinuierlichen Verteilungsfunktion $n(d_p)$ ausgedrückt werden. Anders als in der Beschreibung des Zwei-Momenten-Schemas (Kapitel 2.2), mit der Konzentration von Hydrometeoren als Funktion der Masse m , wird für Aerosole eine Beschreibung abhängig des Partikeldurchmessers d_p verwendet. Aus der Integration der Verteilung über d_p von 0 bis ∞ ergibt sich die Gesamtanzahlkonzentration N der Partikel. Im Allgemeinen kann das k -te Moment einer Verteilungsfunktion M_k definiert werden. Das nullte Moment ist dann gleich der Gesamtanzahlkonzentration ($M_0 = N$), das erste Moment entspricht dem mittleren Durchmesser der Anzahlverteilung ($\frac{M_1}{N} = \bar{d}_p$), und das zweite und dritte Moment ist proportional zur Verteilung der Oberflächen- ($\pi M_2 = S$) und Massedichte ($\frac{\pi}{6} \rho_p M_3 = L$). Unter Annahme sphärischer Aerosolpartikel ist:

$$M_k = \int_0^{\infty} n(d_p) d_p^k dd_p \quad (2-28)$$

In COSMO-ART wird die Größenverteilung der Aerosolpopulation näherungsweise durch mehrere individuelle, sich überlagernde Moden j aufgeteilt, die von der Größe und chemischen Zusammensetzung der Partikel abhängen und durch logarithmische Normalverteilungen beschrieben werden:

$$n_j(d_p) = \frac{1}{d_p} \frac{N_j}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_j} \exp\left(-\frac{\ln^2(d_p/\bar{d}_{p,j})}{2 \ln^2 \sigma_j}\right) \quad (2-29)$$

$$n(d_p) = \sum_j n_j(d_p) \quad (2-30)$$

$$N = \sum_j N_j = \sum_j \int_0^\infty n_j(d_p) dd_p \quad (2-31)$$

Die zeitliche Änderung der Partikelgrößenverteilung kann so anhand der Parameter der Verteilungsfunktion, Gesamtanzahlkonzentration N , mittlerer Durchmesser \bar{d}_p und Standardabweichung σ , berechnet werden. Diese sind wiederum in ihrer zeitlichen Entwicklung durch aerosoldynamische Prozesse beeinflussbar. Wirken dabei interne und externe aerosoldynamische Prozesse (z.B. Koagulation und Diffusion) innerhalb eines Zeitschrittes auf dieselbe Aerosolpopulation, haben d_p und σ beim Überschreiten der Randbereiche der Verteilung keine sinnvolle Bedeutung (Whitby und McMurry, 1997). Deshalb wird die Verteilung der k -ten Momente mithilfe der Lognormalverteilung $n_j(d_p)$ gelöst, wodurch sich das k -te Moment M_j^k der Mode j ergibt. Die Parameter der Lognormalverteilung können dann aus verschiedenen Momenten derselben Verteilung berechnet werden:

$$M_j^k = \int_0^\infty n_j(d_p) d_p^k dd_p = N_j d_{p,j}^k \exp\left(\frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_j\right) \quad (2-32)$$

Die zeitliche Änderung der Aerosolgrößenverteilung wird aus den Momenten der Verteilungsfunktion berechnet. Um bei der Anwendung von COSMO-ART den Rechenaufwand zu verringern, werden die Gleichungen für $N_j = M_j^0$ und $L_j \propto M_j^3$ gelöst und σ_j ist konstant. Nach Doms und Schättler (2002) folgt für die zeitliche Entwicklung der Anzahlkonzentration und Massendichte:

$$\frac{\partial \{N_j, L_j\}}{\partial t} = \underbrace{-\nabla \cdot [\vec{v}\{N_j, L_j\}]}_{\text{Advektion}} + \underbrace{\nabla \cdot \vec{F}_{\{N_j, L_j\}}}_{\text{Turbulenz}} - \underbrace{\frac{\partial}{\partial z} [\bar{v}_{sed,j}\{N_j, L_j\}]}_{\substack{\text{gravitationsbedingte} \\ \text{Sedimentation}}} + \underbrace{S_{\{N_j, L_j\}}}_{\substack{\text{mikrophysikalische} \\ \text{Quellen / Senken}}} \quad (2-33)$$

mit dem turbulenten Fluss $\vec{F}_{\{N_j, L_j\}} = -\overline{\vec{v}'\{N_j, L_j\}'}$, wobei \vec{v}' und $\{N_j, L_j\}'$ die vom Modell nicht-auflösbaren, turbulenten Fluktuationen von \vec{v} und $\{N_j, L_j\}$ sind. \vec{v} und $\{N_j, L_j\}$ beschreiben massengewichtete, zeitliche und räumliche Mittelwerte für jede Gitterbox. Der Mediandurchmesser der Anzahlgrößenverteilung d_g kann aus Anzahlkonzentration und Massendichte bestimmt werden:

$$d_{g,j} = \sqrt[3]{\frac{L_j}{\frac{\pi}{6} \rho_p \exp\left(\frac{9}{2} \ln^2 \sigma_j\right) N_j}} \quad (2-34)$$

Für die Aufgabenstellung der vorliegenden Arbeit wird die Ausbreitung von PBAP mit COSMO-ART simuliert (Kapitel 2.3.2 und 2.4). In dem verwendeten Modellsetup besteht keine Interaktion der PBAP mit den übrigen Komponenten der Gas- und Partikelphase, beispielsweise mittels Kondensation oder Koagulation. Die zusätzlich zu den PBAP vorhandenen atmosphärischen Aerosole werden durch direkte Emissionen oder Partikelneubildung aus der Gasphase in das Modell eingetragen. Die Emissionsraten der gasförmigen Bestandteile sind in den Randdaten vorgeschrieben (Kapitel 2.1.3). Die Aufteilung von anorganischen Aerosolbestandteilen, wie Sulfat (SO_4^{2-}), Ammonium (NH_4^+) und Nitrat (NO_3^-), zwischen Partikel- und Gasphase wird durch das Modul ISORROPIA II simuliert (Fountoukis und Nenes, 2007). Die Entstehung von sekundären organischen Aerosolen (SOA) geschieht über die Kondensation von oxidierten flüchtigen Kohlenwasserstoffverbindungen (Schell et al., 2001). Falls Ruß nicht als fester Kondensationskeim miteinbezogen wird, ist die Bildung von Clustern durch die binäre Nukleation von Schwefelsäure und Wasser möglich, die als eigene Partikelmode behandelt werden. Aufgeteilt auf jeweils zwei Größenbereiche, mit und ohne Rußkern, ergeben sich vier Moden, die als intern gemischt angenommen werden. Partikel einer zusätzlichen Rußmode ohne Mischung mit anderen chemischen Bestandteilen werden direkt in die Atmosphäre emittiert. Anthropogene primäre Aerosole (aPA) kleiner als $10 \mu\text{m}$ im Größenbereich grober Partikel bilden eine separate Mode der Gesamtaerosolgrößenverteilung. Eine ausführliche Beschreibung des als $\text{MADE}_{\text{soot}}$ bezeichneten Moduls ist in Vogel et al. (2009) gegeben. Darüber hinaus beinhalten die Modellsimulationen Seesalzaerosole in drei Größenmoden, deren Emissionsstärke von der Meerestemperatur und der Windgeschwindigkeit abhängen (Lundgren et al., 2013). In dem gewählten Setup ist kein Eintrag von Mineralstaub enthalten, da das Modellgebiet keine Emissionsgebiete, wie etwa die Sahara, miteinschließt und der Transport über den Modellrand nicht miteinbezogen wird.

2.3.2. Anpassung des Staubmoduls zur Simulation von Bodenstaub mit organischen Komponenten

Die Modellsimulationen der vorliegenden Arbeit beinhalten zusätzlich zu den PBAP Mischpartikel aus biologischen Bestandteilen und Mineralstaub. Wie in Kapitel 1.4 beschrieben, können organische Bestandteile oder Mikroorganismen als Agglomerat zusammen mit Bodenstaubpartikeln in die Atmosphäre gelangen. Damit feine Staubpartikel ($d_a < 10 \mu\text{m}$) emittiert und dadurch luftgetragen über große Entfernungen transportiert werden können, benötigt es einen Freisetzungsprozess, hauptsächlich durch Winderosion oder Bodenbestellung (Alfaro und Gomes, 2001; Funk et al., 2008). Quellgebiete für die Winderosion von Bodenstaub mit organischem Anteil sind fruchtbare Böden. Diese Böden bieten zum einen

ausreichend Nährstoffe für eine hohe Aktivität von Mikroorganismen und sind zum anderen erosionsanfällig, wenn der Boden vorwiegend trocken und sandig ist und einen geringen Vegetationsanteil hat (Chen et al., 1996). Staubemission durch Bodenbearbeitung kann zusätzlich auf nicht erosionsanfälligen Böden mit hohem Schluff- und Tongehalt stattfinden, da die von diesem Bodentyp ausgebildete Kruste mechanisch aufgebrochen wird (Funk et al., 2008).

In der vorliegenden Arbeit wird die Winderosion von Bodenstaub mit organischem Anteil (im Weiteren lediglich als Bodenstaub bezeichnet) von landwirtschaftlich genutzten, nicht permanent bewässerten Flächen betrachtet. Für die Simulation von Advektion und turbulenter Diffusion der Bodenstaubpartikel wird in COSMO-ART das Staubmodul (MAD_{dust}) verwendet, das ursprünglich für die Ausbreitung von Wüstenstaubpartikeln entwickelt wurde (Vogel et al., 2006). Die darin enthaltene Emissionsparametrisierung wurde für die Winderosion auf die Textureigenschaften der Quellgebiete von Bodenstaubpartikeln angepasst. Der zum Simulationsstart verwendete Mediandurchmesser der Größenverteilung der Massendichte d_{g3} , die konstante Standardabweichung σ , sowie der Startwert der Partikeldichte ρ_S sind in Tabelle 2-1 angegeben.

Tabelle 2-1: Für die Simulation verwendete Partikeleigenschaften des Bodenstaubs, aufgeteilt in drei Moden der Größenverteilung: Mediandurchmesser von Anzahlkonzentration d_g und Massendichte d_{g3} , sowie Partikeldichte ρ_S zum Zeitpunkt der Initialisierung des Modells und festgesetzte Standardabweichung σ (nach Alfaro und Gomes, 2001; Vogel et al., 2009).

	Mode 1	Mode 2	Mode 3
d_g (μm)	0,64	3,45	8,67
d_{g3} (μm)	1,5	6,7	14,2
ρ_S (kg/m^3)	$2,6 \cdot 10^3$	$2,6 \cdot 10^3$	$2,6 \cdot 10^3$
σ	1,7	1,6	1,5

Die Staubemission stellt einen zusätzlichen Quellterm S der Massendichte in Gleichung (2-33) dar. Für jede Mode j einer lognormalen Partikelgrößenverteilung gibt S_j die Divergenz eines vertikalen Massenflusses $F_{v,j}$ an:

$$S_j = -\frac{\partial}{\partial z} F_{v,j} \approx \frac{F_{v,j}}{\Delta z_S} \quad j = 1, \dots, 3 \quad (2-35)$$

Der Emissionsfluss aller Moden F_v ist als Summe der einzelnen Flüsse der Mode j definiert:

$$F_v = \sum_{j=1}^3 F_{v,j} \quad (2-36)$$

Der vertikale Gesamtmassenfluss $F_{v,j}$ der Mode j ist als Integral des vertikalen Flusses $f_{v,j}$ eines Bodenstaubpartikels der Größe d_S über den Größenbereich der Verteilung definiert. Zusätzlich ist der Gesamtfluss mit dem Verhältnis der Querschnittsfläche des

Partikels der Größe d_S zur mittleren Querschnittsfläche C_S der Größenverteilung der Anzahlkonzentration gewichtet.

$$F_{v,j} = \int_{-\infty}^{\infty} f_{v,j}(d_S) \frac{C_S}{\int_{-\infty}^{\infty} C_S d \ln d_S} d \ln d_S \quad (2-37)$$

Die Größenverteilung von Anzahlkonzentration und Massendichte hängen nach Gleichung (2-28) und (2-34) durch:

$$n(d_S) = L(d_S) \frac{6}{\pi \rho_S d_S^3} \quad (2-38)$$

zusammen, wodurch sich folgende Formulierung der Querschnittsfläche ergibt:

$$C_S = \frac{\pi}{4} d_S^2 n(d_S) = \frac{3}{2 \rho_S d_S} L(d_S) \quad (2-39)$$

Der Freisetzungsprozess wird ausgelöst, wenn die Bindungsenergie der Bodenstaubpartikel durch die kinetische Energie auftreffender grober Bodenpartikel überwunden wird. Benötigt wird dieser Prozess, um die relativ hohe Kohäsionskraft bei feinen Partikeln zu überwinden. Grobe Bodenpartikel werden hingegen eher durch Scherung oder Schubspannung vom Wind abgelöst. Die kinetische Energie resultiert aus einer als Saltation bezeichneten, vom Wind ausgelösten horizontalen Bewegung grober Partikel. Dieser Prozess tritt ein, wenn die Schubspannungsgeschwindigkeit einen bestimmten Schwellenwert überschreitet, ab dem die Auftriebs- und Reibungskraft die ihr entgegenwirkenden Kräfte durch Gravitation und Kohäsion überwindet. Für die Parametrisierung der Staubemission wird angenommen, dass der horizontale Saltationsfluss proportional zum vertikalen Emissionsfluss ist (Marticorena und Bergametti, 1995). Der vertikale Emissionsfluss eines einzelnen Staubpartikels $f_{v,j}$ ist gegeben durch den Fluss kinetischer Energie eines Saltationspartikels F_{kin} mit einem Anteil p_j an der Mode j , der abhängig von der kinetischen Energie e_{kin} der Saltationspartikel ist, reduziert durch die Bindungsenergie e_j der feinen Emissionspartikel:

$$f_{v,j}(d_S) = \frac{\pi}{6} \rho_S d_{g,j}^3 \frac{p_j(d_S) F_{kin}(d_S)}{e_j} \quad (2-40)$$

Der Faktor p_j teilt F_{kin} je nach verfügbarer kinetischer Energie auf die Moden j der vertikal freigesetzten Partikel auf, wobei $\sum_{j=1}^3 p_j = 1$ für $e_{kin} > e_3$ gilt. Dadurch wird berücksichtigt, dass bei geringem e_{kin} aufgrund der niedrigeren Bindungsenergie mehr Partikel der großen Mode freigesetzt werden, bei hohem e_{kin} hingegen fast ausschließlich das Freisetzen von Partikel der feinen Mode beobachtet wurde. Unterhalb eines für jede Mode spezifischen Schwellenwertes der Bindungsenergie e_j (mit $e_1 = 3,61$; $e_2 = 3,52$; $e_3 = 3,46$; in $g \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) werden Partikel dieser Mode nicht mehr freigesetzt ($p_j = 0$ für $e_{kin} < e_j$). Ist die kinetische Energie der Saltationspartikel höher als der jeweilige Schwellenwert e_l gilt:

$$\begin{aligned}
p_{j=1} &= \frac{e_{kin} - e_1}{e_{kin} - e_3} \\
p_{j=2} &= (1 - p_1) \frac{e_{kin} - e_2}{e_{kin} - e_3} \\
p_{j=3} &= 1 - p_1 - p_2 \quad \text{if } e_{kin} \geq e_j
\end{aligned} \tag{2-41}$$

Die kinetische Energie der Saltationspartikel ist durch deren Masse und Geschwindigkeit beim Auftreffen, die mit $v = 20 u_* = \sqrt{4 \cdot 10^2} u_*$ abgeschätzt ist (Alfaro und Gomes, 2001), definiert:

$$e_{kin}(d_S) = \frac{\pi}{3} \rho_S d_S^3 (10 u_*)^2 \tag{2-42}$$

Mit der Proportionalitätsannahme zwischen vertikalem Emissionsfluss und horizontalem Saltationsfluss ist der kinetische Energiefluss der Saltationspartikel gegeben durch:

$$F_{kin}(d_S) = \beta f_h(d_S) \tag{2-43}$$

mit einem Proportionsfaktor $\beta = 163 \text{ m s}^{-2}$. Der horizontale Saltationsfluss f_h ist proportional zu u_*^3 (Bagnold, 1941), falls u_* größer als der Schwellenwert der Schubspannungsgeschwindigkeit u_{*t} ist. f_h wird im $\text{MADE}_{\text{dust}}$ durch ein Polynom dritter Ordnung dargestellt (White, 1979):

$$f_h(d_S) = C \frac{\rho}{g} u_*^3 \left(1 + \frac{u_{*t}(d_S)}{u_*} \right) \left(1 - \frac{u_{*t}^2(d_S)}{u_*^2} \right) \tag{2-44}$$

mit der Konstanten C , die die Verfügbarkeit von losen Partikeln auf einer Erdoberfläche wiedergibt. Der Wert von $C = 0,02$ ist für die Anwendung dieser Parametrisierung an Messungen in einer semiariden landwirtschaftlichen Fläche in Spanien angepasst (Gomes et al., 2003). Für $u_* = u_{*ts}$ (mit dem Schwellenwert des Saltationsflusses u_{*ts} unter ebenen, trockenen Bedingungen) herrscht bei Vernachlässigung der Strömungsverhältnisse ein Kräftegleichgewicht zwischen Reibungs- und Auftriebskraft sowie Gravitations- und Kohäsionskraft. Näherungsweise kann der Reibungskoeffizient C_d und die Windgeschwindigkeit v durch einen Koeffizienten K_d und u_* ausgedrückt werden. In der Gleichung der Auftriebskraft ist die Reduzierung des Drucks Δp aufgrund der Überströmung eines Partikels proportional zu v^2 und kann näherungsweise mit u_* und einem Koeffizienten K_b angegeben werden. Zur Bestimmung von u_{*ts} wird ein Gleichgewicht zwischen den jeweiligen Drehmomenten der Kräfte betrachtet, wobei $a \cdot r$ den Kraftarm mit dem Partikelradius r angibt (Shao et al., 1993):

$$(a_d K_d + a_g K_b) \rho u_{*ts}^2 d_S^2 = a_g \frac{\pi}{6} \rho_S g d_S^3 + a_k \beta d_S \tag{2-45}$$

mit den Indizes d für die Reibungs-, g für die Gravitations-, k für die Kohäsions- und b für die Auftriebskraft. Nach Shao und Lu (2000) kann u_{*ts} unter Verwendung von empirisch bestimmten Parametern A_N und γ berechnet werden:

$$u_{*ts}(d_s) = \sqrt{A_N \left(\frac{\rho_s}{\rho} g d_s + \frac{\gamma}{\rho d_s} \right)} \quad (2-46)$$

mit

$$A_N = \frac{\pi}{6} \frac{a_g}{a_d K_d + a_g K_b} = 0,0123 \quad (2-47)$$

und

$$\gamma = \frac{6 \beta a_k}{\pi a_g} = 3 \cdot 10^{-4} \frac{kg}{s^2} \quad (2-48)$$

Zusätzlich kann Rauheit oder Feuchtigkeit des Bodens den Schwellenwert der Schubspannungsgeschwindigkeit u_{*ts} für den Saltationsfluss verringern (Marticorena und Bergametti, 1995). Dieser Einfluss wird mit zwei empirisch bestimmten Funktionen f berücksichtigt:

$$u_{*t}(d_s) = \frac{f_\eta u_{*ts}(d_s)}{f_{z_0}} \quad (2-49)$$

mit der Funktion f_{z_0} der Veränderung durch Bodenrauheit in Millimetern unter Verwendung der Rauheitslänge z_0 und z_{0s} bei ebenem Boden (Alfaro und Gomes, 2001):

$$f_{z_0} = 1 - 0,55 (z_0)^{0,4} \ln \left(\frac{z_0}{z_{0s}} \right) \quad (2-50)$$

und der Funktion f_η zur Berücksichtigung der Bodenfeuchtigkeit bei $\eta > \eta'$ (Fécan et al., 1998):

$$f_\eta = \sqrt{1 + 1,21 (\eta - \eta')^{0,68}} \quad (2-51)$$

mit dem volumetrischen Bodenwassergehalt η und einem Minimalwert η' in Prozent für trockene Bedingungen, abhängig vom Tongehalt.

Für die Anpassung der Emissionsparametrisierung an landwirtschaftliche Flächen in Europa wurde, zusätzlich zu der Konstanten C , die Größenverteilung der Partikel im Erdboden auf die vorhandene Bodentextur angepasst. Die räumliche Verteilung der Bodentextur mit einer horizontalen Auflösung von 1 km stammt von der Bodendatenbank des ESBN (European Soil Bureau Network) der Europäischen Kommission. Abbildung 2-3 zeigt die Verteilung der dominanten Bodentexturklassen angepasst an die Domäne der in dieser Arbeit durchgeführten Simulationen.

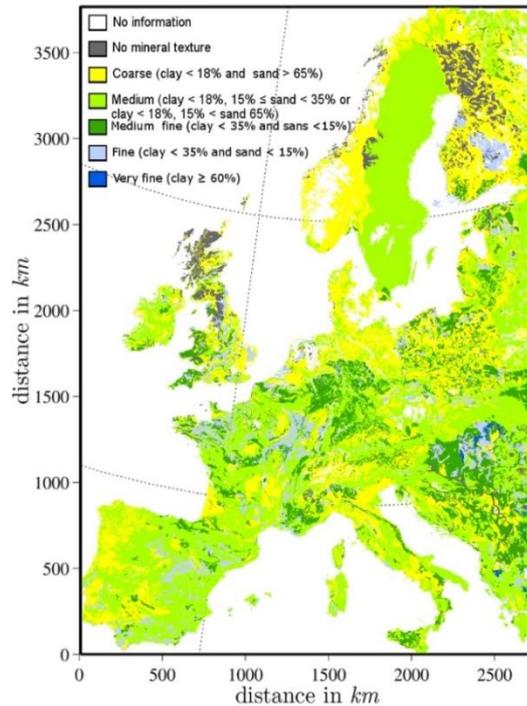


Abbildung 2-3: Dominante Bodentexturen in dem Gebiet der verwendeten Modellsimulation in einer Auflösung von 1 km (CEC, 1985).

Die Bodentexturen sind entsprechend ihrem Anteil an Ton, Schluff und Sand in fünf verschiedene Klassen unterteilt (nach CEC, 1985). Die Partikel der verschiedenen Bestandteile können meist einem bestimmten Größenbereich zugeordnet werden. Für die Klasseneinteilung nach CEC (1985) war in der Literatur keine Größenverteilung der Partikel verfügbar. Daher wurden die Bodentexturen äquivalenten Texturklassen nach der USDA-Klassifizierung (**U**nited **S**tates **D**epartment of **A**griculture) zugeordnet. Die Größenverteilung der USDA-Texturklassen besteht aus drei übereinander gelagerten, logarithmischen Normalverteilungen spezifiziert nach Zakey et al. (2006). Da die USDA-Texturen in zwölf, anstelle von fünf Klassen (bei CEC, 1985) unterteilt sind, ist der Anteil n der jeweiligen Mode entsprechend der Übereinstimmung zum Ton-, Schluff und Sandgehalt der CEC-Texturklasse angepasst. Der Mediandurchmesser d_g und die Standardabweichung σ sind von der am besten übereinstimmenden Texturklasse übernommen worden. Die daraus resultierende Größenverteilung ist in Tabelle 2-2 angegeben.

Tabelle 2-2: Größenverteilungen der dominanten Bodentextur mit dem Anteil der Mode an der Gesamtverteilung n , dem mittleren geometrischen Durchmesser d_g und der Standardabweichung σ (nach CEC, 1985), unterteilt in drei Moden (abgeleitet aus Zakey et al., 2006).

	Mode 1			Mode 2			Mode 3		
	n	d_g (μm)	σ	n	d_g (μm)	σ	n	d_g (μm)	σ
sehr fein	0,4	100	1,8	-	-	-	0,6	0,5	1,8
fein	0,4	100	1,8	0,35	50	1,7	0,25	1	1,8
mittelfein	0,5	520	1,6	0,35	75	1,7	0,15	2,5	1,8
mittel	0,3	520	1,6	0,5	75	1,7	0,2	2,5	1,8
grob	0,65	690	1,6	0,2	100	1,7	0,15	10	1,8

Zur Zuordnung der Winderosion zu landwirtschaftlich genutzten Flächen wird $F_{v,j}$ mit dem Flächenanteil von Ackerflächen p_{soil} an der Gesamtfläche einer Gitterbox gewichtet. Dazu werden Daten des ultrahochempfindlichen Radiometers (AVHRR, **A**dvanced **V**ery **H**igh **R**esolution **R**adiometer) des NOAA (**N**ational **O**ceanographic and **A**tmospheric **A**dministration) verwendet (Townshend, 1994). Neben der Einteilung in verschiedene Landnutzungsflächen werden aus den Fernerkundungsdaten Zeitreihen der Vegetationsveränderung als NDVI (**N**ormalized **D**ifference **V**egetation **I**ndex) abgeleitet, die im PELCOM-Projekt (**P**an-European **L**and **C**over **M**onitoring) für das Gebiet Europa aufbereitet wurden (Champeaux et al., 2000). Für die Winderosion wurde der Flächenanteil von nicht permanent bewässertem, fruchtbarem Ackerboden f_{crops} mit dem monatlich aufgelösten Vegetationsanteil f_{veg} verrechnet:

$$p_{soil} = f_{crops} (1 - f_{veg}) \quad (2-52)$$

Exemplarisch zeigt Abbildung 2-4 den Flächenanteil p_{soil} der Winderosion für den Monat April.

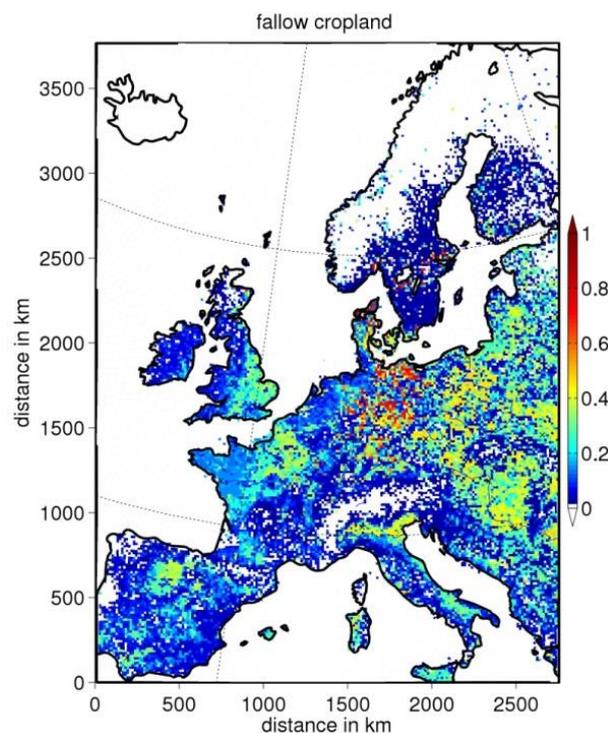


Abbildung 2-4: Anteil an brachliegenden Ackerflächen p_{soil} pro Gitterbox in der verwendeten Modelldomäne für den Monat April, berechnet aus Daten von PELCOM (Champeaux et al., 2000).

2.4. Die Modellerweiterung zur Ausbreitung von biologischen Aerosolpartikeln

2.4.1. Atmosphärische Ausbreitung

Eine zusätzliche Erweiterung des Modellsystems COMSO-ART bietet ein Pollenmodul, das unabhängig von den übrigen Aerosolen betrieben werden kann. Die in dem Modul enthaltenen Partikel sind monodispers und tragen nicht zur Gesamtpartikelgrößenverteilung bei. Zu Beginn dieser Arbeit beinhaltete das Pollenmodul die Ausbreitung von Birkenpollen inklusive einer Emissionsparametrisierung in Abhängigkeit der Birkenbaumverteilung. Der Schweizer Wetterdienst MeteoSchweiz verwendet COSMO mit aktiviertem Pollenmodul operationell mit verschiedenen allergierelevanten Pollen (von Hasel, Erle, Esche, Birke, Gräsern, Beifuß und Ambrosia) (MeteoSchweiz, 2013). Die dafür benötigten Baumverteilungen basieren auf dem Schweizer Forstinventar und können zentraleuropaweit extrapoliert werden, indem den Landnutzungskategorien des GLC2000 anhand des Schweizer Forstinventars eine bestimmte Baumdichte zugewiesen wird (Pauling et al., 2012). Für die Pollensimulationen der vorliegenden Arbeit ist die Verwendung der extrapolierten Baumverteilung nur bedingt anwendbar, da die Vegetationseigenschaften der Regionen des verwendeten Modellgebiets (Kapitel 2.1.3) stark von denen des Kalibrierungsgebietes Schweiz abweichen können (Pauling et al., 2012). Die in dieser Arbeit angewandten Emissionsparametrisierungen für Birken- und Kiefernpollen sowie für Pilzsporen und Bakterien sind in den Kapiteln 2.4.2 bis 2.4.4 beschrieben.

Die zeitliche Entwicklung der PBAP-Anzahlkonzentration wird, wie in Gleichung (2-33) für die übrigen Aerosolpartikel, durch Advektion, turbulente Diffusion, Quellen (Emission) und Senken (Sedimentation und Auswaschen) beeinflusst:

$$\rho \frac{\partial \Psi}{\partial t} = -\nabla \cdot [\vec{v} \Psi] - \nabla \cdot \vec{F}_T - \frac{\partial}{\partial z} F_S - \varepsilon \Psi + S \quad (2-53)$$

mit dem Massenmischungsverhältnis

$$\Psi = \frac{N_f}{N} \quad (2-54)$$

der PBAP-Anzahlkonzentration N_f zur Gesamtanzahlkonzentration der Partikel N pro m^3 , der Luftdichte ρ , dem turbulenten Fluss \vec{F}_T , dem Sedimentationsfluss F_S , einem Koeffizient für das Auswaschen der PBAP ε und einem Quellterm S (Vogel et al., 2008). Der turbulente Fluss wird mit $\vec{F}_T = \overline{\rho \cdot v' \cdot \Psi'}$ aus den nicht-auflösbaren, turbulenten Fluktuationen der Windgeschwindigkeit v' und des PBAP-Massenmischungsverhältnisses Ψ' berechnet. Der Sedimentationsfluss $F_S = \rho \cdot \Psi \cdot v_{sed}$ wird aus der Sedimentationsgeschwindigkeit v_{sed} der PBAP berechnet, die von dem volumen-äquivalenten Partikeldurchmesser d_e abhängt:

$$v_{sed}^2 = \frac{4 \cdot \rho_{P, sed} \cdot d_e \cdot g}{3 \cdot \rho \cdot c_d} \quad (2-55)$$

mit

$$d_e = 2 \sqrt[3]{a^2 b} \quad (2-56)$$

bei dem a und b der kleine und große Radius eines gestreckten Sphäroids ist, das für die Sedimentation näherungsweise die Form der PBAP wiedergibt. c_d ist der Drag-Koeffizient. Für die Sedimentation wird die Partikeldichte $\rho_{P, sed}$ berechnet sich nach:

$$\rho_{P, sed}(d_e) = \rho_{H_2O} \left(1 - \frac{d_f}{d_e}\right)^3 + \rho_P \left(\frac{d_f}{d_e}\right)^3 \quad (2-57)$$

mit der Dichte von Wasser ρ_{H_2O} und fester Partikelbestandteile ρ_P und dem Partikeldurchmesser d_f im trockenen Zustand (Aylor, 2002). Die in dieser Arbeit verwendeten physikalischen Eigenschaften der PBAP sind in Tabelle 2-3 zusammengefasst. Der Koeffizient ε für das Auswaschen der PBAP beinhaltet die Annahme, dass Regentropfen sehr viel größer als PBAP sind und somit eine wesentlich höhere Endfallgeschwindigkeit haben:

$$\varepsilon(d_P) = \int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} D_D^2 \cdot v_t(D_D) \cdot E(d_P, D_D) \cdot n(D_D) dD_D \quad (2-58)$$

D_D ist der Durchmesser von Regentropfen, E ist die Kollisionseffizienz zwischen Regentropfen und PBAP, und $n(D_D)$ ist die Anzahlgrößenverteilung der Regentropfen (Rinke, 2008). E ist für Partikel mit einem Durchmesser von $3 \mu m$ (beispielsweise Pilzsporen) etwa 0,0085 bzw. 0,3 bei einem Tropfendurchmesser von 0,1 mm bzw. 1 mm.

Der Quellterm S in Gleichung (2-53) bezeichnet die Emission der PBAP in Abhängigkeit des vertikalen Massenflusses F_e :

$$S = -\frac{1}{N} \frac{\partial F_e}{\partial z} \approx \frac{1}{N} \frac{F_e}{\Delta z_S} \quad (2-59)$$

mit der Höhe des untersten Levels z_S ($\sim 10 m$) (Vogel et al., 2008).

Tabelle 2-3: Partikeldurchmesser- (d_P) und Dichte (ρ_P) der PBAP für die Verwendung in der COSMO-ART Simulation ⁽¹⁾ (Gregory, 1961), ⁽²⁾ (Schaupp, 2013), ⁽³⁾ (Lang-Yona et al., 2012)

	Birkenpollen	Kiefernpollen	Bakterien	Pilzsporen
$d_P (\mu m)$	26 ⁽¹⁾	35 ⁽¹⁾	0,6 ⁽²⁾	3 ⁽³⁾
$\rho_P (kg/m^3)$	751,6 ⁽¹⁾	445 ⁽¹⁾	1100 ⁽²⁾	1000 ⁽³⁾

2.4.2. Emissionsparametrisierung für Pollen

Viele windbestäubte Pflanzenarten weisen eine starke Korrelation beim Freisetzen ihrer Pollen mit meteorologischen Konditionen auf. Allerdings ist dieser Zusammenhang für verschiedene Arten äußerst unterschiedlich. Daraus ergibt sich für die verschiedenen Arten ein stark voneinander abweichender saisonaler Verlauf der Pollenemission. Die Emissionsparametrisierung gibt deshalb nicht die Gesamtpollenanzahl wieder, sondern berücksichtigt die Pollenemission der jeweiligen Pflanzenart einzeln. So wird die Pollenausbreitung für jede Art einzeln simuliert. Enthalten sind individuelle Start- und Endzeitpunkte im Jahr, gegeben durch die Blütezeit der Pflanze, sowie die Widerstandsfähigkeit der Pflanze hinsichtlich ungünstiger Wetterbedingungen.

Der Emissionsfluss für Pollen wird mit der jeweiligen individuellen Baumverteilung $f_{r_{plant}}$ als Landfraktion innerhalb einer Gitterbox gewichtet. Die Verteilung wird aus Berechnungen mit einem dynamischen Vegetationsmodell (LPJ-GUESS), angewandt auf Europa, bezogen (Smith et al., 2001). Die Verteilung der einzelnen Baumarten wird in Abhängigkeit ihres Wachstums unter natürlichen Umweltbedingungen berechnet. Anschließend wird die Verteilung um die Fläche reduziert, die durch anthropogene Änderung der Landnutzung mit Ackerfläche oder Weideland (Verteilung nach Ramankutty et al., 2008) genutzt wird (Schurgers et al., 2009). In der vorliegenden Arbeit wird die Ausbreitung von Birken- und Kiefernpollen simuliert. So zeigt Abbildung 2-5 die Flächenanteile von Birken- und Kiefern an der Gesamtfläche der jeweiligen Gitterbox, wie sie nach Schurgers et al. (2009) berechnet und für COSMO-ART aufbereitet sind. Weitere anthropogene Einflüsse auf den Waldbestand, wie beispielsweise Luftschadstoffe, Grundwasseränderungen, Beforstung oder verändert stattfindende Waldbrände sind in der Verteilung des Baumbestandes nicht enthalten.

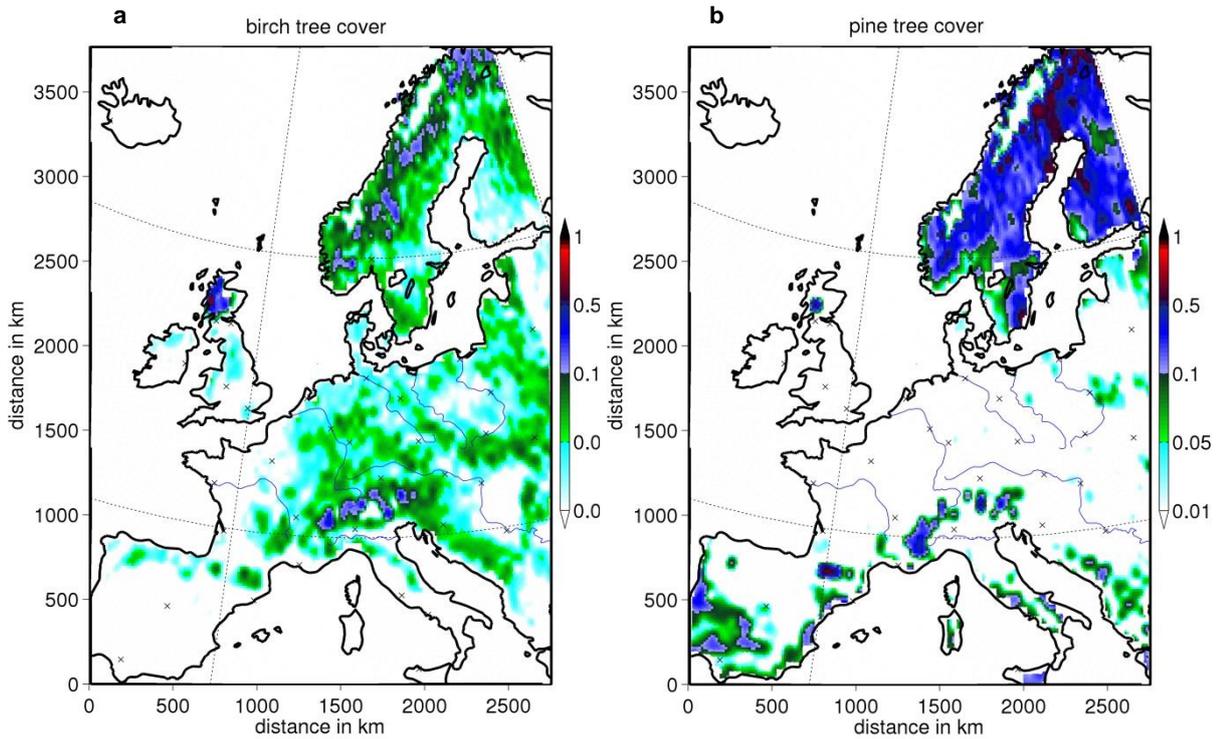


Abbildung 2-5: Flächenanteil von (a) Birken und (b) Kiefern an der Gesamtfläche einer Gitterbox für die verwendete Modelldomäne (nach Schurgers et al., 2009).

Der vertikale Emissionsfluss von Pollen F_P ist proportional zur Schubspannungsgeschwindigkeit u_* und mit dem saisonalen Verlauf c_e und einem Faktor K_e zur Anpassung an ungünstige meteorologischen Bedingungen gewichtet:

$$F_P = c_e K_e \frac{q_p}{LAI h_c} u_* \quad (2-60)$$

mit der charakteristischen Pollenkonzentration q_p , die durch die Differenz aus maximaler und bereits emittierter Pollenanzahl bestimmt wird. Die maximale Anzahl beschreibt die von einer Pflanzenart produzierbaren Pollen pro Landoberfläche (in m^2) und Saisonzyklus (Helbig et al., 2004). LAI bezeichnet den Blattflächenindex (leaf area index) und h_c die Höhe der Pflanzendecke. c_e generiert eine Glockenkurve, die näherungsweise wiedergibt, dass zum Mittelpunkt der jeweiligen Blütezeit eine Vielzahl an Pflanzen ihre Pollen ausschütten. Zu den Rändern hin werden nur wenig Pollen von den Pflanzen produziert. Die Berechnung von c_e erfolgt über:

$$c_e = 4 * 10^{-4} \left(\frac{t_d}{S_p} - \frac{t_d^2}{S_p^2} \right) \quad (2-61)$$

wobei t_d die verstrichenen Tage in der jeweiligen Pollensaison sind und S_p die Länge der Saison, die mit 30 Tagen abgeschätzt ist. Für das Ablösen der Pollen von den Pflanzen muss eine bestimmte Windgeschwindigkeit überschritten sein. Ähnlich dem Einsetzen des Saltationsprozesses bei Stäuben wird für Pollen ein modifizierter Grenzwert der Schubspannungsgeschwindigkeit (u_{*te}) definiert:

$$u_{*te} = \alpha \sqrt{a_1 \left[\frac{\rho_P}{\rho} g d_P + \frac{a_2}{\rho d_P} \right]} \quad (2-62)$$

mit $a_1 = 0,0123$ und $a_2 = 3 \cdot 10^{-4} \text{ kg s}^{-1}$ und einem meteorologischen Koeffizient α . α berücksichtigt, dass Pflanzen ihre Pollen gegen ungünstige Wetterbedingungen schützen und deshalb deren Emission reduzieren:

$$\alpha = \frac{3}{\left(\frac{T}{T_{te}}\right) + \left(\frac{rh_{te}}{rh}\right) + \left(\frac{|\vec{v}|}{|\vec{v}|_{te}}\right)} \quad (2-63)$$

mit der Temperatur T in K , der relativen Feuchte rh , dem Betrag der Windgeschwindigkeit $|\vec{v}|$ und den jeweiligen Grenzwerten für Hitze ($T_{te} = 8^\circ C$), Trockenheit ($rh_{te} = 60\%$) und Sturm ($|\vec{v}|_{te} = 2,9 \text{ m/s}$). Überschreitet die Schubspannungsgeschwindigkeit den Grenzwert für die jeweilige Pollenart, wird K_e Null gesetzt und es findet keine Emission statt:

$$K_e = \begin{cases} 1 - \frac{u_{*te}}{u_*} & u_{*te} < u_* \\ 0 & u_{*te} \geq u_* \end{cases} \quad (2-64)$$

2.4.3. Emissionsparametrisierung für Bakterien

Der horizontale Gesamtemissionsfluss von Bakterien F_B setzt sich aus der Summe einzelner, konstanter Flüsse zusammen, die spezifisch für ein Ökosystem sind (Burrows et al., 2009a). Die einzelnen Emissionsflüsse $F_{B,i}$ sind eine bestmögliche Abschätzung, um bodennahe Messungen der Bakterienanzahlkonzentration wiederzugeben. Die Parametrisierung gewichtet $F_{B,i}$ mit der Landfraktion des jeweiligen Ökosystems fr_i pro Gitterbox:

$$F_B = \sum_{i=1}^5 fr_i F_{B,i} \quad (2-65)$$

Die einzelnen Emissionsflüsse und der jeweilige Flächenanteil des Ökosystems innerhalb des Modellgebietes sind in Tabelle 2-4 aufgelistet. Die Flächenverteilungen der Ökosysteme werden aus GLC2000 und Ramankutty et al. (2008) bezogen. Burrows et al. (2009a) schätzen den Beitrag von Wüsten auf die Bakterienemission als gering ein, verweisen aber darauf, dass Bakterien gut an Staubpartikeln haften und so über große Entfernungen transportiert werden können. Verglichen mit Landgebieten sind Bakterienkonzentrationen über dem Meer deutlich geringer, weshalb in Burrows et al. (2009a) dafür kein positiver Emissionsfluss berechnet werden konnte. Da in der Studie nicht zwischen verschiedenen Waldgebieten unterschieden wurde, konnte dafür kein positiver Emissionsfluss angegeben werden. Zu Küstengebieten kann in der vorliegenden Arbeit aufgrund der relativ groben Modellauflösung kein eindeutiger Flächenanteil pro Gitterbox zugewiesen werden.

Tabelle 2-4: In COSMO-ART verwendete Einzelemissionsflüsse bezüglich des jeweiligen Ökosystems für Bakterien $F_{B,i}$ (Burrows et al., 2009a), und Pilzsporen $F_{S\&D,i}$ (Sesartic und Dallafior, 2011), inklusive der im Modell enthaltenen Fläche jedes Ökosystems. Die eingeklammerten Zahlenwerte wurden in den Modellsimulationen der vorliegenden Arbeit nicht verwendet.

Ökosystem	Fläche (10^4 km^2)	Emissionsfluss $F_{B,i}$ für Bakterien ($\text{m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)	Emissionsfluss $F_{S\&D,i}$ für Pilzsporen ($\text{m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)
Küstengebiete	-	(900,18)	-
Ackerflächen	109,6	703,71	2509
Wälder	206	0	214
Grasland	63,8	647,78	165
Landeisflächen	1,9	7,66	-
Meeresflächen	556,4	0	-
Sträucher	32,6	501,56	1203
Tundra	14	0	(8)
Feuchtgebiete	8,2	195,99	-

2.4.4. Emissionsparametrisierung für Pilzsporen

Für die Emission von Pilzsporen sind in der vorliegenden Arbeit zum Vergleich drei verschiedene Parametrisierungen eingesetzt worden. Zwei literaturbasierte Emissionsraten beziehen sich auf globale Messungen von Pilzsporen, zum einen durch Zählen von Pilzkolonien in Luftproben (Sesartic und Dallafior, 2011), zum anderen durch Detektion von chemischen Markern, die charakteristisch für Pilzsporen sind (Heald und Spracklen, 2009). Eine dritte Variante ist durch die im Rahmen dieser Arbeit neu entwickelte Emissionsparametrisierung gegeben, die an lokale FBAP-Feldmessungen in vier europäischen Standorten angepasst wurde.

Elbert et al. (2007) entwickelten in einem ersten Ansatz eine konstante Emissionsrate, die mit einem globalen chemischen Transportmodell an die Größenordnung und Verteilung von gemessenen Mannitolkonzentrationen angepasst wurde. Mannitol ist ein chemischer Marker, der spezifisch für Basidiosporen ist. Als weitere Näherung können geographische Unterschiede anhand von verschiedenen Emissionsflüssen in Abhängigkeit des Ökosystemes mit einbezogen werden. Durch die Verknüpfung von Pilzsporenmessungen in verschiedenen Regionen der Welt mit dem jeweiligen Ökosystem konnten für sechs Ökosysteme (Tropischer Regenwald, Wald, Sträucher, Grasland, Ackerfläche, Tundra; Klassifikation nach Olson et al., 2001) konstante Emissionsraten definiert werden (Sesartic und Dallafior, 2011). Vier von diesen Emissionsraten sind im Rahmen dieser Arbeit in COSMO-ART implementiert und mit der Landfraktion fr_i des jeweiligen Ökosystems i gewichtet (mit $\sum_i^n fr_i = 1$, wobei n die Gesamtanzahl der Ökosysteme ist). Die Flächenverteilungen von Grasland und Ackerfläche basieren auf Daten nach Ramankutty et al. (2008), und die von Wald- und Buschland auf GLC2000. Die Summe der einzelnen Emissionsflüsse $F_{F\&S,i}$ (Tabelle 2-4) nach

Sesartic und Dallafior (2011) gibt den Gesamtfluss $F_{S\&D}$ als möglichen Emissionsfluss F_e im Quellterm S in Gleichung (2-59) für Pilzsporen an:

$$F_{S\&D} = \sum_{i=1}^4 f r_i F_{F\&S,i} \quad (2-66)$$

Die zweite hier verwendete literaturbasierte Emissionsparametrisierung ist eine Funktion von meteorologischen Variablen und Oberflächenbedingungen. Mögliche Zusammenhänge von beobachteten Pilzsporenkonzentrationen mit atmosphärischen Faktoren wurden von Jones und Harrison (2004) ausgewertet. Darüber hinaus können saisonale Variationen der Sporenkonzentration, abgeleitet aus der gemessenen Mannitolkonzentration, durch Änderungen des LAI erklärt werden. Bei kurzfristigen, täglichen Variationen korreliert die spezifische Feuchte q_v am besten mit den Mannitolkonzentrationen. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass diese nur stellvertretend für andere gut korrelierende Faktoren (z.B. Temperatur) steht, ohne die Hauptauslöser zum Ausschütten der Sporen zu kennen (Heald und Spracklen, 2009). Abgeleitet aus diesen Ergebnissen wurde die konstante Emissionsrate des globalen Chemietransportmodells linear mit LAI und q_v skaliert um die mittleren Mannitolkonzentrationen wiederzugeben (Heald und Spracklen, 2009). Damit der daraus abgeleitete Emissionsfluss, spezifiziert in Hoose et al. (2010a) für Pilzsporen mit einem Durchmesser von $5 \mu m$, zu den mit COSMO-ART simulierten Pilzsporen ($d_p = 3 \mu m$) konsistent ist, ist ein konstanter Faktor von $(5 \mu m / 3 \mu m)^3 = 4,63$ hinzugefügt. Somit stellt der Emissionsfluss $F_{H\&S}$ nach Heald und Spracklen (2009) eine Alternative für F_e im Quellterm S in Gleichung (2-59) für Pilzsporen dar:

$$F_{H\&S} = c \cdot \frac{LAI}{LAI_{max}} \cdot \frac{q_v}{q_{v,max}} \quad (2-67)$$

mit Skalierungsfaktoren von LAI und q_v , abgeschätzt von Bedingungen des tropischen Regenwalds mit $LAI_{max} = 5 m^2/m^2$, $q_{v,max} = 1,5 \cdot 10^{-2} kg/kg$ und der Konstanten $c = 2315 m^{-2} s^{-1}$. In den COSMO-ART Simulationen variiert LAI monatlich und hat eine horizontale Verteilung nach GLC2000. q_v steht als meteorologische Komponente des Modells zur Verfügung.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde eine neue Emissionsparametrisierung abgeleitet. Dazu wurden FBAP-Messdaten von vier europaweit verteilten Standorten mit meteorologischen Variablen und Umgebungsvariablen aus der Modellsimulation korreliert (Kapitel 4.3.3). Für die Entwicklung der Parametrisierung wurde ein Emissionsfluss aus den FBAP-Messungen abgeleitet, der durch eine Funktion abhängig von Modellvariablen bestmöglich wiedergegeben werden soll. Es wird angenommen, dass die Partikel gleichmäßig innerhalb der atmosphärischen Grenzschicht ausgebreitet sind. Aus den Analysen kann abgeleitet werden, dass die bodennah gemessene FBAP-Anzahlkonzentration in etwa mit der simulierten Pilzsporenkonzentration in der untersten Modellschicht übereinstimmt (Kapitel 4.3.3). Die Pilzsporenkonzentration antikorreliert dabei mit der Grenzschichthöhe

h_{PBL} . Zusammen mit einer Gleichgewichtsannahme zwischen Quellen und Senken sowie Vernachlässigung des horizontalen Transports der Partikel ist die FBAP-Anzahlkonzentration der LIF Messgeräte (N_F) proportional zur Emissionsrate (F_{FBAP}):

$$N_F = \frac{F_{FBAP} \tau}{h_{PBL}} \quad (2-68)$$

mit der FBAP-Lebensdauer τ (nach Seinfeld und Pandis, 2006). Die Grenzschichthöhe an dem Messstandpunkt wird aus dem Datensatz der Modellsimulation verwendet, weil keine konsistenten Messungen dazu vorliegen. Als Annahme wird die FBAP-Lebensdauer gemäß Jaenicke (1978) mit einem Initialwert von einem Tag abgeschätzt, der für Partikel mit $3 \mu m$ Durchmesser gilt. Anschließend wurde der Wert angepasst. Eine Testsimulation mit einer Pilzsporemission, abgeleitet aus dem Initialwert der FBAP-Lebensdauer, zeigt eine Unterschätzung der simulierten Konzentrationen im Vergleich zu den FBAP-Messungen. Um diesen Unterschied auszugleichen, wurde die FBAP-Lebensdauer um die mittlere Abweichung der Anzahlkonzentrationen zu $\tau = 4 \frac{3}{4}$ Stunden korrigiert. Die Abweichung zum Literaturwert für $3 \mu m$ -Partikel könnte der Annahme geschuldet sein, dass sich die Partikel homogen innerhalb der Grenzschicht verteilen. Durch eine meist starke Abnahme der simulierten Pilzsporenkonzentration mit der Höhe ist die Konzentration in der untersten Modellschicht etwa um einen Faktor 1,75 höher im Vergleich zur mittleren Konzentration innerhalb der Grenzschicht.

Bei der Ableitung der neuen Parametrisierung wird mit einem konstanten Faktor versucht, Abweichungen zwischen den zwei unterschiedlichen FBAP-Messgerätetypen, die für den Vergleich verwendet sind, auszugleichen. Die Messgeräte unterscheiden sich vor allem durch eine unterschiedliche Anzahl an Kanälen sowie durch eine unterschiedliche Wellenlänge zur Detektion der Fluoreszenz, wodurch die FBAP-Konzentration im UV-APS und WIBS geringfügig voneinander abweichen kann (Kapitel 1.5). Das WIBS-Gerät wertet Partikel nur dann als FBAP, wenn das Emissionssignal einen Schwellenwert in beiden Kanälen überschreitet. Einige in der Erdatmosphäre häufig vorkommende und für den Durchmesserbereich von $2 \mu m$ bis $3 \mu m$ typische Pilzsporen (Hameed und Khodr, 2001; Fröhlich-Nowoisky et al., 2012) zeigen nur ein schwaches Emissionssignal im Kanal FL1_280 (Healy et al., 2012; Saari et al., 2013). Im Vergleich zu den Modellergebnissen sind die FBAP-Konzentrationen des WIBS für den im Vergleich verwendeten Zeitraum etwas geringer als FBAP-Konzentrationen des UV-APS. Diese Charakteristik ist nicht allgemein gültig. Ein genauer Vergleich beider Geräte im Parallelbetrieb ist notwendig, um deren Unterschiede in Bezug auf die FBAP-Konzentration und die abgeleitete PBAP-Konzentration zu ermitteln. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird daher angenommen, dass der technische Unterschied der Gerätetypen unter Verwendung eines konstanten Faktors angeglichen werden kann. Die FBAP-Konzentrationen des UV-APS werden möglicherweise am ehesten durch den Kanal FL3_370 des WIBS wiedergegeben. Deshalb wird der mittlere Unterschied zwischen Kanal FL3_370 und der FBAP-Gesamtanzahl des WIBS (Kanal FL1_280 und FL3_370) dafür verwendet, einen

konstanten Faktor abzuleiten, der die FBAP-Anzahl des UV-APS reduziert. Dieser Faktor beträgt 2,2 und ist für die WBS-Messungen in Karlsruhe und Manchester identisch.

Die Analyse der meteorologischen Variablen und Umgebungsbedingungen des Modells in Korrelation mit den FBAP-Messungen (Kapitel 4.3.2) zeigt einen guten Zusammenhang der FBAP-Konzentration mit der umgebenden spezifischen Feuchte q_v und Temperatur T . Zusammen mit LAI zur regionalen und saisonalen Unterscheidung, wie von Heald und Spracklen (2009) angewendet, bilden q_v und T die Variablen, von denen die neue Parametrisierung abhängt. Eine multiple lineare Regressionsanalyse skaliert die Faktoren, damit die abgeleitete Funktion die FBAP-Messungen bestmöglich wiedergibt. Eine Kombination von q_v und LAI (Heald und Spracklen, 2009) reduziert die Anzahl der Fitparameter. Da die FBAP-Messungen im Juli 2010 keinen Zusammenhang mit den gewählten Parametern zeigen, sondern innerhalb eines kleinen Bereichs von q_v und T sehr stark schwanken, sind Daten aus diesem Zeitraum nicht in die Regressionsanalyse einbezogen worden. Der Emissionsfluss F_{FBAP} , abgeleitet aus den FBAP-Messungen, stellt einen weiteren möglichen Emissionsfluss F_e im Quellterm S in Gleichung (2-59) für Pilzsporen dar:

$$F_{FBAP} = b_1 \cdot (T - 275,82 K) + b_2 \cdot q_v \cdot LAI \quad (2-69)$$

mit $b_1 = 20,426$ und $b_2 = 3,93 \cdot 10^4$, der Temperatur T in K , der spezifischen Feuchte q_v in $kg kg^{-1}$ und dem Blattflächenindex LAI in $m^2 m^{-2}$. Der Parameter innerhalb der Klammer bezieht sich auf einen Emissionsoffset der Regression, der unbekannte Einflüsse abdeckt. Die Regressionsanalyse ergibt ein Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0,4$. Der Koeffizient b_2 ist in etwa gleich den konstanten Faktoren in Gleichung (2-67) nach Heald und Spracklen (2009) für einen Partikeldurchmesser von $3 \mu m$. Eine zusätzliche Temperaturabhängigkeit erhöht die Pilzsporenemission bei Temperaturen oberhalb von $275,82 K$ und verringert die Emissionen bei kälteren Temperaturen.

3 Eigenschaften von biologischen Aerosolpartikeln hinsichtlich der heterogenen Eisnukleation

3.1. Allgemeine Beschreibung der atmosphärischen Eisnukleation

Der Übergang von Flüssigwasser zu Eis setzt nicht augenblicklich dann ein, wenn die freie Energie der flüssigen Phase geringer ist als die der Eisphase. Bei der Eisnukleation bildet sich zuerst innerhalb der metastabilen Ausgangsphase, aufgrund von kleinen räumlichen und zeitlichen Fluktuationen der Temperatur, bei einer kritischen Unterkühlung ein kleiner Eiscluster. Dabei müssen die Wasser-Wasser-Bindungen in Eis-Wasser-Bindungen umgeformt werden. Die Bindungen sind durch eine Energiebarriere G^\ddagger zwischen der Gleichgewichtsposition im Wasser, mit minimaler potentieller Energie, und der Gleichgewichtsposition im Eis getrennt. Die benötigte Energie, bezeichnet als Gibbs-freie Energie ΔG^\ddagger zur Aktivierung, dient der Diffusion der Wassermoleküle entlang der Wasser-Eis-Grenze. In der Atmosphäre wird die Energiebarriere bei homogener Eisnukleation erst unterhalb von -38°C erreicht, kann jedoch durch die heterogene Eisnukleation an der Oberfläche eines als Eisnuklei (IN) fungierenden, festen Partikels herabgesenkt werden (Abbildung 3-1). Ab einer kritischen Clustergröße setzt sich das Eiwachstum stetig über den gesamten Tropfen fort.

Atmosphärische IN zeigen verschiedene Wirkungsweisen, um das Gefrieren von Wasser in Abhängigkeit von Temperatur und Eisübersättigung einzuleiten (Abbildung 3-1). Unterschieden wird dazwischen, ob Wasserdampf via Resublimation direkt in die Eisphase überführt wird oder ob flüssige Tropfen gefrieren. Bei Eisübersättigung und unterhalb von etwa -20°C findet das Gefrieren im Depositionsmode statt. Wasserdampf wird auf die Oberfläche des IN absorbiert und gefriert dort. In den jeweils anderen Moden findet das Gefrieren von flüssigem Wasser bei Wasserübersättigung aufgrund von verschiedenen Interaktion mit dem IN statt. In dem als Kontaktmode bezeichneten Prozess gefriert ein unterkühlter Tropfen in dem Moment des Kontakts mit dem IN von der Kontaktstelle aus. Wenn der Gefriervorgang nicht an der Oberfläche des Tropfens startet, ist ein unlösliches Partikel in den Tropfen eingetaucht und fungiert als IN, indem er ab einer bestimmten Temperatur das Gefrieren von innen heraus initialisiert. Dieses wird als Immersionsmode bezeichnet. In einem Sonderfall davon fungiert ein Partikel zuvor als CCN und Wasserdampf kondensiert bei Wasserübersättigung auf der Partikeloberfläche und gefriert anschließend ab einer bestimmten Temperatur. Die Gefriertemperatur liegt, bedingt durch den IN, meist oberhalb der Temperatur für homogenes Gefrieren (Pruppacher und Klett, 1997).

Zwei theoretische Ansätze können angewandt werden, um Laborergebnisse und Parametrisierung des Gefrierverhaltens der Partikel zu beschreiben. Der stochastische Ansatz ist

von der theoretischen Beschreibung der homogenen Eisnukleation abgeleitet. Hier erhöht ein als IN fungierender Partikel die Nukleationsrate aufgrund einer Reduktion der thermodynamischen Energiebarriere. Durch die Berücksichtigung von molekularen Flüssen innerhalb eines Tropfens wird der Gefriervorgang durch eine zeitabhängige Nukleationsrate beschrieben. Die Eigenschaften des IN werden mithilfe eines Formfaktors f beschrieben, der von dem Kontaktwinkel zwischen der Obergrenze der Eismoleküle und der Partikeloberfläche abhängt.

Für die Parametrisierung von BIN in der vorliegenden Arbeit wird der singuläre Ansatz verwendet. Hierbei wird der Gefriervorgang als deterministischer Prozess betrachtet und die Eisbildung findet bei einer für den IN charakteristischen Temperatur und Eisübersättigung instantan statt. Dabei wird angenommen, dass die IN eine Verteilung von eisaktiven Stellen auf ihrer Oberfläche besitzen, die bei effektiveren IN eine höhere Oberflächendichte aufweisen. Die Dichte eisaktiver Stellen kann bei Laborexperimenten aus der Aerosolgrößenverteilung unter Annahme von sphärischen Partikeln bestimmt werden.

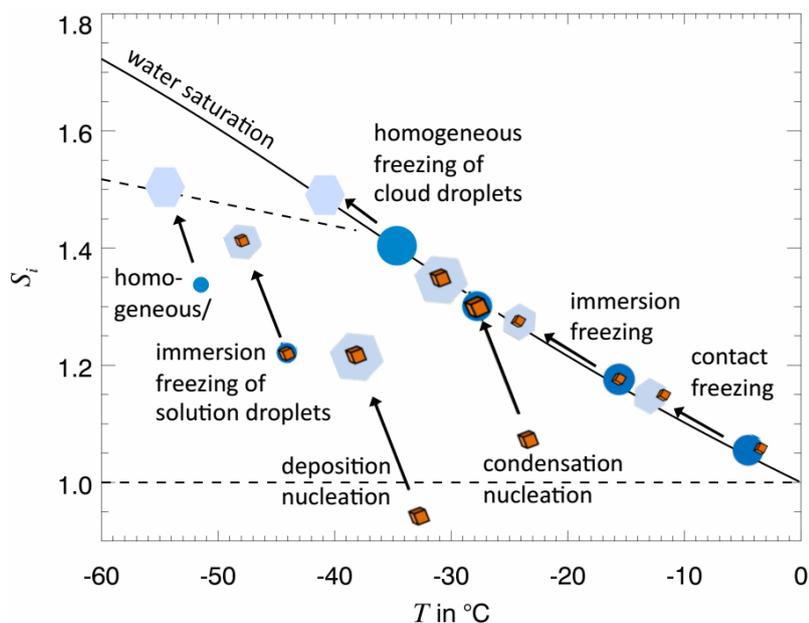


Abbildung 3-1: Schematische Darstellung der verschiedenen Eisnukleationsmoden in einem T - S_i -Diagramm mit IN als orange Würfel, Wassertropfen als dunkelblaue Kreise und Eiskristalle als hellblaues Hexagon. Die durchgezogene Linie stellt die Sättigung bezüglich einer Eisoberfläche bei Wassersättigung dar. Als Referenz für die homogene Eisnukleation ist die Isolinie für einen Koeffizienten der Nukleationsrate von $5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ (nach Koop et al., 2000) als gestrichelte Linie eingetragen (Hoose und Möhler, 2012).

3.2. Beschreibung von Laborergebnissen

In vielen Laborexperimenten zur Eisnukleation von PBAP findet der Gefriervorgang im Immersions- bzw. Kondensationsmode statt. Einige Experimente untersuchen die Eisnuklea-

tion von PBAP im Kontaktmode durch Kollision von per Luftstrom beschleunigten Partikeln und elektrisch levitierten Tropfen (Schäfer et al., in prep.). Im Depositionsmode hingegen zeigen beispielsweise Pollen keine Eisaktivität (Diehl et al., 2001). Häufig wird bei Laboruntersuchungen von PBAP als IN im Immersionsmode ein Set von Tröpfchen verwendet, das stetig abgekühlt wird (Vali, 1971). Die Tröpfchen können sowohl atmosphärische Proben aus Niederschlag oder *in-situ* Wolkenproben enthalten, als auch Lösungen bzw. Suspensionen trockener Partikel sein. Der Gefriervorgang kann als zeitunabhängig und damit unabhängig von der verwendeten Kühlrate beschrieben werden. In diesem singulären Ansatz wird angenommen, dass jeder Tropfen bei einer charakteristischen Temperatur gefriert. In einem Experiment mit der Gesamttropfenanzahl N_0 ist $N_u(T)$ die Anzahl von ungefrorenen Tropfen bei der Temperatur T . Dadurch ist die Anzahl gefrorener Tropfen definiert als $N_f(T) = N_0 - N_u(T)$, die bei weiterer Abkühlung um $T-dT$ durch zusätzlich gefrierende Tropfen um dN_f erhöht werden kann. Die Fraktion von gefrierenden Tropfen zu ungefrorenen Tropfen gibt die Funktion $k(T)$ wieder, die die IN-Konzentration pro Probenvolumen V und Temperaturintervall dT beschreibt:

$$\frac{dN_f}{N_u(T)} = V k(T) dT \quad (3-1)$$

Die kumulative Konzentration $K(T)$ von gefrorenen Tropfen oberhalb einer Temperatur T kann aus der Integration über den Temperaturbereich von T bis 0°C hergeleitet werden (Vali, 1971):

$$K(T) = \int_{0^\circ\text{C}}^T k(T) dT = \frac{1}{V} (\ln N_0 - \ln N_u(T)) \quad (3-2)$$

Eine Übersicht der Gefrierexperimente von Bakterien, Pilzsporen und Pollen, erweitert nach Després et al. (2012) (Tabelle 3-1), zeigt sowohl eine beachtliche Streuung in der Temperatur des ersten Gefrierens (T_{max}) sowie der eisaktiven Fraktion f_{IN} innerhalb einer Spezies.

Die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Ergebnisse zur Eisnukleation von PBAP stammen größtenteils aus Experimenten, durchgeführt von Schaupp (2013) und Steinke (2013) an der Aerosol- und Wolkenkammereinrichtung AIDA. Die Experimentieranlage wird mit einer Expansionskammer betrieben, die zur Untersuchung von mikrophysikalischen Prozessen unter simulierten Wolkenbedingungen dient. Dazu wird feuchte Luft in der Aerosolkammer durch Absenken des Drucks ausgedehnt und dadurch abgekühlt, entsprechend der Hebung eines Luftpakets in der Atmosphäre. Die Evakuierung mittels zweier, unterschiedlich starker, mechanischer Pumpen bewirkt eine Abkühlung der mittleren Gastemperatur um $0,1 \text{ K/min}$ oder 6 K/min . Das entspricht einem Luftpaket mit einer Aufwindgeschwindigkeit von $0,15 \text{ m/s}$, vergleichbar mit natürlichen Wolken in Schwerkwellen oder 8 m/s , wie es in konvektiven Wolken vorkommt. Vor einem Expansionsexperiment herrscht bei konstantem Druck und Temperatur nahezu Eissättigung, die durch eine

dünne Frostschrift an den Wänden der Kammer erreicht wird. Während des Experiments dient die Eisschicht als Wasserdampfquelle.

An der AIDA-Anlage wurden Experimente zum Nukleationsverhalten von PBAP mit verschiedenen Bakteriensträngen der Spezies *Pseudomonas sp.*, Pollen und Bodenstaub durchgeführt (Schaupp, 2013; Steinke, 2013). Eine Übersicht der Ergebnisse zeigt Abbildung 3-2 als Fraktion eisaktiver Partikel f_{IN} , die in einem Nukleationsexperiment das Verhältnis der Eisanzahlkonzentration N_i zur Gesamttropfenanzahl N_0 gegenüber der Temperatur beschreibt. Zur Bestimmung von N_i wird der optische Partikelzähler Welas2 verwendet (Benz et al., 2005), der die Anzahl der Streulichtimpulse der Partikel in einem Detektionsvolumen pro Zeitintervall bei vorgegebener Partikelgeschwindigkeit zählt.

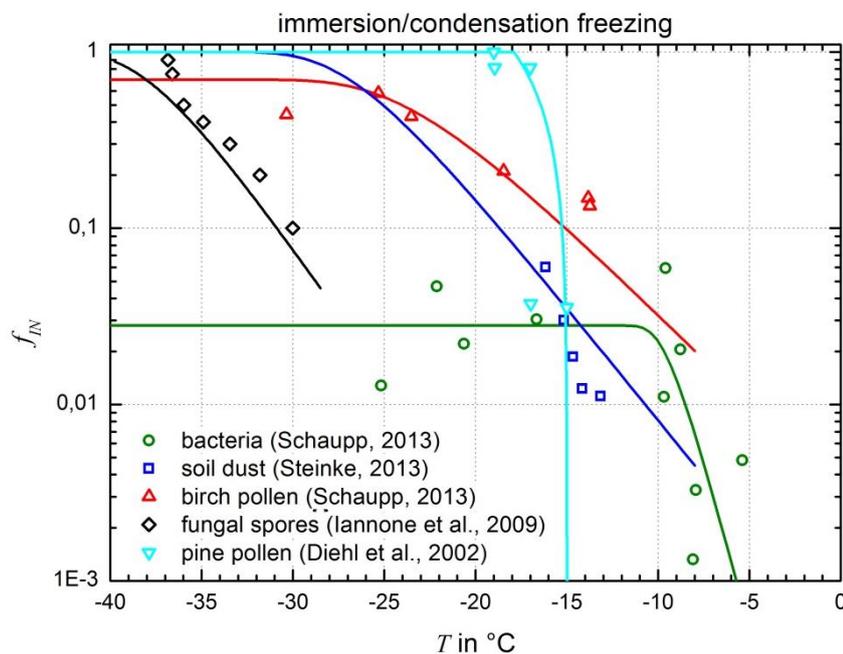


Abbildung 3-2: Messwerte des eisaktiven Anteils f_{IN} von PBAP und Bodenstaub gegenüber T (Punkte). Die Werte von Birkenpollen, Bakterien und Bodenstaub basieren auf AIDA-Messungen (Schaupp, 2013; Steinke, 2013), Pilzsporen sind aus der Iannone et al. (2011) und Kiefernpollen aus Diehl et al. (2002) übernommen. Die farbigen Linien geben die in der Simulation verwendeten Parametrisierungen zur heterogenen Eisnukleation von PBAP und Bodenstaub an.

Tabelle 3-1: Literaturzusammenstellung von Laborergebnissen der Eisnukleationseigenschaften verschiedener PBAP (- gibt nicht verfügbare Daten an, eingeklammerte Werte geben die Anzahl pro Masse an und sind daher nicht vergleichbar, ⁽¹⁾ $rh_i = 116\%$, If - Immersionsgefrieren, Ctf - Kontaktgefrieren, Cdf - Kondensationsgefrieren, Dn - Depositionsnukleation).

Spezies	T_{max} °C	$f_{IN}(T_{max})$	$T(f_{max})$ °C	f_{max}	Mode	Referenz
Bakterien						
<i>Pseudomonas sp.</i>	-9	0,1	-	-	If	(Jayaweera und Flanagan, 1982)
	-21 bis -29	-	-	-	If	(Ahern et al., 2007)
	-3,4	$1,0 \cdot 10^{-6}$	-	-	If	(Worland und Block, 1999)
	-3	-	-	-	If/Ctf	(Levin und Yankofsky, 1983)
	-3	$1,0 \cdot 10^{-6}$	-10	0,01	If	(Yankofsky et al., 1981)
<i>P. Antarctica</i>	-4	$1,0 \cdot 10^{-7}$	-10	0,2	If	(Obata et al., 1999)
<i>P. Fluorescence</i>	-10	0,02	-16	0,94	If	(Maki und Willoughby, 1978)
<i>P. syringae</i>	-4	-	-	-	If	(Sands et al., 1982)
	-10	-	-	-	If	(Lindemann et al., 1982)
	-5	-	-	-	If	(Constantinidou et al., 1990)
	-2 bis -6	$1,0 \cdot 10^{-7}$	-	-	If	(Morris et al., 2008)
	-5	$2,0 \cdot 10^{-6}$	-15	$5,0 \cdot 10^{-5}$	If	(Vali et al., 1976)
	-5	$4,3 \cdot 10^{-3}$ bis $1 \cdot 10^{-7}$	-	-	If	(Gross et al., 1983)
	-1	$1,0 \cdot 10^{-8}$	-12	0,5	If	(Lindow et al., 1989)
	-8	0,0032	-	-	If/Cdf	(Möhler et al., 2008)
	-3	$1,0 \cdot 10^{-6}$	-20	0,01	If	(Maki et al., 1974)
	-3	$\sim 3 \cdot 10^{-7}$	-10	0,17	If	(Attard et al., 2012)
	-5	$\sim 5 \cdot 10^{-9}$	-10	0,0004	If	(Attard et al., 2012)
	-2,5	$7,24 \cdot 10^{-7}$	-	-	If	(Hirano et al., 1985)
	-3	$6,0 \cdot 10^{-4}$	-6	$4,3 \cdot 10^{-2}$	If	(Joly et al., 2013)
<i>SnomaxTM</i> (<i>P. syringae</i>)	-5,6	0,01	-8	0,23	If/Cdf	(Möhler et al., 2008)
	-4	$(1,3 \cdot 10^{12} \text{ g}^{-1})$	-12	$(5,5 \cdot 10^{12} \text{ g}^{-1})$	Cdf	(Ward und DeMott, 1989)
	-5,3	-	-	-	If	(Wood et al., 2002)
	-26 ⁽¹⁾	-	-	-	Dn	(Chernoff und Bertram, 2010)
	-7	-	-	-	If	(Jones et al., 2011)
	-9	-	-	-	If	(Koop und Zobrist, 2009)
	-5	$7,0 \cdot 10^{-4}$	-14	$4,0 \cdot 10^{-1}$	If	(Hartmann et al., 2013)

Tabelle 3-1 (fortgesetzt):

Spezies	T_{max} °C	$f_{IN}(T_{max})$	$T(f_{max})$ °C	f_{max}	Mode	Referenz
Bakterien (fortgesetzt)						
<i>P. Viridiflava</i>	-9,7	0,005	-	-	If/Cdf	(Möhler et al., 2008)
<i>Erwinia herbicola</i>	-9	0,0007	-	-	If/Cdf	(Möhler et al., 2008)
	-3	-	-	-	If	(Phelps et al., 1986)
	-5	$1,17 \cdot 10^{-6}$	-	-	If	(Hirano et al., 1985)
<i>Xanthomonas to Microbacterium sp.</i>	-13 bis -18	-	-	-	If	(Mortazavi et al., 2008)
<i>Xanthomonas campestris</i>	-4,3	$3,0 \cdot 10^{-8}$	-10	$5,0 \cdot 10^{-4}$	If	(Joly et al., 2013)
Pilzsporen						
<i>Aspergillus sp.</i>	-	-	-31	0,5	If	(Pummer et al., 2012)
<i>Cladosporium sp.</i>	-28,5	$\sim 0,0002$	-35	0,2 bis 1	If	(Iannone et al., 2011)
	-	-	-36	0,5	If	(Pummer et al., 2013)
<i>C. herbarum</i>	-15	0,01	-	-	If	(Jayaweera und Flanagan, 1982)
<i>Engyodontium album</i>	-	-	-36	0,5	If	(Pummer et al., 2013)
<i>Fusarium sp.</i>	-5	-	-	-	If	(Tsumuki et al., 1992)
	-	-	-9	0,5	If	(Pummer et al., 2013)
<i>F. Acuminatum</i>	-5	-	-	-	If	(Pouleur et al., 1992)
<i>F. Avanaceum</i>	-2,5	$(1 \cdot 10^5 \text{ g}^{-1})$	-10	$(1 \cdot 10^{11} \text{ g}^{-1})$	If	(Pouleur et al., 1992)
<i>F. Oxysporum</i>	-1	-	-	-	If	(Richard et al., 1996)
<i>F. Tricinatum</i>	-1	-	-	-	If	(Richard et al., 1996)
<i>Penicillium digita- tum</i>	-10	0,01	-	-	If	(Jayaweera und Flanagan, 1982)
<i>Penicillium frequen- tes</i>	-22,5	0,01	-	-	If	(Jayaweera und Flanagan, 1982)
<i>Penicillium notatum</i>	-22	0,01	-	-	If	(Jayaweera und Flanagan, 1982)
<i>Penicillium sp.</i>	-	-	-33	0,5	If	(Pummer et al., 2013)
<i>Rhizopus stolonifera</i>	-23	0,01	-	-	If	(Jayaweera und Flanagan, 1982)
<i>Trichoderma sp.</i>	-	-	-33	0,5	If	(Pummer et al., 2013)

Tabelle 3-1 (fortgesetzt):

Spezies	T_{max} °C	$f_{IN}(T_{max})$	$T(f_{max})$ °C	f_{max}	Mode	Referenz
Pilzsporen (fortgesetzt)						
<i>Rostpilze (Puccinia sp.)</i>	-18 bis -24	$8,0 \cdot 10^{-3}$	-29	1	If	(Haga et al., 2013)
	-4 bis -9	$5,3 \cdot 10^{-6}$	-8	$1,7 \cdot 10^{-2}$	If	(Morris et al., 2013)
<i>Kornfäulepilze (Tilletia sp.)</i>	-25	$6,0 \cdot 10^{-3}$	-32	$1,0 \cdot 10^{-1}$	If	(Haga et al., 2013)
Pollen						
<i>Erle (Alnus incana)</i>	-10	-	-	-	Ctf	(von Blohn et al., 2005)
	-10	-	-	-	If	(von Blohn et al., 2005)
<i>Birke (Betula alba)</i>	-8	0,04	-18	0,98	Cdf	(Diehl et al., 2001)
	-10	-	-	-	If	(Diehl et al., 2002)
	-6	-	-	-	Ctf	(Diehl et al., 2002)
	-	-	-19	0,5	If	(Pummer et al., 2012)
<i>Birke (nördliche)</i>	-17	0,02	-24	0,9	If	(Augustin et al., 2013)
<i>Birke (südliche)</i>	-19	0,02	-30	0,7	If	(Augustin et al., 2013)
<i>Gräser, verschiedene</i>	-8	0,02	-18	0,8	Cdf	(Diehl et al., 2001)
	-14	-	-	-	If	(Diehl et al., 2002)
	-10	-	-	-	Ctf	(Diehl et al., 2002)
<i>Weißes Straußgras (Agrostis alba)</i>	-16	-	-	-	If	(von Blohn et al., 2005)
	-16	-	-	-	Ctf	(von Blohn et al., 2005)
<i>Wiesen-Rispengras (Poa pratensis)</i>	-14	-	-	-	If	(von Blohn et al., 2005)
	-10	-	-	-	Ctf	(von Blohn et al., 2005)
<i>Schwarz-Pappel (Populus nigra)</i>	-18	-	-	-	If	(von Blohn et al., 2005)
	-14	-	-	-	Ctf	(von Blohn et al., 2005)
<i>Eiche (Quercus rubra)</i>	-8	0,03	-18	0,5	Cdf	(Diehl et al., 2001)
	-14	-	-	-	If	(Diehl et al., 2002)
	-10	-	-	-	Ctf	(Diehl et al., 2002)
<i>Kiefer (Pinus sylvestris)</i>	-8	0,1	-18	0,9	Cdf	(Diehl et al., 2001)
	-16	-	-	-	If	(Diehl et al., 2002)
	-12	-	-	-	Ctf	(Diehl et al., 2002)
	-	-	-20	0,5	If	(Pummer et al., 2012)

3.3. Überblick über in anderen Modellen verwendete Parametrisierungen zur Eisnukleation von biologischen Aerosolpartikeln

Ein erster Ansatz zur Simulation von INA Bakterien in einem Boxmodell nutzt ein experimentell bestimmtes, temperaturabhängiges Spektrum des Anteils gefrorener Tropfen, um dem Modell Eiskristalle in bestimmter Höhe hinzuzufügen (Levin et al., 1987). Die Basisversion des Modells simuliert die Entwicklung einer Mischphasenwolke, ausgehend von initialen Kondensationskeimen, anschließendem Wachstum der Wolkentropfen durch Kondensation und stochastisches Ansammeln, hin zur Eisnukleation und Eiskristallwachstum durch Deposition und Bereifung bis zur Niederschlagsbildung (Tzur und Levin, 1981). Unter Verwendung von Laborexperimenten mit Ruß, Mineralstaub und PBAP kann alternativ die Gefriertemperatur eines Tropfens mit unlöslichen Partikeln verwendet werden (Diehl und Wurzler, 2004). Die Berechnung der zeitlichen Änderung der Anzahl an Eiskristallen mit BIN folgt dabei dem stochastischen Ansatz, bei dem ein IN die Effektivität des zufällig eintretenden Gefrierprozesses erhöht, ohne ihn in seiner stochastischen Natur zu beeinflussen (Pruppacher und Klett, 1997). Die relative Änderung der Anzahl ungefrorener Tropfen pro Zeitintervall ist gegeben durch:

$$\frac{dN_u}{dt} = -N_u V J(T_s) \quad (3-3)$$

mit der Nukleationsrate $J(T_s)$ und der Gefriertemperatur $T_s = T_0 - T$. Anwendung findet der stochastische Ansatz mit einer zeitabhängigen Nukleationsrate in zwei globalen Klimamodellen – im CAM-Oslo (**C**ommunity **A**tmosphere **M**odel) unter Verwendung einer Nukleationsrate in Abhängigkeit der Aerosoloberfläche anstelle des Volumens (Hoose et al., 2010a), und im ECHAM5-HAM (Hoose et al., 2008; Sesartic et al., 2012). ECHAM5-HAM berücksichtigt das Gefrieren von Bakterien im Kontakt- und Immersionsmode. Die Gefrierrate im Kontaktmode ist bedingt durch die Brownsche Aerosoldiffusion, den mittleren Tropfenradius und die Anzahl an Kontaktkeimen (Young, 1974). Die Berechnung der temperaturabhängigen Anzahl an Kontakteiskeimen erfolgt nach Parametern spezifiziert in Diehl et al. (2006). Im Immersionsmode liegen der Parametrisierung Experimente mit Bakterien, Pollen und Laubstreu zugrunde, die in einen Faktor $B_{h,i}$ zwischen $1,01 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-3}$ für Pollen und $6,19 \text{ cm}^{-3}$ für Bakterien zur Skalierung einer zeitunabhängigen Nukleationsrate eingehen:

$$J(T) \approx a B_{h,i} \exp(a T_s) \quad (3-4)$$

mit der Konstante $a = 0,82(^{\circ}\text{C})^{-1}$ (Levin und Yankofsky, 1983; Pruppacher und Klett, 1997; Diehl et al., 2002; Diehl und Wurzler, 2004). Die Parametrisierung der heterogenen Eisnukleation basieren im CAM-Oslo auf der Klassischen Nukleationstheorie (Hoose et al., 2010b). Die Nukleationsrate für das Immersions- und Depositionsnukleation wird aus der aerosolabhängigen Aktivierungsenergie und dem Formfaktor f in Abhängigkeit vom

Kontaktwinkel, sowie der Energie zur homogenen Keimbildung berechnet. Die Nukleationsrate für das Kontaktgefrieren wird aus der Kollisionsrate zwischen Tropfen und Aerosolen, die mindestens einen IN enthalten, unbeschichtet sind und nicht als CCN aktiviert wurden, berechnet. Die Anpassung an die Nukleationseigenschaften von PBAP ist in Hoose et al. (2010b) beschrieben.

Die Parametrisierung der Eisnukleation in Regionalmodellen (meso- β Skala) beinhaltet unter anderem einen empirischen Ansatz nach Phillips et al. (2008), basierend auf Messungen der IN-Aktivität und Aerosolbelastung in der freien Troposphäre (DeMott et al., 2003), sowie einen stochastischen Ansatz nach Diehl und Wurzler (2004) aus Gleichung (3-4) (Grützun et al., 2008). Im ersten Anwendungsbeispiel, dem WRF (**W**eather, **R**esearch and **F**orecasting) Modell, erfolgt die Berechnung der Eiskristallanzahl anhand des Mischungsverhältnisses von drei Aerosolgruppen. Die Eiskristallanzahl ist eine Funktion von Temperatur und Eisübersättigung. Die Aerosolgruppen sind unterteilt in DM (Staub und metallische Verbindungen), BC (Ruß oder andere kohlenstoffhaltige Verbrennungsprodukte, bzw. black carbon) und O (unlösliche organische Bestandteile) (Phillips et al., 2008; Phillips et al., 2012). In dem empirischen Ansatz werden organischen Aerosole teilweise durch Bakterien repräsentiert und $\sim 1\%$ der Gesamtbakterien (mit $100 L^{-1}$ abgeschätzt) werden INA Bakterienstämmen zugeordnet. Die Parametrisierung der unlöslichen organischen IN ist deshalb an Literaturergebnisse zu INA Bakterien angepasst (Phillips et al., 2009; Phillips et al., 2012). Im zweiten Anwendungsbeispiel, dem LM-SPECS (**L**okalmodell - **S**PECTral bin microphysic**S**), wird die Parametrisierung nach Diehl und Wurzler (2004) unverändert verwendet. Das LM, Vorläufer des COSMO, wird mit einer Spektral-bin-Mikrophysik gekoppelt (Grützun et al., 2008).

Hazra (2013) verwendet im ECHAM5 verschiedene Sensitivitätsläufe mit unterschiedlichen Nukleationsraten nach Chen et al. (2008) angepasst an Mineralstaub (Kaolinite), Mineralstaub mit einer Beschichtung aus Ammoniumsulfat, Ruß sowie Bakterien. Diese Sensitivitätsläufe sind mit einem Kontrolllauf verglichen, der die bestehende, aerosolunabhängige Beschreibung der Eisnukleation sowie Beobachtungsdaten der Meeresoberflächentemperatur und der Meereisbedeckung enthält. Die größten Unterschiede bestehen in der Eiskristallkonzentration zwischen Kontrolllauf und Sensitivitätslauf für alle Aerosoltypen in einem Druckniveau von $300 hPa$, was etwa $8,5 km$ Höhe entspricht. Die Differenz der relativen, mittleren Eiskristallkonzentration ist für beschichteten Mineralstaub und Bakterien am höchsten. Die mittlere Konzentration der Wolkentropfen ist in Hazra (2013) bis in ein Druckniveau von $800 hPa$ ($\sim 1,7 km$) für alle Szenarien geringer als für den Kontrolllauf. Oberhalb davon bis $300 hPa$ schwankt die Differenz der Wolkentropfenkonzentration um Null.

Eine alternative Parametrisierung der Eisnukleation von PBAP gilt für in Wasser gelöstes SnomaxTM. Diese gibt, ähnlich zur homogenen Eisnukleation von Lösungen, anhand der Wasseraktivität eine Senkung des Gefrierpunkts an. So ist der Unterschied im Gefrierpunkt

durch die Senkung des Gleichgewichtsschmelzpunktes und einem von der Lösung abhängigen Vorfaktor gegeben. Aufgrund eines geringeren Vorfaktors wird angegeben, dass SnomaxTM in einer Lösung mit Ammoniumsulfat im Vergleich zu ATD (**A**rizona **T**est **D**ust) ein effektiverer IN ist und die Eisbildung bei geringerer Unterkühlung initiiert (Koop und Zobrist, 2009).

3.4. Der singuläre Ansatz für die Parametrisierung von biologischen Aerosolpartikeln

Die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Parametrisierungen der heterogenen Eisnukleation basieren auf der Annahme, dass Eis ab einer bestimmten Temperatur augenblicklich an spezifischen Orten auf der Oberfläche von unlöslichen Partikeln entsteht (Niedermeier et al., 2010). Die Partikel tauchen zuvor in einen flüssigen Tropfen ein und fungieren als IN. An spezifischen, eisaktiven Stellen der IN ist die Gibbs freie Energie an der Wasser-Eis-Grenze herabgesetzt (Fletcher et al., 1962). Im singulären Ansatz ist die Dichte dieser eisaktiven Stellen auf der Partikeloberfläche als $n_s(T)$ definiert. Die Dichte an Stellen $n_s(T_{min})$, die in einem bestimmten Temperaturbereich zwischen $T_0 = 0^\circ\text{C}$ und T_{min} eisaktiv sind, ist gegeben durch:

$$n_s(T_{min}) = - \int_{0^\circ\text{C}}^{T_{min}} k(T) dT \quad (3-5)$$

mit der Dichte eisaktiver Stellen $k(T)$, die bei einer Temperaturabnahme um dT aktiviert werden (Connolly et al., 2009). Die eisaktive Fraktion f_{IN} beschreibt die Anzahl gefrorener Tropfen N_f zu der Gesamttropfenanzahl N_0 . Eine Zunahme von N_f senkt die Anzahl flüssiger, ungefrorener Tropfen N_u mittels $dN_u = -dN_f$ gleichermaßen. Die Dichte eisaktiver Stellen, vergleichbar mit der in Vali (1971) verwendeten IN-Konzentration in einem Probenvolumen nach Gleichung (3-1), ist in diesem Ansatz auf die Aerosoloberfläche A_p bezogen:

$$\frac{dN_u}{dT} = -N_u A_p k(T) \quad (3-6)$$

Über die Integration der Änderung von N_u mit der Temperatur von $N_0(T_0)$ bis $N_u(T_{min})$ wird f_{IN} in Bezug zur Dichte eisaktiver Stellen gesetzt:

$$f_{IN}(T) = \frac{N_f}{N_0} = 1 - \exp(-A_p n_s(T_{min})) \quad (3-7)$$

Mit dem singulären Ansatz lässt sich bei Nukleationsexperimenten die eisaktive Fraktion aus dem Verhältnis von gefrorenen zu ungefrorenen Tropfen angeben, ohne Informationen über die verwendete Kühlrate zu benötigen. Bei diesem Ansatz werden Informationen über

die temperaturabhängige Dichte eisaktiver Stellen der jeweiligen PBAP und deren Partikeloberfläche benötigt. Für ein Set von polydispersen Proben kann anhand einer Größenverteilungsfunktion die Dichte eisaktiver Stellen unabhängig von der einzelnen Partikelgröße bestimmt werden.

Die Analyse der Eiskeimeigenschaft von PBAP zeigt häufig, dass eine Vielzahl von Tröpfchen in einem sehr kleinen Temperaturbereich gefrieren. Eine Teilmenge der gesamten Tröpfchen bleibt jedoch ungefroren, auch bei weiterer Abkühlung des Probenvolumens. Möglicherweise besitzen PBAP derselben Spezies nicht immer dieselbe Dichte eisaktiver Stellen. Einige Individuen könnten die Fähigkeit haben, beispielsweise durch Aktivierung entsprechender Genabschnitte und Ausbildung bestimmter eisaktiver Proteine, eisaktive Stellen auf ihrer Oberfläche auszubilden. Diejenigen PBAP ohne eisaktive Stellen auf ihrer Oberfläche sind demnach in den ungefrorenen Tropfen enthalten. So nähert sich die Anzahl gefrorener Tropfen bei Abkühlung einem bestimmten Maximalwert f_{max} an, der bei weiterer Abkühlung konstant ist. Um dieses Verhalten in Gleichung (3-7) zu berücksichtigen, wird in der Parametrisierung eine modifizierte eisaktive Fraktion $f'_{IN} = f_{IN} f_{max}$ verwendet. f_{max} ist bei dem Ansatz ein weiterer, experimentell zu bestimmender Parameter.

Angepasst an AIDA-Experimente mit Bakterien (*Pseudomonas syringae*), Birkenpollen und Bodestaub (Schaupp, 2013; Steinke, 2013), sowie Literaturdaten zu Pilzsporen (*Cladosporium Sp.*) (Iannone et al., 2011) konnten vier Parametrisierungen der Eisaktivität nach dem singulären Ansatz abgeleitet werden. Die Anzahl eisaktiver Stellen $n_S(T)$ in m^{-2} wird durch einen exponentiellen Fit wiedergegeben:

$$n_S(T) = \exp(\alpha_1 (T - 273,15) + \alpha_2) \quad (3-8)$$

wobei T die Temperatur in K ist. Abbildung 3-3 zeigt die Parametrisierungen als Linien inklusive einer Linie der Parametrisierungen für Mineralstaub als Vergleich (Niemand et al., 2012). Für Kiefernpollen ist lediglich eine temperaturabhängige, eisaktive Anzahl $f_{IN}(T)$ verfügbar (Diehl et al., 2002), ohne die Verwendung von $n_S(T)$:

$$f_{IN}(T) = \alpha_1 T + \alpha_2 \quad (3-9)$$

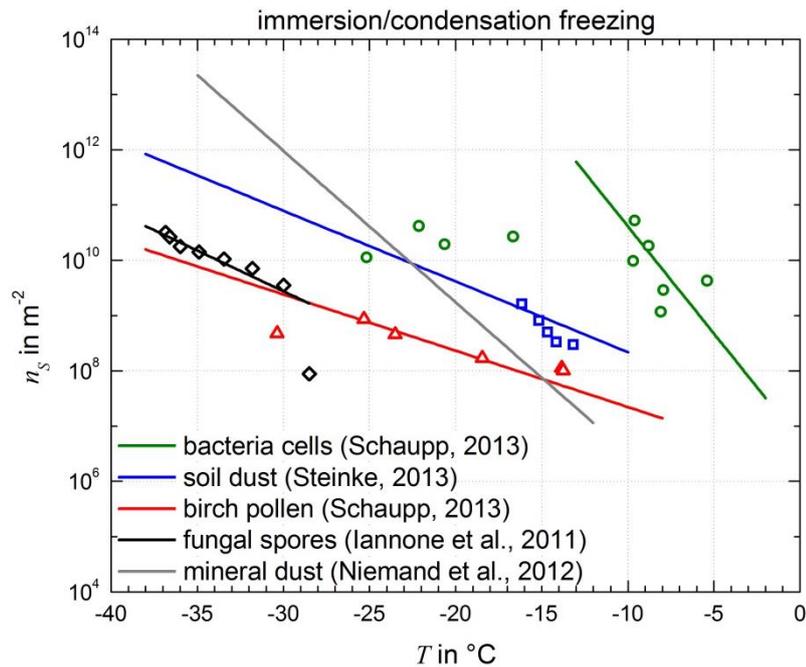


Abbildung 3-3: Darstellung der in der vorliegenden Arbeit berechneten Parametrisierungen der Dichte eisaktiver Stellen pro Partikeloberfläche n_s für Birkenpollen, Bakterien, Pilzsporen und Bodestaub. Die farbigen Punkte stellen die Messungen aus AIDA (Schaupp, 2013; Steinke, 2013) oder die Werte abgeleitet aus Iannone et al. (2011) dar. Als Vergleich dient die Parametrisierung aus Niemand et al. (2012) für Mineralstaub.

Die aus den verwendeten Experimenten resultierenden Werte für $n_s(T)$ sind in Abbildung 3-3 hinzugefügt. Zusätzlich sind weitere Ergebnisse von *Pseudomonas Syringae* Bakterien ergänzt, die nicht zur Berechnung von α_1 und α_2 miteinbezogen wurden. Die jeweiligen Parametrisierungen gelten nur bis zu einer bestimmten maximalen Temperatur T_{max} , bis zu der die Eisaktivität der entsprechenden Partikel nachgewiesen werden konnte. Die Literaturdaten zu Bakterien sind ergänzt, um einen Geltungsbereich der Parametrisierung bis zu einer maximalen Temperatur von -2°C zu rechtfertigen (Tabelle 3-1). Beim Abkühlen erreicht f_{IN} ab einer bestimmten Temperatur f_{max} und bleibt fortan konstant. Daher muss ein Temperaturminimum nicht definiert werden. Die verwendeten Parameter für die Parametrisierung sowie die maximal gültige Temperatur und eisaktive Fraktion sind in Tabelle 3-2 aufgelistet.

Tabelle 3-2: Parameter zur Berechnung der Oberflächendichte eisaktiver Stellen nach Gleichung (3-8) (α_1 und α_2) zusammen mit dem maximalen Anteil aktivierbarer IN (f_{max}), der maximalen Temperatur (T_{max}), die bei der Eisbildung in den Messungen beobachtet wurde und zu der die Parametrisierung extrapoliert ist, sowie der Anteil eisnukleationsaktiver Partikel (f_{INA}) an der jeweiligen Gesamtanzahl ⁽¹⁾ (Lindemann et al., 1982), ⁽²⁾ (Lang-Yona et al., 2012)).

Partikel	α_1	α_2	f_{max}	T_{max}	f_{INA}
Bakterien (<i>Pseudomonas syringae</i>)	-0,894	15,501	0,028	-2°C	4% ⁽¹⁾
Birkenpollen	-0,234	14,570	0,696	-8°C	100%
Kiefernpollen	-0,343	88,553	1	-15°C	100%
Pilzsporen (<i>Cladosporium Sp.</i>)	-0,339	11,567	1	-28,5°C	29% ⁽²⁾
Bodenstaub	-0,2947	16,252	1	-10°C	100%

Die Parametrisierungen der heterogenen Eisnukleation der PBAP beziehen sich jeweils auf Laboruntersuchungen einer speziellen, besonders eisaktiven Art. Die simulierten Birken- und Kiefernpollen werden als identisch zu den in den AIDA-Experimenten und bei Diehl et al. (2002) verwendeten Proben angenommen. Die AIDA-Experimente mit Bodenstaub sind mit Luftproben unmittelbar auf einem Feld oder mit Bodenproben durchgeführt worden. Die Emissionsparametrisierung ist angepasst, um genau diesen Typus von Partikeln wiederzugeben. Bei Bakterien und Pilzsporen ist die Emission hingegen nicht spezifisch für eine Art, sondern gibt den Gesamteintrag aller Arten in die Atmosphäre an. Um diesen Unterschied zu kompensieren muss abgeschätzt werden, wie hoch der Anteil der betrachteten, eisaktiven Arten zu der Gesamtanzahl von luftgetragenen Bakterien und Pilzsporen ist. Für die vorliegende Arbeit wird angenommen, dass die Verteilung der Arten räumlich und zeitlich konstant ist. Daraus ergibt sich ein konstanter Anteil f_{INA} von Arten, die in der vorliegenden Arbeit als eisaktiv berücksichtigt werden, zur Gesamtanzahl von Bakterien bzw. Pilzsporen.

3.5. Anwendung der Parametrisierung auf Bodenstaubpartikel

Mit organisch behaftetem Bodenstaub wird in der vorliegenden Modellstudie, zusätzlich zu den reinen PBAP, ein Agglomerat aus Bodenstaub und organischen oder biologischen Bestandteilen als IN berücksichtigt. Der Bodenstaub wird in der vorliegenden Arbeit gesondert zu den PBAP betrachtet und Bodenstaub-IN werden nicht zu den Gesamt-BIN addiert. Es steht nicht eindeutig fest, woraus die organischen oder biologischen Teile bestehen und ob sie für die erhöhte Eisaktivität gegenüber purem Mineralstaub (z.B. Kaolinite) verantwortlich sind. Die Parametrisierung des Immersionsgefrierens von in Tröpfchen eingetauchtem Bodenstaub beruht auf Analysen von Messreihen an AIDA. Der verwendete Bodenstaub stammt von Boden- und Luftproben brachliegender landwirtschaftlicher Nutzflächen aus Argentinien, Deutschland und der Mongolei (Steinke, 2013). Bei Messungen innerhalb eines

Temperaturbereichs zwischen -10°C und -25°C zeigt der Bodenstaub eine erhöhte Eisaktivität gegenüber ATD. Die in der Simulation verwendete Parametrisierung der Eisnukleation von Bodenstaub ist in Tabelle 3-2 angegeben.

4 Die resultierenden Bio-Aerosol Konzentrationen

4.1. Beschreibung des verwendeten Modellsetups

Die in Kapitel 2.4 beschriebenen Erweiterungen des Modellsystems COSMO-ART ermöglichen es, die Ausbreitung von PBAP auf regionaler Skala zu simulieren und ihren Einfluss auf Mischphasenwolken über die heterogene Eisnukleation zu untersuchen. Der horizontale Modellbereich ist für die Simulationen der vorliegenden Arbeit so gewählt, dass Abschätzungen der mittleren PBAP-Anzahlkonzentrationen über ein regional weit ausgedehntes Gebiet mit unterschiedlichen Ökosystemen getroffen werden können. Kleinräumige Einflüsse können in einen Vergleich zu Messungen Unstimmigkeiten hervorrufen. Jahreszeitliche Variationen können eine Extrapolation zur globalen Skala oder zu jährlichen Mittelwerten verzerren. Die horizontalen Modellränder sind so gewählt, dass ein möglichst hoher Anteil an Landflächen gegenüber Wasserflächen besteht. So ist eine Betrachtung der ausschließlich über Landflächen definierten PBAP-Emission bestmöglich. Die Modelldomäne der in der vorliegenden Arbeit gezeigten Simulationen erstreckt sich vom portugiesischen Festland bis nach Nordfinland (Abbildung 2-2). Vier verschiedene Simulationszeiträume wurden in der vorliegenden Arbeit betrachtet. Ein Zeitraum Ende April 2008 (07. bis 12. April 2008, jeweils 0 Uhr UTC) ist an die Birkenpollensaison (Nachweis durch das Schweizer **Nationale Pollen**netzwerk NAPOL) angepasst und berücksichtigt ein Jahr mit starker, aber nicht überdurchschnittlich hoher Konzentration. Anhand der CFSR (**C**limate **F**orecast **S**ystem **R**eanalysis) wurde ein Zeitraum konkretisiert, in dem mehrere kleine Tiefdruckgebiete mit erhöhter Windgeschwindigkeit die windabhängige Emissionsparametrisierung effizient stattfinden lässt. Zudem ermöglicht ein hoher Anteil an Mischphasenwolken ein häufiges Eintreten des Immersionsgefrierens von PBAP. Durch die Auswertung von Terra MODIS (**M**oderate Resolution Imaging **S**pectroradiometer) Satellitenaufnahmen konnte sichergestellt werden, dass kein erhöhter Eintrag von Saharastaub die Aerosolsimulationen im Vergleich zu Aerosolmessungen verfälscht. Da kein Mineralstaub von den Modellrändern in die Simulation miteinbezogen ist, kann der Einfluss von Saharastaub nicht berücksichtigt werden.

Drei weitere Zeiträume im Sommer und Herbst 2010 wurden ausschließlich für den Vergleich mit FBAP-Messungen verwendet und sind an den zeitgleichen Betrieb mehrerer UV-LIF Messgeräte an verschiedenen Standorten angepasst (Kapitel 4.3.2). In den Zeiträumen im Juli und August 2010 herrschten aufgrund von Tiefdruckeinfluss im nördlichen Teil der Modelldomäne unterdurchschnittlich kühle Temperaturen mit Regen. Zu Beginn der Oktoberzeitreihe dehnte sich laut CFSR ein Hochdruckgebiet über großen Teilen der betrachteten Simulationsdomäne aus, das gegen Ende durch ein Tiefdruckgebiet über Skandinavien beeinträchtigt wurde.

Ein direkter Vergleich von PBAP-Konzentrationen mit Messungen ist oft nicht möglich. Sowohl Unsicherheiten in den Messmethoden als auch räumliche und zeitliche Diskrepanzen liegen zwischen den betrachteten Partikeln vor. Unter Berücksichtigung dieser Faktoren kann daher bei der Einschätzung der Unterschiede zwischen Simulationen und Messungen oft nur eine Aussage über die Größenordnung getroffen werden.

Für die Analysen der vorliegenden Arbeit werden die ersten sechs Stunden der Simulation infolge des Einschwingens des Modells nicht verwendet.

4.2. Analyse der Emissionsflüsse

Die windabhängigen Emissionsflüsse für Pollen (von Birken und Kiefern) sind für einen exemplarischen Zeitschritt in Abbildung 4-1 dargestellt. Die Emission von Pollen liefert einen hohen Fluss und damit einen zahlreichen Eintrag von luftgetragenen Pollen in die unterste Atmosphärenschicht, wenn in einem Gebiet mit hohem Anteil an windbestäubten Pflanzen ein starker horizontaler Wind herrscht. Beim Vergleich der Flächenanteile der jeweiligen Baumart mit dem horizontalen Windvektor wird dieser Zusammenhang deutlich (Abbildung 2-5 und 4-1). Helbig et al. (2004) betrachten die hier verwendete Pollenemission genauer. Zum Simulationszeitraum im April 2008 beträgt der zeitlich und räumlich (über die Landflächen) gemittelte Emissionsfluss für Birkenpollen $0,77 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ und erreicht maximal $178 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (nach 62 Stunden). Die Emission von Kiefernpollen ist aufgrund der dichteren Baumverteilung innerhalb der Modelldomäne etwas höher als die von Birkenpollen und ist im Mittel bzw. Maximum über die Domäne und den Modellzeitraum $2,42 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ bzw. $472,45 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (nach 55 Stunden). Einige Gebiete im Norden Skandinaviens tragen zu dem betrachteten Zeitraum nicht zur Pollenemission bei, da Birken und Kiefern bei einer 2m -Temperatur unterhalb von 6°C noch biologisch inaktiv sind.

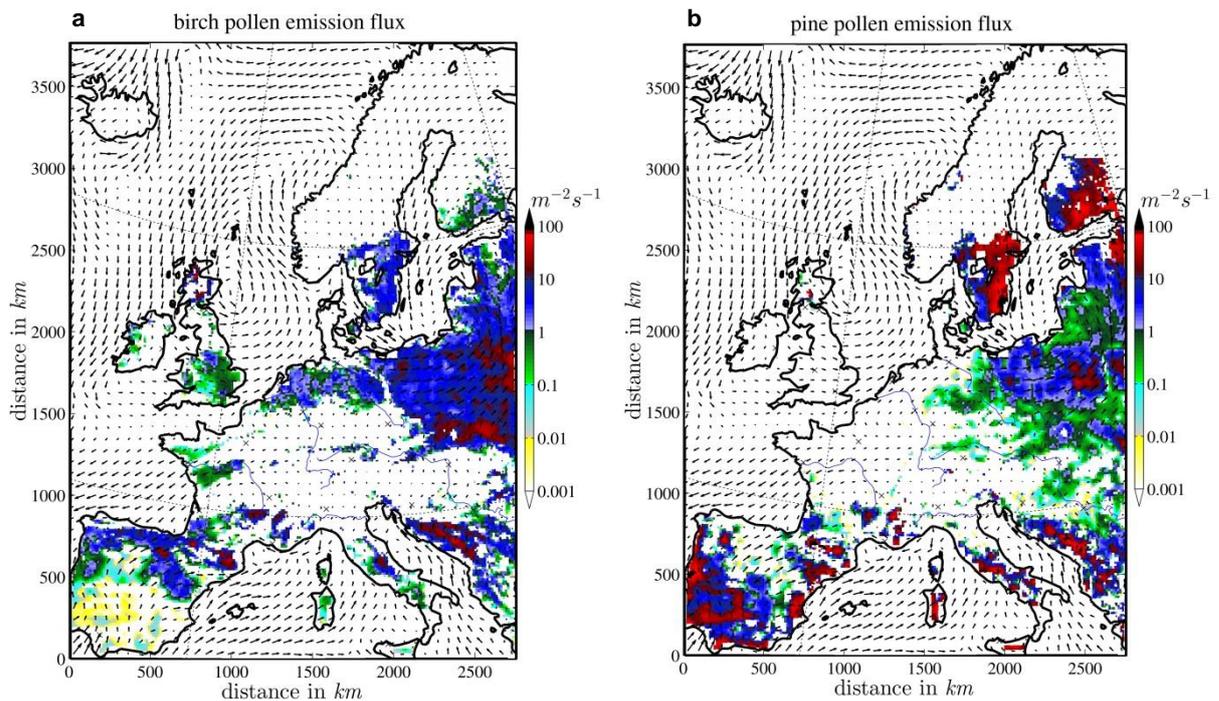


Abbildung 4-1: Simulierter Emissionsfluss von (a) Birken- und (b) Kiefernpollen in $m^{-2}s^{-1}$ zu einem exemplarischen Zeitschritt (nach 37 Stunden) mit ausgeprägten Pollenemissionsflüssen im April 2008. Die Pfeile stellen die horizontale Windrichtung und -geschwindigkeit dar.

Der zeitlich gemittelte Emissionsfluss der simulierten PBAP für April 2008 ist in Abbildung 4-2 dargestellt. Pilzsporen liefern im Vergleich zu Pollen einen deutlich höheren Beitrag zur PBAP-Anzahlkonzentration, wie Vergleiche mit der Literatur bestätigen (z.B. Després et al., 2012). Demnach ist der Emissionsfluss (basierend auf F_{FBAP} , Gleichung (2-69)) im April 2008 im Mittel zwei Größenordnungen ($305,72 m^{-2}s^{-1}$) über dem für Pollen. Allerdings wird keine spezifische Baumverteilung für die Emission vorausgesetzt, sondern der Fluss ist aufgrund der Skalierung mit LAI horizontal gleichmäßiger verteilt. Für Pilzsporen ist der maximale Emissionsfluss ($1871,47 m^{-2}s^{-1}$) lediglich ein Faktor drei größer als für Pollen. In den Simulationszeiträumen im Sommer und Herbst 2010 ist der Emissionsfluss von Pilzsporen deutlich über dem für April 2008. Innerhalb des Zeitraums im August 2010 beträgt der durchschnittliche Emissionsfluss für Pilzsporen anhand der drei zum Vergleich verwendeten Emissionsparametrisierungen (Kapitel 2.4.3) $F_{FBAP} = 1002,1 m^{-2}s^{-1}$, $F_{H\&S} = 611,4 m^{-2}s^{-1}$ und $F_{S\&D} = 613 m^{-2}s^{-1}$. Eine im Sommer erhöhte Aktivität der Biosphäre wird u.a. durch einen höheren LAI wiedergegeben, der in den Parametrisierungen F_{FBAP} und $F_{H\&S}$ linear mit der Emission korreliert.

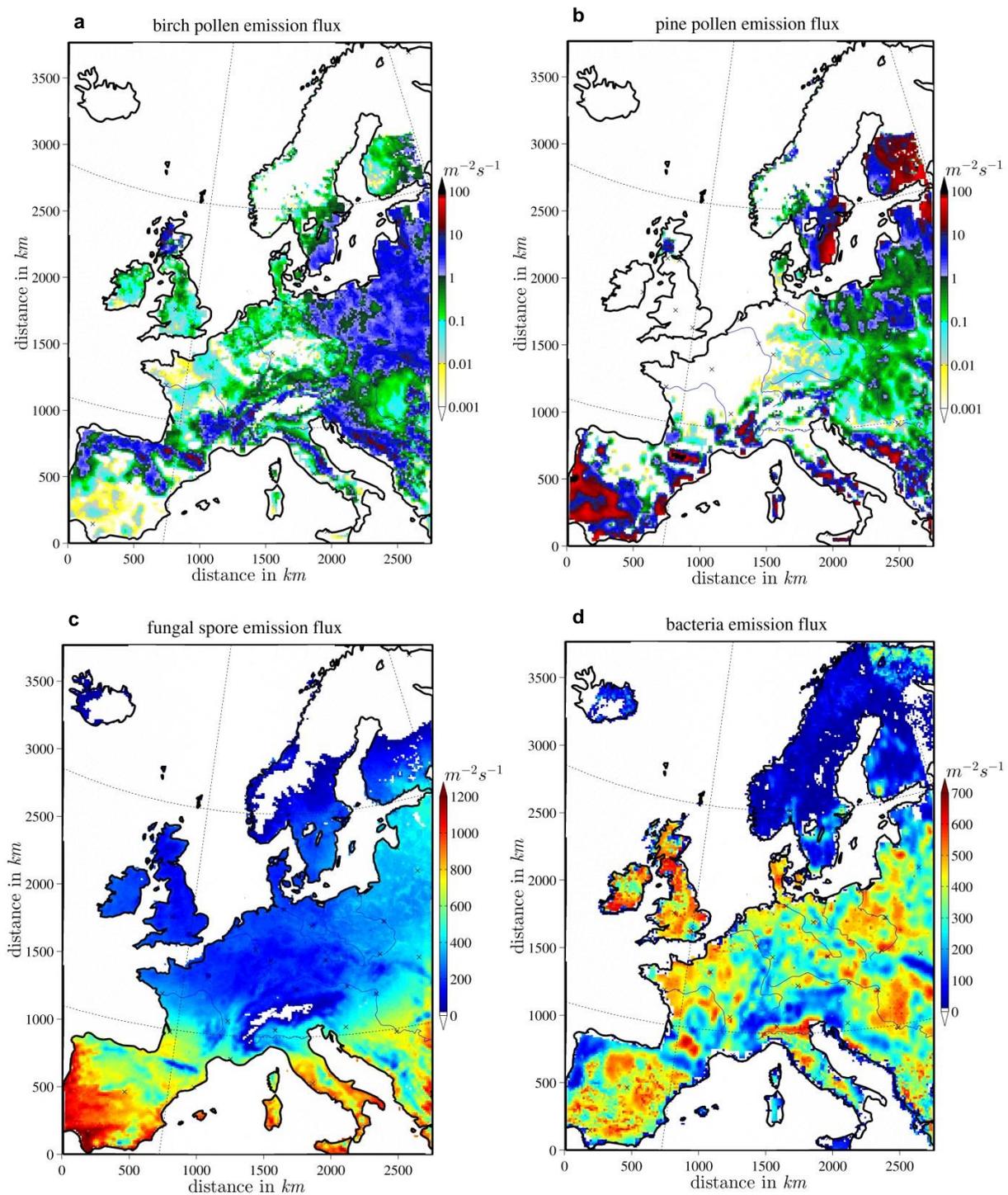


Abbildung 4-2: Simulierter mittlerer Emissionsfluss von (a) Birken- und (b) Kiefernpollen, (c) Pilzsporen und (d) Bakterien in $m^{-2}s^{-1}$ im April 2008.

Mit der Annahme von monodispersen Partikeln mit konstanter Dichte und unter Vernachlässigung der jährlichen Variation kann der über die Landflächen der Modelldomäne gemittelte Emissionsfluss auf die globalen Landflächen (ohne die Flächen von Wüsten und Inlandeis) (nach Bonan et al., 2002) extrapoliert werden. So kann die globale Quellstärke von Pilzsporen, ähnlich einem Vorgehen in Winiwarter et al. (2009), abgeschätzt werden. Damit wird der mittlere globale Emissionsfluss dem mittleren Emissionsfluss für Europa gleichge-

setzt, wodurch bei der Emission von Pilzsporen starke Quellgebiete im tropischen Regenwald eventuell unterschätzt werden. Um diesen Effekt zu kompensieren, sind für Pilzsporen die COSMO-ART Mittelwerte des Zeitraums August extrapoliert. Anhand eines Vergleichs der in COSMO-ART verwendeten, literaturbasierten Emissionsflüsse ($F_{H\&S}$ und $F_{S\&D}$) zu den ursprünglichen Berechnungen aus der Literatur (Heald und Spracklen, 2009; Sesartic und Dallafior, 2011) auf globaler Skala kann die Abschätzung überprüft werden. Die aus den Simulationen der vorliegenden Arbeit extrapolierten Emissionsflüsse für Pilzsporen anhand von $F_{H\&S}$ und $F_{S\&D}$ sind beide mit circa 20 Tg/a etwas geringer als die in Heald und Spracklen (2009) gegebene globale Quellstärke (28 Tg/a), aber deutlich über der Abschätzung für die Pilzsporenemission von Sesartic und Dallafior (2011) (8 Tg/a). Die abgeschätzte, globale Pilzsporenquellstärke nach F_{FBAP} beträgt 49 Tg/a und ist in der gleichen Größenordnung wie Berechnungen von Elbert et al. (2007).

Eine Abschätzung der globalen Quellstärke der Pollen anhand des durchschnittlichen Emissionsflusses für Birken- und Kiefernpollen, unter Berücksichtigung der Länge einer Pollensaison von 30 Tagen, ergibt 12 Tg/a und ist damit wesentlich geringer als Berechnungen mit einem GCM (47 Tg/a , Hoose et al., 2010a).

4.3. Konzentrationen in der untersten Modellschicht im Vergleich zu Messungen oder Simulationen auf globaler Skala

4.3.1. Pollen

Eine horizontale Verteilung der PBAP-Anzahlkonzentrationen der untersten Modellschicht (etwa 10 m über der Erdoberfläche) zeigt, dass die großen Pollenpartikel die geringste Konzentration der Gesamt-PBAP haben (Abbildung 4-3), unter anderem weil sie schneller sedimentieren als Pilzsporen und Bakterien. Die mittlere Konzentration für den April-Zeitraum über den Landflächen beträgt für Birken- und Kiefernpollen lediglich 11 m^{-3} respektive 29 m^{-3} . Sie erreicht lokal in den dicht bewaldeten und, verglichen mit Skandinavien, etwas wärmeren Gebieten Osteuropas (z.B. Polen oder Baltikum) Werte von $1,2 \cdot 10^3 \text{ m}^{-3}$ bzw. $2,8 \cdot 10^3 \text{ m}^{-3}$. Beim horizontalen Transport der Pollen lässt die Konzentration abseits von Quellgebieten (z.B. über dem Meer) in kurzer Entfernung aufgrund der größenabhängigen Sedimentation um mehrere Größenordnungen nach. Die Aerosollebensdauer kann mit einer Gleichgewichtsannahme abgeschätzt werden, in der die mittlere Konzentration zeitlich konstant und daher die Emissionsrate mit der Rate der Senken übereinstimmt. Die Berechnung liefert für Birkenpollen eine mittlere Lebensdauer von 128 Minuten. In der Simulation beträgt die mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit von Birkenpollen in den untersten Modellschichten etwa $2,1 \text{ cm/s}$. Eine Abschätzung für Birkenpollen mit dem Stokes'schen Gesetz ergibt lediglich $1,2 \text{ cm/s}$ (Sofiev et al., 2006). Anhand von Flugzeugmessungen konnte die Sedimentationsgeschwindigkeit von Birkenpollen anhand

des Durchmessers abgeschätzt werden. Der mit der Höhe abnehmende Durchmesser der Pollen senkt die Fallgeschwindigkeit von $2,2 \text{ cm/s}$ in Bodennähe (10 m) auf $1,6 \text{ cm/s}$ in 1 km Höhe (Rempe, 1937). Die COSMO-ART Simulation von monodispersen Pollenpartikeln lassen hingegen erkennen, dass die Sedimentationsgeschwindigkeit von Pollen mit der Höhe zunimmt.

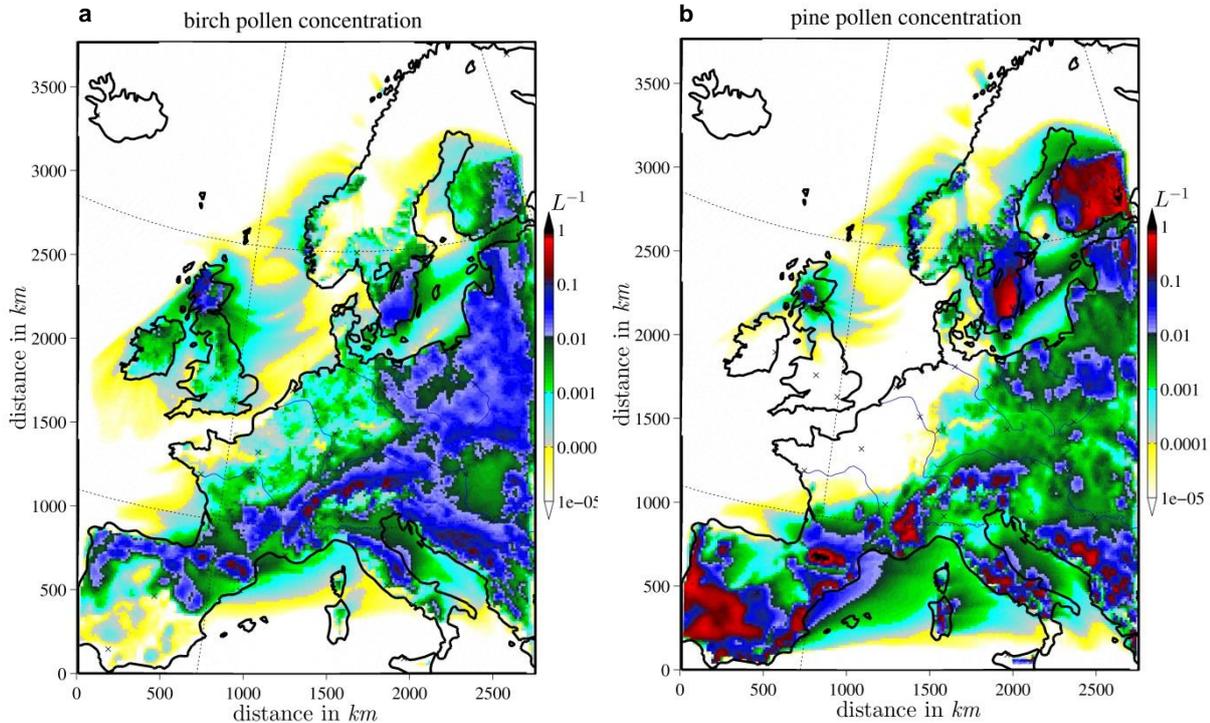


Abbildung 4-3: Horizontale Verteilung der mittleren Anzahlkonzentration in L^{-1} von (a) Birken- und (b) Kiefernpollen für den Zeitraum im April 2008 in der untersten Modellschicht.

Die Größenordnung der mittleren Gesamtpollenkonzentration von etwa 10^3 m^{-3} innerhalb der Pollensaison (Després et al., 2012) kann durch die Modellsimulation bestätigt werden. In der Literatur angegebene Konzentrationen außerhalb der Pollensaison von 10 m^{-3} (Després et al., 2012) werden in den nördlichen Regionen der Modelldomäne, wo die Umgebungstemperatur die Emission teilweise unterdrückt, erreicht.

Aufgrund ihrer Allergierelevanz werden Pollen an mehreren Standorten in Europa routinemäßig gezählt. Der Jahresmittelwert der Gesamtpollenkonzentration (etwa 80% der Arten wurden erfasst) in Badajoz, Spanien, betrug (zwischen 1993 und 2008) 158 m^{-3} (Tormo-Molina et al., 2010). Für zwei Orte im Norden und Süden Finnlands (Turku und Oulu) waren die maximalen Konzentrationen im April 1999, während der Pollensaison, zwischen $2 \cdot 10^3 \text{ m}^{-3}$ und $3 \cdot 10^3 \text{ m}^{-3}$, außerhalb der Saison unter 10 m^{-3} (Sofiev et al., 2006). Langzeitmessungen in Saint Louis, USA, ergaben ein geringeres Maximum der mittleren, täglichen Pollenkonzentration während der Hauptblütezeit (etwa 1080 m^{-3}). Die Saison ist durchschnittlich ungefähr einen Monat lang (Pasken und Pietrowicz, 2005). Im Vergleich dazu zeigten die Messungen aus Finnland innerhalb eines Jahres eine deutlich erhöhte Pollenkonzentration über etwa zehn Tage hinweg. In Trieste, Norditalien, lag der Jahresmaximalwert

der mittleren täglichen Konzentration (zwischen 1999 bis 2004) bei 891 m^{-3} bei Erfassung aller luftgetragenen Pollen (Rizzi-Longo et al., 2007). Der Beitrag von Birken- und Kiefernpollen betrug an diesem Standort 0,65% bzw. 5,07%, wobei die mittleren Konzentrationen über die jeweilige Pollensaison bei $6,06 \text{ m}^{-3}$ bzw. $42,05 \text{ m}^{-3}$ und die Maximalkonzentrationen bei 38 m^{-3} bzw. 392 m^{-3} lagen (Rizzi-Longo et al., 2007). In Klagenfurt, Österreich, dominierten Birkenpollen die Gesamtpollenverteilung und erreichten im mittleren Jahresgang (1980 bis 2007) ihre maximale Anzahlkonzentration Mitte April mit etwa 430 m^{-3} . Im Rekordjahr 2004 betrug die maximale Konzentration 2860 m^{-3} (Zwander et al., 2005; Zwander und Koll, 2010). Obwohl Trieste und Klagenfurt nur etwa 115 km voneinander entfernt liegen ist ein hoher Konzentrationsunterschied der Birkenpollen aufgrund ihrer kurzen atmosphärischen Lebensdauer und der Topografie dieser Region denkbar. Die Modellsimulation kann die Konzentrationen in Trieste gut wiedergeben (Mittelwert: $3,3 \text{ m}^{-3}$, Maximalwert: $31,8 \text{ m}^{-3}$). Ein Gradient zwischen den mittleren Konzentrationen an den beiden Orten kann nicht festgestellt werden, obwohl hohe Unterschiede der mittleren Konzentration von etwa zwei Größenordnungen in diesem Ausschnitt der Domäne auftreten.

Bei UV-LIF Messungen in Mainz, Deutschland, können bei einem Durchmesser von etwa $12 \mu\text{m}$ bis $17 \mu\text{m}$ Partikel auftreten, die höchstwahrscheinlich Pollen sind. Die Anzahlkonzentration dieser Partikel ist im Oktober 2006 mit $2 \cdot 10^3 \text{ m}^{-3}$ angegeben (Huffman et al., 2010).

Ein direkter Vergleich der simulierten Birkenpollenkonzentration wurde mit Tagesmittelwerten des NAPOL durchgeführt. Die simulierten Konzentrationen mit einer stündlichen Auflösung wurden zur Anpassung an die Messwerte über jeweils einen Tag gemittelt. Der zeitliche Verlauf der Tagesmittelwerte von Simulation und Messung an den einzelnen Stationen des NAPOL in der Schweiz ist in Abbildung 4-4 dargestellt. Eine gute Übereinstimmung der Simulationswerte mit den Messungen, beispielsweise an den Stationen Zürich und Münsterlingen, zeigt, dass COSMO-ART in dem angewendeten Setup in der Lage ist, die Größenordnung der Birkenpollenkonzentrationen wiederzugeben. Die Abweichungen an einigen Orten deuten teilweise auf eine zeitliche Verschiebung desselben Verlaufs hin. An den Stationen Basel und Lugano steigen die Konzentrationen des NAPOL etwa ein bis zwei Tage vor dem simulierten Zeitabschnitt an, anschließend ist ein jeweils vergleichbarer Anstieg in dem zeitlichen Verlauf der simulierten Birkenpollenkonzentration zu erkennen. Ursache könnten leicht verändert stattfindende meteorologische Bedingungen sein, die aufgrund der Auflösung oder Orografie des Modells nicht genau wiedergegeben werden. Einige Vergleiche (Bern, Davos, Visp) zeigen sehr hohe Konzentrationen bei entweder Simulation oder Messung, wobei im Gegensatz dazu die zu vergleichende Zeitreihe an demselben Standort keine oder eine sehr niedrige Pollenkonzentrationen aufweist. Dieser gegensätzliche Verlauf kann allerdings nicht einheitlich auf eine Überschätzung von Simulation oder Messung bezogen werden.

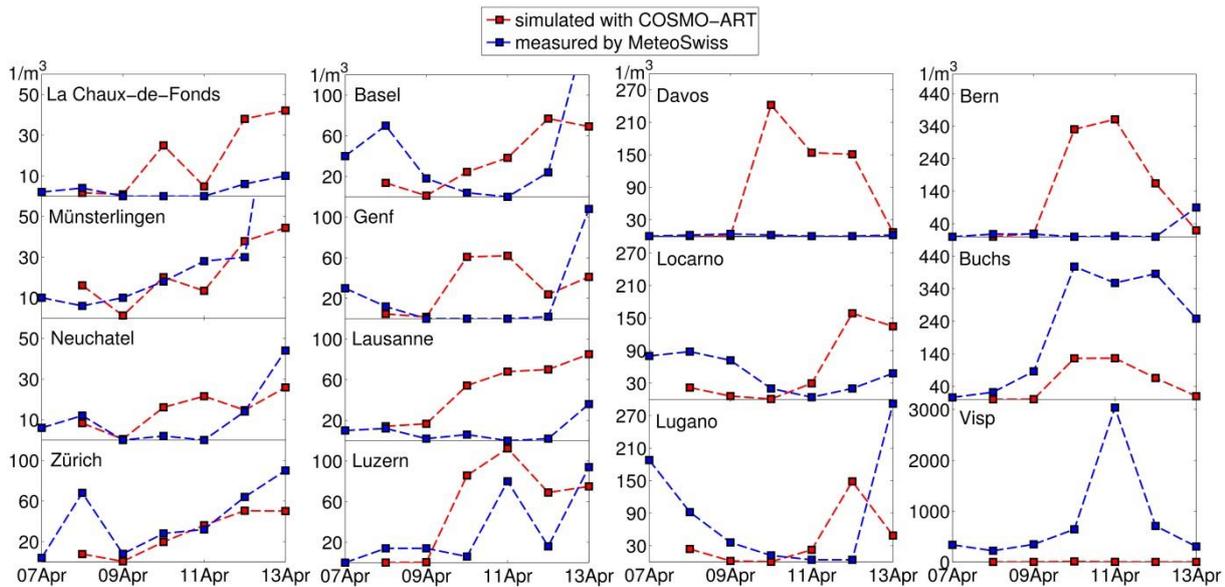


Abbildung 4-4: Zeitreihen der Tagesmittelwerte simulierter (rote Linie) und gemessener (blaue Linie) Anzahlkonzentration von Birkenpollen an verschiedenen Standorten in der Schweiz für den Zeitraum im April 2008.

4.3.2. Bakterien

Bakterien sind im Vergleich zu Pollen horizontal gleichmäßiger über die Modelldomäne verteilt. Ihr Mittelwert der bodennahen Anzahlkonzentration über den Landflächen weicht weniger stark von dem Mittelwert der gesamten Domäne ab (Abbildung 4-6 und 4-15a) als bei Pollen. Die mittlere Lebensdauer der simulierten Bakterien beträgt etwa 5:30 Stunden. Durchschnittliche Anzahlkonzentrationen von luftgetragenen Bakterien sind in der Größenordnung von $10^4 m^{-3}$ (Burrows et al., 2009b) und damit meist etwas höher als die von Pilzsporen (Bauer et al., 2008). Aerosolmessungen an der alpinen Station am Jungfraujoch (JFJ) werden häufig für eine Abschätzung der Hintergrundkonzentrationen verwendet. Dort wurden im Sommer und Herbst 2010 Bakterienkonzentrationen zwischen $2,1 \cdot 10^4 m^{-3}$ und $7,5 \cdot 10^4 m^{-3}$ detektiert (Xia et al., 2013). Bei Messungen an verschiedenen Standorten in Colorado, USA, wurden durchschnittlich Konzentrationen von luftgetragenen Bakterien während Juni und Juli 2010 zwischen $10^5 m^{-3}$ und $2,6 \cdot 10^6 m^{-3}$ ermittelt (Bowers et al., 2010). Saisonal verteilt variieren die Hintergrundkonzentrationen an einem Bergstandort in Colorado zwischen Frühling 2008 und Winter 2010 von $10^3 m^{-3}$ bis $10^5 m^{-3}$ für Bakterien mit $d_p > 0,5 \mu m$ (Bowers et al., 2012) und sind damit um ein bis zwei Größenordnung niedriger als quellnahe Messungen.

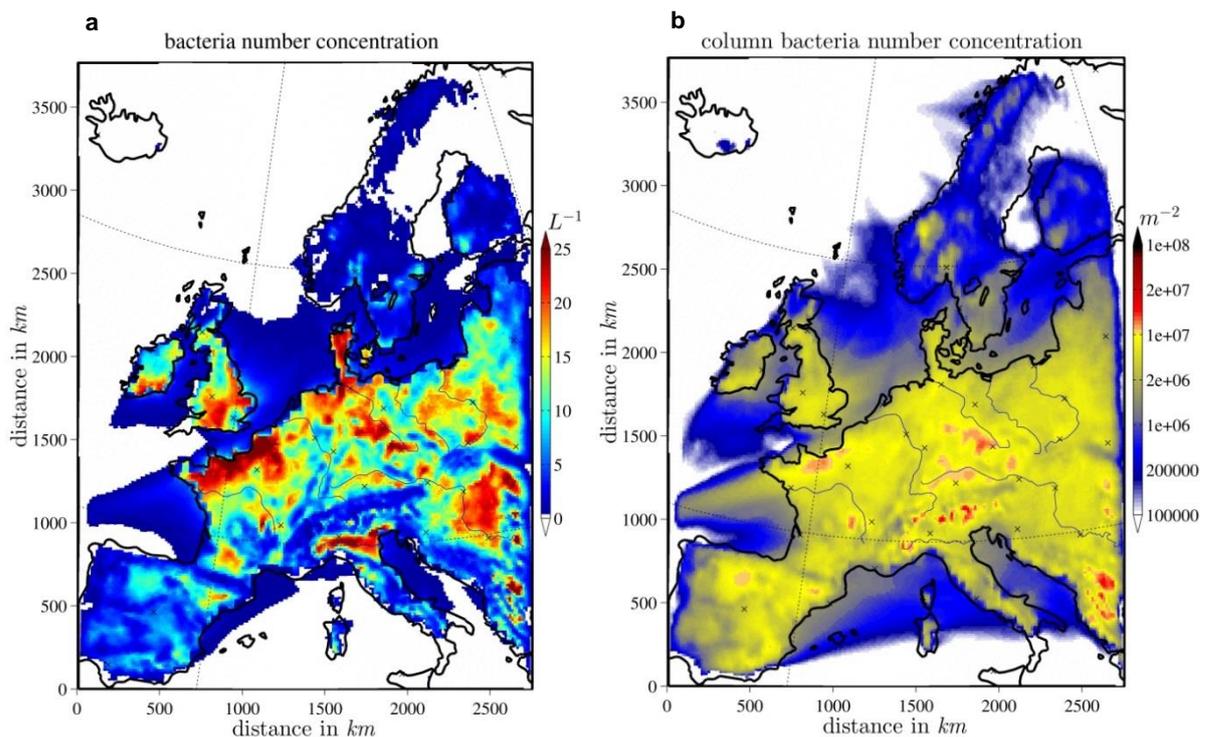


Abbildung 4-5: (a) Horizontalverteilung simulierter Bakterien in der untersten Modellschicht, gemittelt über den Zeitraum im April 2008. (b) Vertikal integrierte Anzahlkonzentration von simulierten Bakterien während des Zeitraums April 2008.

Die mittleren Bakterienkonzentrationen der Modellsimulationen der vorliegenden Arbeit liegen unterhalb der Literaturwerte. Zudem ist die Relation zu der mittleren Anzahlkonzentration von Pilzsporen in der hier gezeigten Modellsimulation gegensätzlich zu den Angaben in der Literatur. Wie in Després et al. (2012) zusammengefasst, sind die mittleren Anzahlkonzentrationen von Bakterien eine halbe bis eine Größenordnung höher als die von Pilzsporen. Im Gegensatz dazu sind die in der vorliegenden Arbeit simulierten Anzahlkonzentrationen von Bakterien im Mittel niedriger als die von Pilzsporen. Mittlere bodennahe Anzahlkonzentrationen von Bakterien (Abbildung 4-5a) betragen $3,5 \cdot 10^3 m^{-3}$ (Mittelwert über den Zeitraum im April 2008, konstanter Emissionsfluss für Bakterien). Maximalwerte der Bakterienkonzentration von $1,1 \cdot 10^5 m^{-3}$ bleiben unter den von Pilzsporen und sind etwa eine Größenordnung unterhalb der Obergrenze der in der Literatur gegebenen Konzentrationen.

Simulationen mit dem globalen Aerosoltransportmodell EMAC (ECHAM5 zur allgemeinen atmosphärischen Zirkulation und MESSy1,5 als modulares Submodellsystem), anhand dessen die in der vorliegenden Arbeit angewendete Emissionsparametrisierung für Bakterien getestet wurde, ergeben in vielen kontinentalen Regionen bodennahe Bakterienkonzentrationen von $10^4 m^{-3}$ bis $10^5 m^{-3}$ (Burrows et al., 2009a). Die Parametrisierung wurde an Literaturdaten angepasst und stimmt daher mit der Größenordnung der Messwerte überein. Für Europa liegen die EMAC Simulationen zwischen $5 \cdot 10^3 m^{-3}$ und $5 \cdot 10^4 m^{-3}$ und sind damit niedriger als in vielen anderen kontinentalen Gebieten. Bakterienverteilungen aus

weiteren Modellstudien mit CAM-Oslo und ECHAM5 unter Verwendung derselben Emissionsparametrisierung zeigen mittlere Anzahlkonzentrationen über Europa von etwa $10^4 m^{-3}$ (Hoose et al., 2010a; Sesartic et al., 2012). Die in den GCM angegebenen Werte für Europa stimmen von der Größenordnung her gut mit den von COSMO-ART simulierten Bakterienkonzentrationen überein.

4.3.3. Pilzsporen

Atmosphärische Pilzsporenkonzentrationen liegen durchschnittlich in einer Größenordnung von $10^3 m^{-3}$ bis $10^4 m^{-3}$ bzw. $0,1 \mu g m^{-3}$ bis $1 \mu g m^{-3}$ (Després et al., 2012). Detaillierte Zusammenstellungen der atmosphärisch gemessenen Pilzsporenkonzentrationen, hauptsächlich mittels Auszählen von CFU, DNS-Analysenmethoden oder Messen von chemischen Tracern, sind in Elbert et al. (2007) und Sesartic und Dallafior (2011) gegeben. Die Pilzsporenkonzentrationen der Modellsimulationen der vorliegenden Arbeit stimmen gut mit der Größenordnung der in der Literatur angegebenen Konzentrationen überein. Die Simulationen der Zeiträume im Sommer und Herbst 2010 überschätzen diesen Bereich allerdings leicht. Die über den Zeitraum im August 2010 gemittelten bodennahen Konzentrationen sind in Abbildung 4-6 dargestellt. Der Mittelwert über das Modellgebiet beträgt $1,5 \cdot 10^4 m^{-3}$ und ist etwa doppelt so hoch wie für den Zeitraum im April 2008 ($6,7 \cdot 10^3 m^{-3}$).

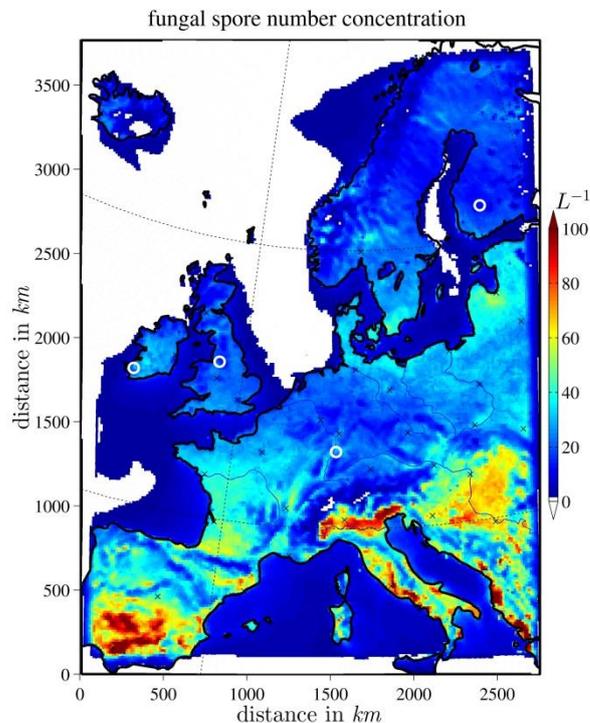


Abbildung 4-6: Horizontalverteilung der simulierten Pilzsporenkonzentration in L^{-1} in der untersten Modellschicht, emittiert nach F_{FBAP} und gemittelt über den Zeitraum im August 2010. Die weißen Kreise markieren die Standorte der FBAP-Messungen.

Für eine genaue Einschätzung der Pilzsporenkonzentrationen wird mit FBAP-Messungen vom Sommer und Herbst 2010 verglichen. FBAP-Messreihen von vier verschiedenen Standorten wurden in den Vergleich miteinbezogen: eine ländliche Station in Hyytiälä, Finnland, eine Station in einem Vorort nahe Karlsruhe, Deutschland, eine küstennahe Station in Killarney, Irland, und eine städtische Station in Manchester, UK (Tabelle 4-1). Die Auswahl der verwendeten Zeiträume ist an den zeitgleichen Betrieb von mehreren UV-LIF Messgeräten angepasst.

Tabelle 4-1: Überblick über die Standorte der FBAP-Messungen mit genauer Positionsangabe, Instrumentenbezeichnung und untersuchtem Partikelgrößenbereich. Die ausgefüllten oder weißen Punkte geben zu jedem Simulationszeitraum und Standort die Verfügbarkeit der Daten an. Der Bereich darunter gibt die mittleren Simulationswerte für den Blattflächenindex LAI , die durchschnittliche Temperatur T und die spezifische Feuchtigkeit q_v während des Zeitraums an.

Standort	Karlsruhe, Deutschland	Hyytiälä, Finnland	Manchester, UK	Killarney, Irland
Koordinaten	49° 5' 43,6" N 8° 25' 45,0" E	61° 50' 41,0" N 24° 17' 17,4" E	53° 27' 57,0" N 2° 13' 56,0" W	52° 3' 28,0" N 9° 30' 16,4" W
Höhe über NN	111 m	152 m	45 m	34 m
Messinstrument	WIBS-4	UV-APS	WIBS-3	WIBS-4
Größenbereich	$0,8 \leq d_p \leq 16 \mu m$	$1 < d_a \leq 20 \mu m$	$0,8 \leq d_p \leq 20 \mu m$	$1 < d_a \leq 20 \mu m$
22. Juli 2010 - 28. Juli 2010	●	●	○	○
$LAI (m^2/m^2)$	3,18	3,72	-	-
mittlere $T (°C)$	17,3	16,2	-	-
mittlere $q_v (kg/kg)$	0,0088	0,0108	-	-
26. August 2010 - 1. September 2010	●	●	●	●
$LAI (m^2/m^2)$	2,94	3,4	2,87	2,06
mittlere $T (°C)$	16,6	8,5	11,6	11,1
mittlere $q_v (kg/kg)$	0,0099	0,0067	0,0073	0,0072
11. Oktober 2010 - 21. Oktober 2010	●	●	○	○
$LAI (m^2/m^2)$	1,49	1,27	-	-
mittlere $T (°C)$	6,5	-0,6	-	-
mittlere $q_v (kg/kg)$	0,0055	0,0034	-	-

FBAP können bei Messungen mit Umgebungsluft nicht eindeutig einem biologischen Stamm zugeordnet werden. Sowohl Bakterien, Pilzsporen als auch Pollen können in einem Größenbereich von $0,5 \mu m$ bis $20 \mu m$ mit den Geräten WIBS und UV-APS nachgewiesen werden. Bei fast allen FBAP-Messungen mit Umgebungsluft weist die Anzahlgrößenverteilung erhöhte Konzentrationen im Bereich von $2 \mu m$ bis $4 \mu m$ auf und in vielen Fällen dominieren Partikel in diesem Größenbereich die FBAP-Messungen (Gabey et al., 2010; Huffman et al., 2010; Toprak und Schnaiter, 2013). Die mittleren FBAP-Größenverteilungen über den gewählten Zeitraum im August 2010 an den Stationen Karlsruhe, Hyytiälä und Killarney zeigen einen deutlichen Höchstwert für Partikel zwischen $2 \mu m$ und $4 \mu m$ im

Durchmesser (Abbildung 4-7). Bei dieser Größe sind Pilzsporen und Bakterienagglomerate die atmosphärisch am häufigsten vorkommenden PBAP (Jones und Harrison, 2004; Fang et al., 2008; Després et al., 2012). In FBAP-Messungen wird der Größenbereich zwischen $2 \mu\text{m}$ und $4 \mu\text{m}$ häufig von Pilzsporen dominiert (Huffman et al., 2012). Lediglich in Manchester hat die mittlere FBAP-Größenverteilung bei $1 \mu\text{m}$ ihr Maximum.

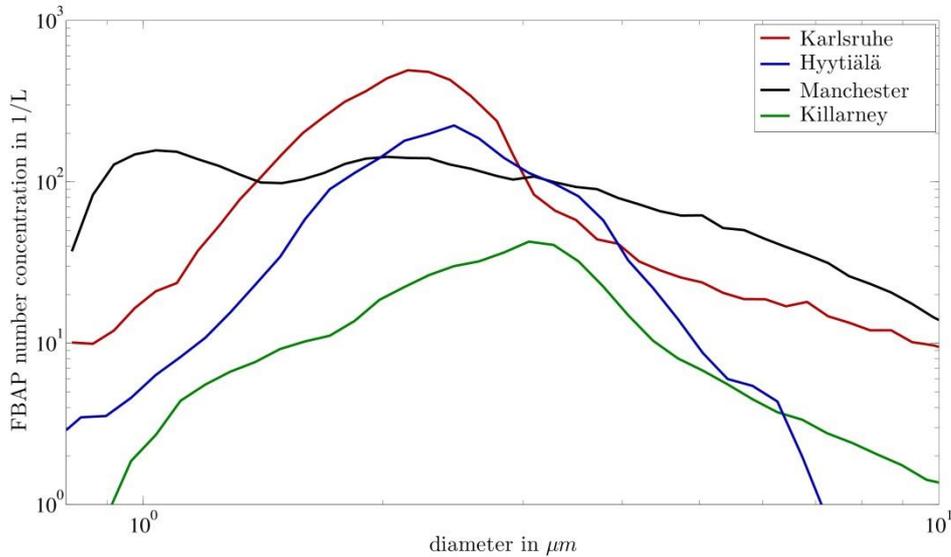


Abbildung 4-7: Von den WIBS Instrumenten in Karlsruhe, Hyttiälä, Manchester und Killarney gemessene FBAP-Größenverteilung in L^{-1} pro μm während des Simulationszeitraums im August 2010.

Die gemessenen FBAP-Konzentrationen wurden mit Pilzsporenkonzentrationen anhand von drei unterschiedlichen Emissionsparametrisierungen verglichen. Zwei der Parametrisierungen in den Gleichungen (2-66) und (2-67) sind aus der Literatur übernommen (Heald und Spracklen, 2009; Sesartic und Dallafior, 2011), eine ist nach Gleichung (2-69) an die FBAP-Messungen angepasst. Eine Übersicht über alle acht Zeitreihen ist durch die statistische Analyse mittels Box-Whisker-Plot gegeben (Abbildung 4-8). Die FBAP-Messungen sind für diese Analyse stündlich gemittelt, um mit dem Zeitschritten der Modelldaten von einer Stunde übereinzustimmen. An den Stationen Karlsruhe und Hyttiälä sind die simulierten Konzentrationen häufig geringer als die gemessenen FBAP-Konzentrationen, mit besonders deutlichen Unterschieden im August 2010 in Hyttiälä. In vielen Fällen, besonders im Juli in Hyttiälä sowie im August in Manchester und Killarney stimmen die literaturbasierten Simulationswerte aus $F_{H\&S}$ gut mit den Messungen überein. Im Oktober-Zeitraum sind FBAP-Messungen vergleichsweise gut durch die simulierten Pilzsporenkonzentrationen basierend auf $F_{S\&D}$ wiedergegeben. Langzeitanalysen der FBAP-Messungen, inklusive der Stationen Karlsruhe (Toprak und Schnaiter, 2013) und Hyttiälä (Schumacher et al., 2013), zeigen einen Jahrgang der durchschnittlichen FBAP-Anzahlkonzentration mit den höchsten Werten im Sommer, den niedrigsten im Winter und einer Übergangsphase während Frühling und Herbst. Die Simulationswerte basierend auf einem LAI -abhängigen Emissionsfluss folgen im Oktober den gemessenen FBAP-Konzentrationen etwas präziser. Daher könnte eine Simulation mit einem konstanten Emissionsfluss $F_{S\&D}$ nicht geeignet sein, um die jahreszeitliche Variation der FBAP-Konzentrationen wiederzugeben.

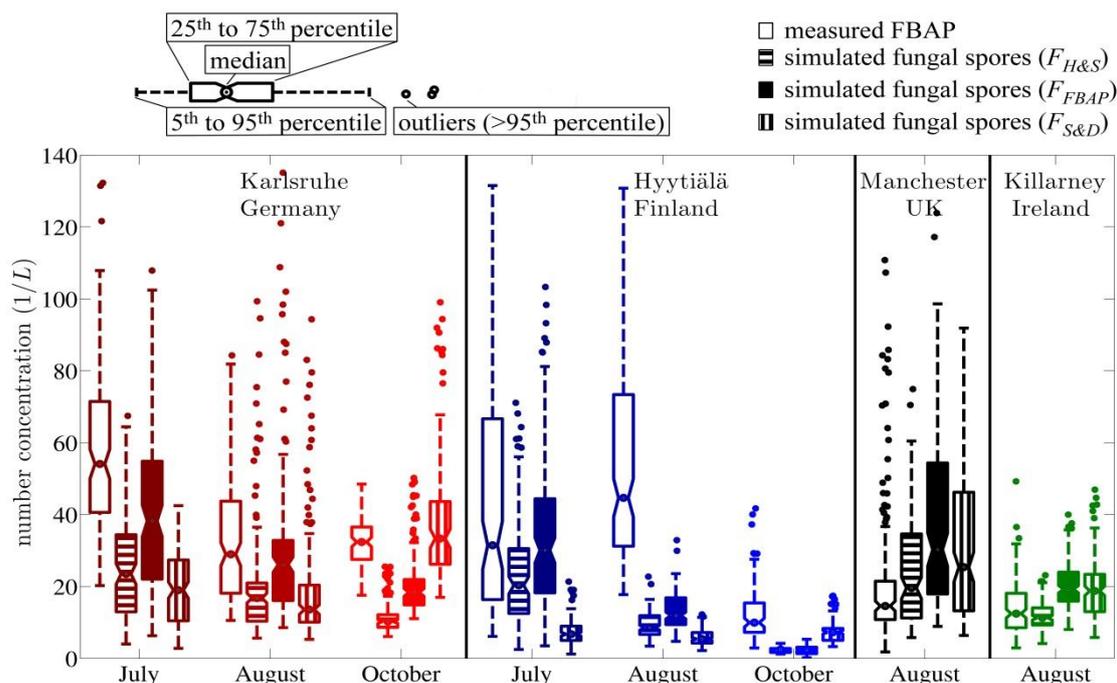


Abbildung 4-8: Box-Whisker-Plot für die Anzahlkonzentration in L^{-1} von gemessenen FBAP (leere Boxen) und simulierte Pilzsporen anhand von drei verschiedenen Emissionsparametrisierungen aus F_{FBAP} (komplett ausgefüllte Boxen), $F_{H\&S}$ (horizontal gestreifte Boxen) und $F_{S\&D}$ (vertikal gestreifte Boxen) für die verschiedenen Simulationszeiträume. Der Punkt in der Box gibt den jeweiligen Medianwert, die oberen und unteren Kanten die 25. und 75. Perzentile an. Der Bereich der gestrichelten Linien beinhaltet alle Datenpunkte außer Ausreißern (>95. Perzentile), die als Punkte dargestellt sind.

Eine Gegenüberstellung der gemessenen FBAP- und simulierten Pilzsporenkonzentration ist für jede Zeitreihe in den Abbildungen 4-9 bis 4-12 gegeben. Jede der Abbildungen zeigt sowohl die gemessenen Konzentrationen, die das entsprechende Gerät als FBAP ausgibt, als auch drei simulierte Pilzsporenkonzentrationen gegeben durch drei Emissionsparametrisierungen. Die anhand von F_{FBAP} simulierten Konzentrationen sind für den Gitterpunkt, der der Messstation am nächsten ist, und als Mediankonzentrationen mit Standardabweichung für die umliegenden Gitterpunkte angegeben. Aufgrund des Einschwingens des Modells sind die simulierten Konzentrationen innerhalb der ersten Stunde deutlich niedriger. Der vom Modell berechnete Gesamtniederschlag ist durch die grauen Boxen mit Ordinate auf der rechten Seite der Abbildung gekennzeichnet. Zudem ist die simulierte Grenzschichthöhe im unteren Abschnitt jeder Abbildung enthalten.

Am Messstandort in Karlsruhe während des Zeitabschnitts im Juli 2010 weisen gemessene und simulierte Konzentrationen einen Tagesgang auf, wobei die beiden literaturbasierten Simulationen kontinuierlich unterhalb der Messungen liegen (Abbildung 4-9). Die simulierten Konzentrationen anhand von F_{FBAP} liegen durchgängig höher als die literaturbasierten Konzentrationen und geben daher die Messwerte etwas besser wieder. Beim Eintreten von Niederschlag im Modell werden Pilzsporen durch Auswaschen aus der Atmosphäre entfernt, wodurch die Konzentration sinkt und die Entwicklung des Tagesgangs gestört ist. Anschließend kehrt die simulierte Konzentration rasch wieder zur

ihren Ausgangswerten zurück. In Hyytiälä tritt ein deutlicher Abfall in der simulierten Anzahlkonzentration am 24. Juli auf, der präzise mit dem Eintreten des simulierten Niederschlags übereinstimmt. Nach dem Minimum während des Niederschlagsereignisses steigen die simulierten Pilzsporenkonzentrationen zwei Tage lang stetig an, ausgelöst durch Drehen der Windrichtung und Abschwächen der Windgeschwindigkeit nachdem die Front den Ort passiert hat. Dieser Anstieg lässt sich auch beim Verlauf der FBAP-Konzentrationen beobachten. Allerdings stimmen simulierte Niederschlagsmengen nicht immer mit dem tatsächlichen Niederschlag vor Ort überein. Weil für Hyytiälä am 24. Juli kein Regen detektiert wurde, können die FBAP-Konzentrationen in dem Fall nicht durch den Niederschlag, wie er von der Simulation ausgegeben wurde, bedingt sein. Obwohl dieses Beispiel aufzeigt, wie Unsicherheiten in der lokalen Meteorologie bei der Simulation der Aerosolbelastung fortbestehen, stellt das Auswaschen durch Niederschlag einen wichtigen Prozess beim Abschätzen der FBAP-Konzentration dar. Zusätzlich können andere dynamische Prozesse die FBAP-Konzentration beeinflussen. So wurde kürzlich sowohl für einen Standort in Colorado, USA, als auch für Hyytiälä gezeigt, dass FBAP-Konzentrationen während eines Regenereignisses deutlich und spontan ansteigen können (Huffman et al., 2013; Schumacher et al., 2013). Die Ursache für diesen Effekt ist unklar, könnte aber mit einer mechanischen Freisetzung von der Blatt- oder Erdoberfläche durch auftreffende Regentropfen zusammenhängen (Huffman et al., 2013). Dieser Effekt kann nicht in die Emissionsparametrisierungen der vorliegenden Arbeit miteinbezogen werden.

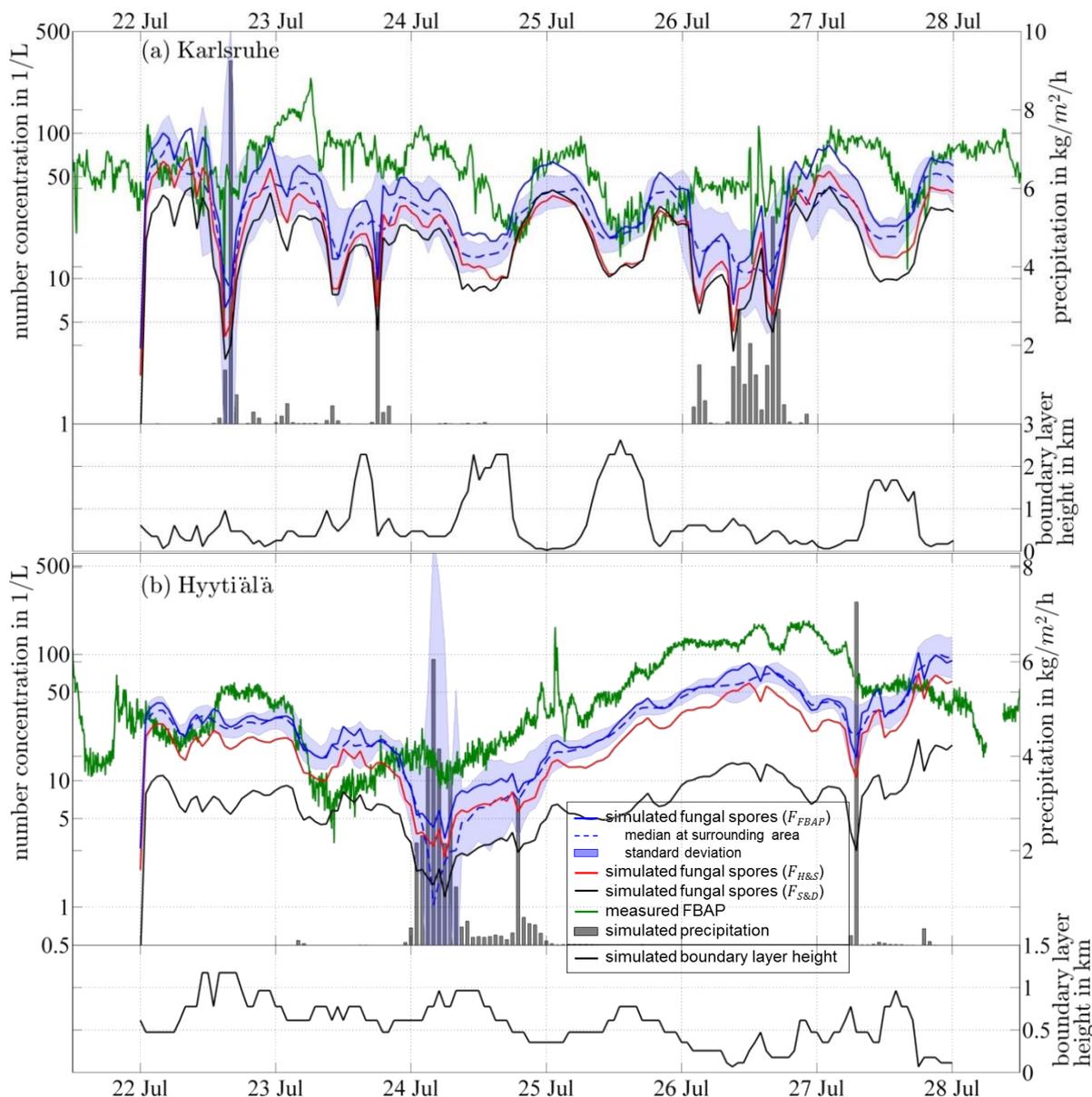


Abbildung 4-9: Zeitreihe der Anzahlkonzentration gemessener FBAP und simulierter Pilzsporen in L^{-1} sowie simulierter Niederschlag in $kg/m^2/h$ und simulierte Grenzschichthöhe in km zwischen 22. und 28. Juli 2010 in (a) Karlsruhe, Deutschland, und (b) Hyytiälä, Finnland. Die Simulation von Pilzsporen ist mit drei verschiedenen Emissionsparametrisierungen durchgeführt: $F_{H\&S}$ nach Heald und Spracklen (2009), $F_{S\&D}$ nach Sesartic und Dallafior (2011) und F_{FBAP} .

Während dem Zeitabschnitt im Oktober 2010 ist die simulierte Pilzsporenkonzentration der basierend auf $F_{H\&S}$ in Karlsruhe und Hyytiälä kontinuierlich unterhalb der gemessene FBAP-Konzentration (Abbildung 4-10). Die simulierte Anzahlkonzentration basierend auf $F_{S\&D}$ zeigt eine bessere Übereinstimmung mit der Größenordnung der gemessenen FBAP-Konzentration. Für Karlsruhe liegt die simulierte Konzentration ausgehend von F_{FBAP} zwischen denen der beiden literaturbasierten Emissionsparametrisierungen. In Hyytiälä stimmen die simulierten Konzentrationen von F_{FBAP} und $F_{H\&S}$ überein, sind jedoch deutlich niedriger als die FBAP-Messungen. Der deutliche Konzentrationsrückgang von F_{FBAP} am 15. Oktober tritt aufgrund eines rapiden Temperatursturzes ein. In Karlsruhe folgen die Simulationswerte einem klaren Tagesgang, der über die Tage hinweg einen leichten, positiven

Trend mit den höchsten Konzentrationen am 15. Oktober hat. Im Gegensatz dazu zeigt die zeitliche Entwicklung der gemessenen FBAP-Konzentration in Hyytiälä einen leichten Tagesgang.

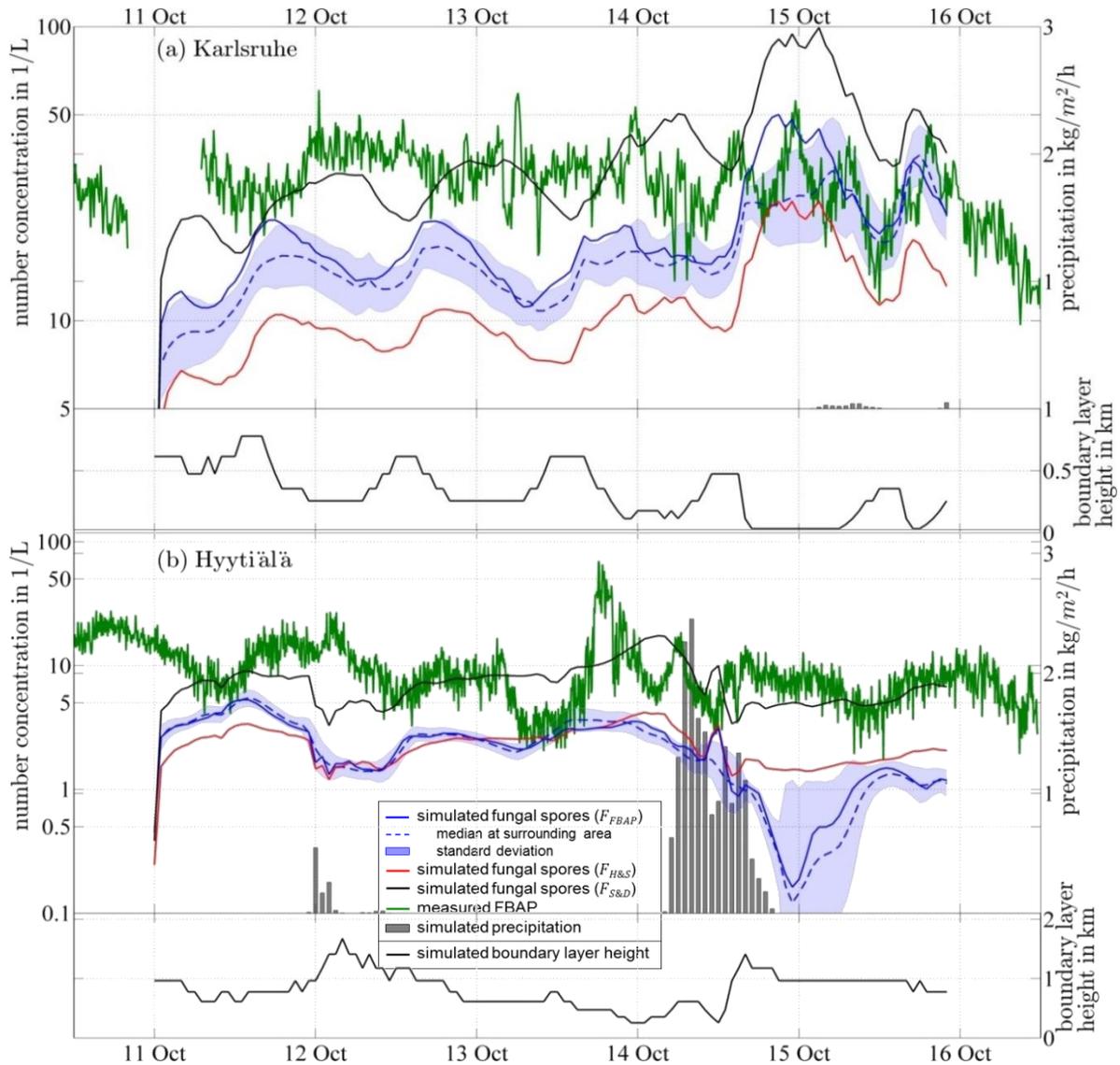


Abbildung 4-10: Zeitreihe der Anzahlkonzentration gemessener FBAP und simulierter Pilzsporen in L^{-1} sowie simulierter Niederschlag in $kg/m^2/h$ und simulierte Grenzschichthöhe in km zwischen 11. und 16. Oktober 2010 in (a) Karlsruhe, Deutschland, und (b) Hyytiälä, Finnland. Die Simulation von Pilzsporen ist mit drei verschiedenen Emissionsparametrisierungen durchgeführt: $F_{H\&S}$ nach Heald und Spracklen (2009), $F_{S\&D}$ nach Sesartic und Dallafior (2011) und F_{FBAP} .

Die Simulationen der Pilzsporenkonzentration wurden an vier verschiedenen Standorten im Zeitraum 26. August bis 01. September 2010 mit FBAP-Messungen verglichen (Abbildungen 4-11 und 4-12). Die Zeitreihen der gemessenen FBAP-Konzentrationen folgen einem deutlichen Tagesgang. Im Vergleich zu den anderen Standorten ist die absolute FBAP-Konzentration in Hyytiälä durchgängig am höchsten. Dieser Unterschied ist im Vergleich der Mediankonzentration auf einer linearen Skala eindeutiger (Abbildung 4-8). Im Gegensatz dazu sind die literaturbasierten Anzahlkonzentrationen in Hyytiälä geringfügig niedriger im Vergleich zu den anderen Standorten, wodurch dort die größten Abweichungen zwischen

Messung und Simulation auftreten. Für Hyytiälä sind die Konzentrationen mit F_{FBAP} lediglich geringfügig höher als mit $F_{H\&S}$ bzw. $F_{S\&D}$. Der anhaltende (von der Simulation gezeigte) Niederschlag in Hyytiälä hat möglicherweise einen größeren Einfluss auf die Entwicklung der Pilzsporenkonzentrationen als die Entwicklung der Grenzschichthöhe. Die CFSR bestätigt den mit COSMO-ART simulierten Niederschlag. Messungen in Hyytiälä zeigen im Vergleich zur Simulation weniger konsistenten Regen mit gelegentlichen Schauern. Allerdings beeinflusst dieser die FBAP-Konzentrationen eventuell nicht im gleichen Umfang wie durch das Auswaschen im Modell berechnet. An den anderen Standorten werden die literaturbasierten Konzentrationen, die ohnehin gut mit den FBAP-Messungen übereinstimmen, gut durch Konzentrationen der neuen Emissionsparametrisierung wiedergegeben.

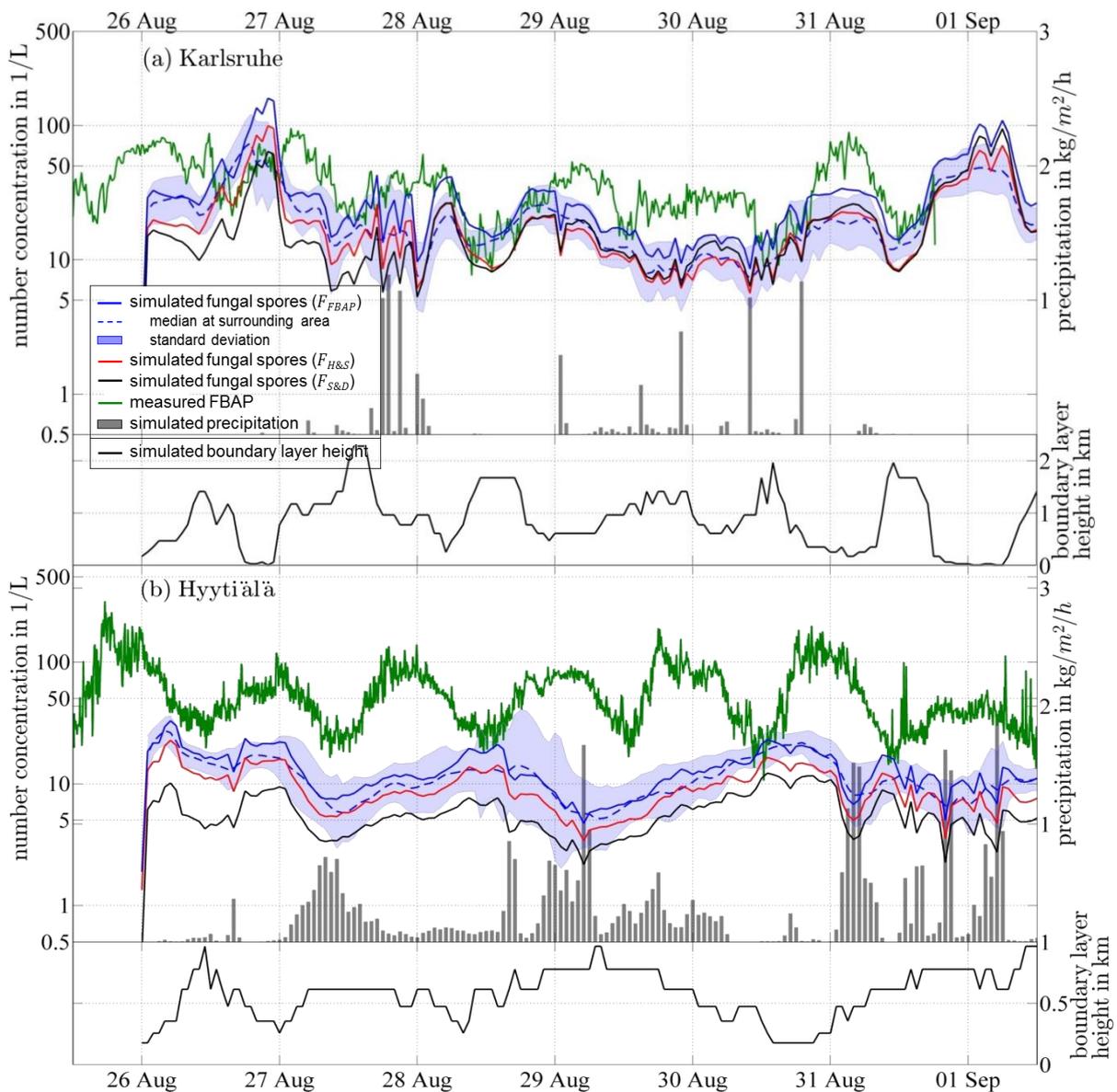


Abbildung 4-11: Zeitreihe der Anzahlkonzentration gemessener FBAP und simulierter Pilzsporen in L^{-1} sowie simulierter Niederschlag in $kg/m^2/h$ und simulierte Grenzschichthöhe in km zwischen 26. August und 01. September 2010 in (a) Karlsruhe, Deutschland, und (b) Hyytiälä, Finnland. Die Simulation von Pilzsporen ist mit drei verschiedenen Emissionsparametrisierungen durchgeführt: $F_{H\&S}$ nach Heald und Spracklen (2009), $F_{S\&D}$ nach Sesartic und Dallafior (2011) und F_{FBAP} .

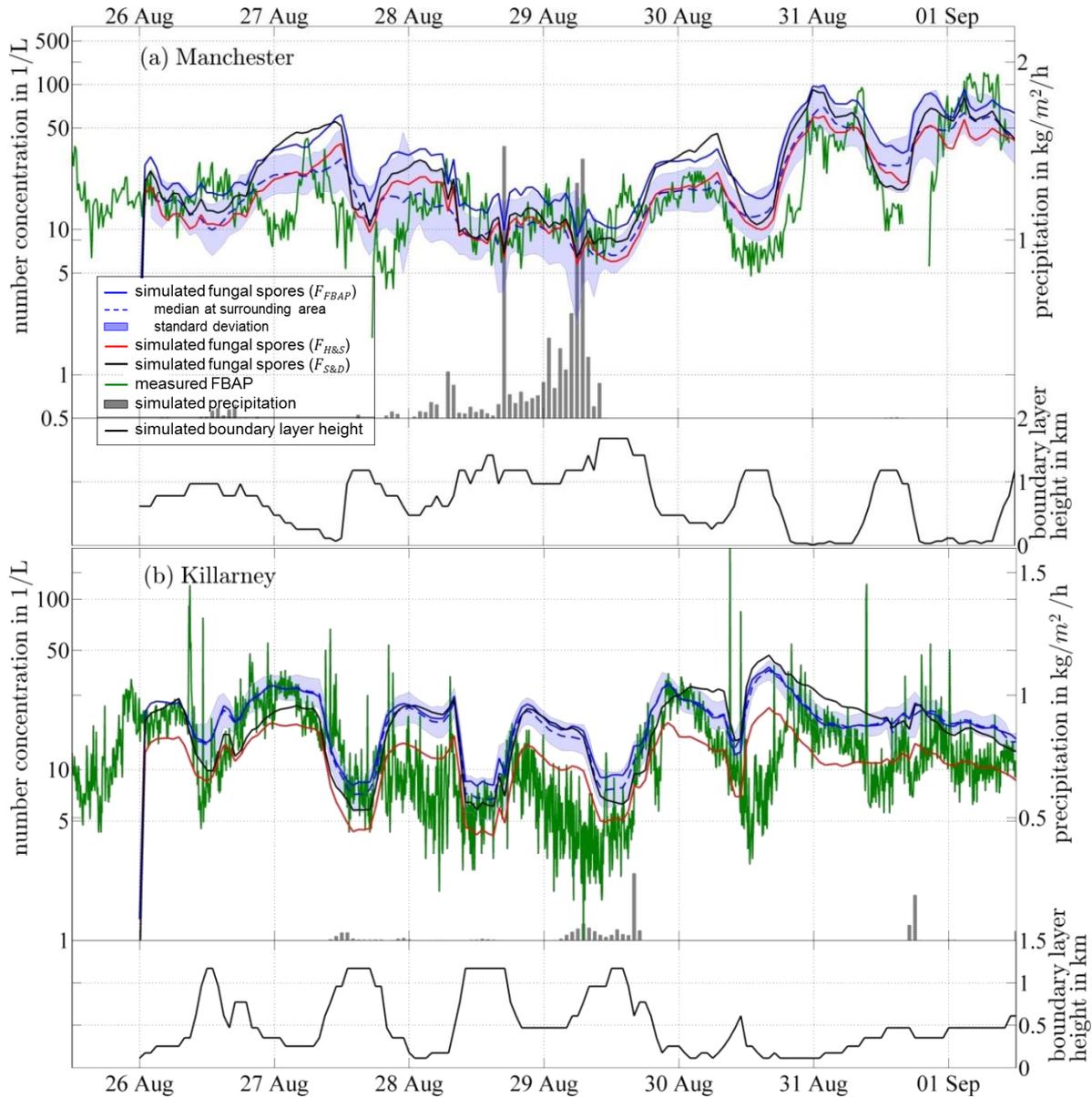


Abbildung 4-12: Zeitreihe der Anzahlkonzentration gemessener FBAP und simulierter Pilzsporen in L^{-1} sowie simulierter Niederschlag in $kg/m^2/h$ und simulierte Grenzschichthöhe in km zwischen 26. August und 01. September 2010 in (a) Manchester, UK, und (b) Killarney, Irland. Die Simulation von Pilzsporen ist mit drei verschiedenen Emissionsparametrisierungen durchgeführt: $F_{H\&S}$ nach Heald und Spracklen (2009), $F_{S\&D}$ nach Sesartic und Dallafior (2011) und F_{FBAP} .

Die gemessenen FBAP-Anzahlkonzentrationen weisen häufig einen deutlichen Tagesgang auf, der sein Maximum während der Morgenstunden oder um Mitternacht herum und sein Minimum nachmittags hat. Dieser Vorgang wurde ebenso bei anderen Studien, die das Langzeitverhalten der FBAP-Konzentrationen untersuchen, beobachtet (Gabey et al., 2010; Huffman et al., 2010; Schumacher et al., 2013; Toprak und Schnaiter, 2013). Ein ähnlicher Tagesgang wird häufig von den simulierten Pilzsporenkonzentrationen erzielt, der mit der simulierten Grenzschichthöhe h_{PBL} antikorreliert (Abbildungen 4-9 bis 4-12). Die gemessenen FBAP-Konzentrationen N_F folgen oft dem allgemeinen Verlauf der simulierten Grenzschichthöhe qualitativ, dennoch sind Magnitude und Zeitpunkt oftmals nicht konsistent. Beispielsweise steigt am 24. und 25. Juli in Karlsruhe (Abbildung 4-9a) die simulierte

Pilzsporenkonzentration N_{FBAP} um etwa einen Faktor 4 zusammen mit einer Grenzschichtkomprimierung, während tagsüber die Konzentration wieder abfällt, wenn die Grenzschichthöhe zunimmt. In diesem Fall sind die gemessenen FBAP-Konzentrationen in guter Übereinstimmung zu den Pilzsporenkonzentrationen, wenn N_F am 24. und 27. Juli, oder etwas näher an der Simulation am 25. Juli, tagsüber absinkt. Die FBAP-Konzentrationen werden wahrscheinlich zumindest teilweise durch die Grenzschichthöhe beeinflusst, obwohl ein Tagesgang in den biologischen Emissionen vermutlich zusätzlich den täglichen FBAP-Verlauf beeinflusst. Ein vergleichbarer Zeitverlauf ist in Abbildung 4-10a gegeben, wo ein Maximum von h_{PBL} am 12. und 13. Oktober annähernd gleichzeitig mit einem Minimum in N_{FBAP} eintritt. Hier geben die FBAP-Konzentrationen nicht den Tagesgang der Simulationen wieder. Am 31. August steigen die gemessenen FBAP- und simulierten Pilzsporenkonzentrationen zeitgleich und parallel zu der Grenzschichtkomprimierung an (Abbildung 4-11a). Allerdings ist der Anstieg für N_F ausgeprägter als für N_{FBAP} . Zusätzlich zeigen N_F und N_{FBAP} am 31. August und 1. September in Manchester eine gute Übereinstimmung und deren ausgeprägtes Minimum und Maximum antikorreliert deutlich mit dem Minimum und Maximum von h_{PBL} (Abbildung 4-12a). Im Gegensatz dazu werden für denselben Zeitabschnitt in Killarney geringe Änderungen von h_{PBL} und N_{FBAP} erreicht. Mit guter Übereinstimmung zu N_{FBAP} ist die Höhe des Tagesgangs in N_F über den gesamten Zeitraum ähnlich, obwohl h_{PBL} große Schwankungen zwischen dem 26. und 30. August hat und anschließend kaum verändert ist (Abbildung 4-12b). In den Abbildungen 4-9b, 4-10b und 4-11b weisen die täglichen Schwankungen in N_F kaum eine Korrelation zu h_{PBL} auf.

Aus dem Vergleich der vorliegenden Arbeit lässt sich schlussfolgern, dass (i) die simulierten Pilzsporenkonzentrationen empfindlich auf Änderungen der simulierten Grenzschichthöhe reagieren, (ii) der Tagesgang der gemessenen FBAP-Konzentrationen wahrscheinlich zumindest teilweise von dem Tagesgang der Grenzschichthöhe beeinflusst wird und (iii) die Entwicklung der FBAP-Konzentrationen wahrscheinlich zusätzlich durch einen Tagesgang der biologischen Emissionen von Pilzsporen und anderen PBAP-Arten beeinflusst wird. Diese konkurrierenden Effekte können mit der verwendeten Analyse-methode nicht unterschieden werden.

Für einen Vergleich der simulierten Pilzsporenkonzentration zu der chemischen Zusammensetzung trockener Aerosole wird die Anzahlkonzentration der Pilzsporen anhand ihrer Dichte und Masse umgerechnet (Kapitel 2.3). Die simulierte Massendichte der einzelnen Aerosolmode wird dafür über die Landflächen der Modelldomäne und den Zeitabschnitt gemittelt.

Für den Simulationszeitraum Ende August 2010 beträgt die Gesamtaerosolmasse im Mittel $2,5 \mu\text{g m}^{-3}$ (Abbildung 4-13). Pilzsporen machen dabei den größten Anteil innerhalb der PBAP aus, mit einer mittleren Anzahlkonzentration von 26 L^{-1} . Das entspricht einer mittleren Massendichte von $0,37 \mu\text{g m}^{-3}$, was einen Anteil von 15,4% an der Gesamtaerosolmasse ausmacht. Allerdings beinhaltet die Aerosolmasse keinen Beitrag von Mineral-

staub, der häufig gemäß Duce (1995) einen hohen Anteil an der Gesamtmasse hat. Eine Auflistung der Aerosolmassendichte nach den chemischen Bestandteilen inklusive der Massendichte von Pilzsporen für die verschiedenen Standorte ist in Tabelle 4-2 gegeben. Daraus ergibt sich ein Anteil von simulierten Pilzsporen, der zwischen den einzelnen Standorten zwischen 9% bis 20% variiert. Für die verwendeten Standorte wurde die Anzahlkonzentration der Pilzsporen mit FBAP-Messungen in Relation gesetzt. Mit der Annahme, FBAP besäßen dieselbe Größe wie Pilzsporen (Abbildung 4-7) kann anhand der Anzahlkonzentration die entsprechende FBAP-Massendichte angegeben werden. Diese Werte sind als zeitliches Mittel über den Simulationsperiode Tabelle 4-2 hinzugefügt. Ihr Anteil an der Gesamtaerosolmasse variiert zwischen 5% für Manchester und 64% für Hyytiälä. An den Standorten Karlsruhe und Killarney ist der mittlere Anteil der gemessenen FBAP und der simulierten Pilzsporen annähernd gleich groß.

Tabelle 4-2: Zeitlich gemittelte Massendichte der gemessenen FBAP und simulierten Pilzsporen (nach F_{FBAP}) sowie die simulierte Aerosolmassendichte aufgeteilt in die chemischen Bestandteile in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an den Standorten der FBAP-Messungen während der Simulationsperiode im August 2010.

$(\mu\text{g}/\text{m}^3)$	Karlsruhe, Deutschland	Hyytiälä, Finnland	Manchester, UK	Killarney, Irland
gemessene FBAP	0,46	0,81	0,12	0,19
simulierte Pilzsporen	0,41	0,20	0,35	0,28
Seesalz	0,44	0,01	1,62	1,11
Ruß	0,19	0,06	0,42	0,04
SO_4^{2-}	0,18	0,01	0,11	0,05
NH_4^+	0,44	0,01	0,14	0,07
NO_3^-	1,29	0,01	0,34	0,18
SOA	0,41	0,24	0,13	0,04
aPA	0,67	0,12	0,85	0,11

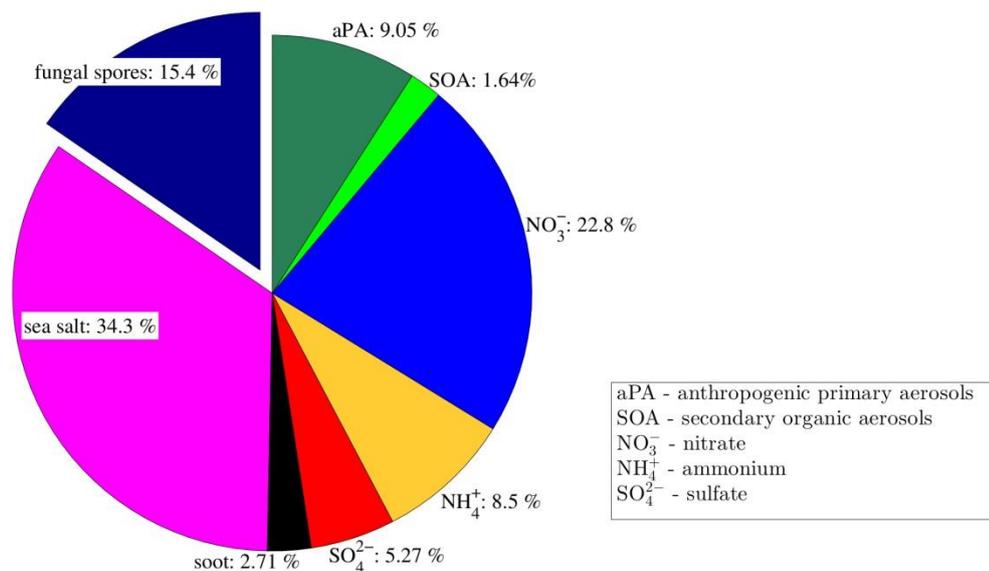


Abbildung 4-13: Chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel inklusive Pilzsporen in der untersten Modellschicht (ca. 10 m über dem Boden) horizontal über die Landflächen der Domäne und zeitlich über den Simulationszeitraum im August 2010 gemittelt.

4.4. Vertikale Ausbreitung von biologischen Aerosolpartikeln

Die vertikale Verteilung der PBAP, angetrieben von der Dynamik des Modells und reduziert aufgrund von Deposition und Sedimentation, bedingt maßgeblich deren Einfluss auf die Wolkenmikrophysik. Im Folgenden wird die Ausbreitung der PBAP in die unterschiedlichen Höhenschichten der Troposphäre beschrieben. Um bei einem Vergleich zwischen Modellstudien die Konzentration in vertikaler Ausdehnung zu berücksichtigen ohne Einzelwerte in ausgewählter Höhe zu verwenden, kann die horizontale Verteilung der Konzentration einer Luftsäule berechnet werden. Dazu wird die Konzentration über die Levels des Modells integriert. Die vertikal integrierte Anzahlkonzentration für Bakterien ist in der Größenordnung zwischen $10^5 m^{-2}$ und $5 \cdot 10^7 m^{-2}$ (Abbildung 4-5b), was der Größenordnung des globalen EMAC Modells aus Burrows et al. (2009a) entspricht. Aufgrund der höheren räumlichen Auflösung des COSMO-ART bei einem gleichzeitig relativ kurzen Zeitabschnitt treten dabei Werte außerhalb des vom GCM angegebenen Bereichs auf. Die mit COSMO-ART simulierten PBAP haben eine vertikal integrierte Anzahlkonzentration, bei denen Bakterien zwischen relativ niedrigen Werten für Pollen (Birkenpollen: $10 m^{-2}$ bis $10^5 m^{-2}$, Kiefernpollen: $0,1 m^{-2}$ bis $10^6 m^{-2}$) und relativ hohen Werten für Pilzsporen ($10^5 m^{-2}$ bis $10^8 m^{-2}$) liegen. Mit der Annahme monodisperser Partikel können die simulierten PBAP-Anzahlkonzentrationen jeweils in eine korrespondierende Massendichte umgerechnet werden. Für April 2008 ist die vertikal integrierte Anzahlkonzentration und Massendichte aufsummiert über Birken- und Kiefernpollen, Pilzsporen und Bakterien in Abbildung 4-14 dargestellt. Der Beitrag von Bakterien zur Gesamtmasse der Luftsäule ist in Relation zu den Pilzsporen und Pollen sehr gering, da ihre Partikelmasse aufgrund der Größe geringer ist.

Pollen haben innerhalb ihrer Blütesaison einen hohen Anteil an der Gesamtmasse der PBAP einer Luftsäule und ihre bodennahe Massendichte in den Simulationen der vorliegenden Arbeit kann lokal über $10 \mu\text{g m}^{-3}$ erreichen. Im Vergleich zu Ergebnissen von Jacobson und Streets (2009), die eine simulierte global gemittelte und vertikal integrierte PBAP-Gesamtmasse (Pollen, Bakterien und Pilzsporen) von $0,61 \text{ mg m}^{-2}$ angeben, sind COSMO-ART Werte des April-Zeitraums mit $0,3055 \text{ mg m}^{-2}$ in guter Übereinstimmung.

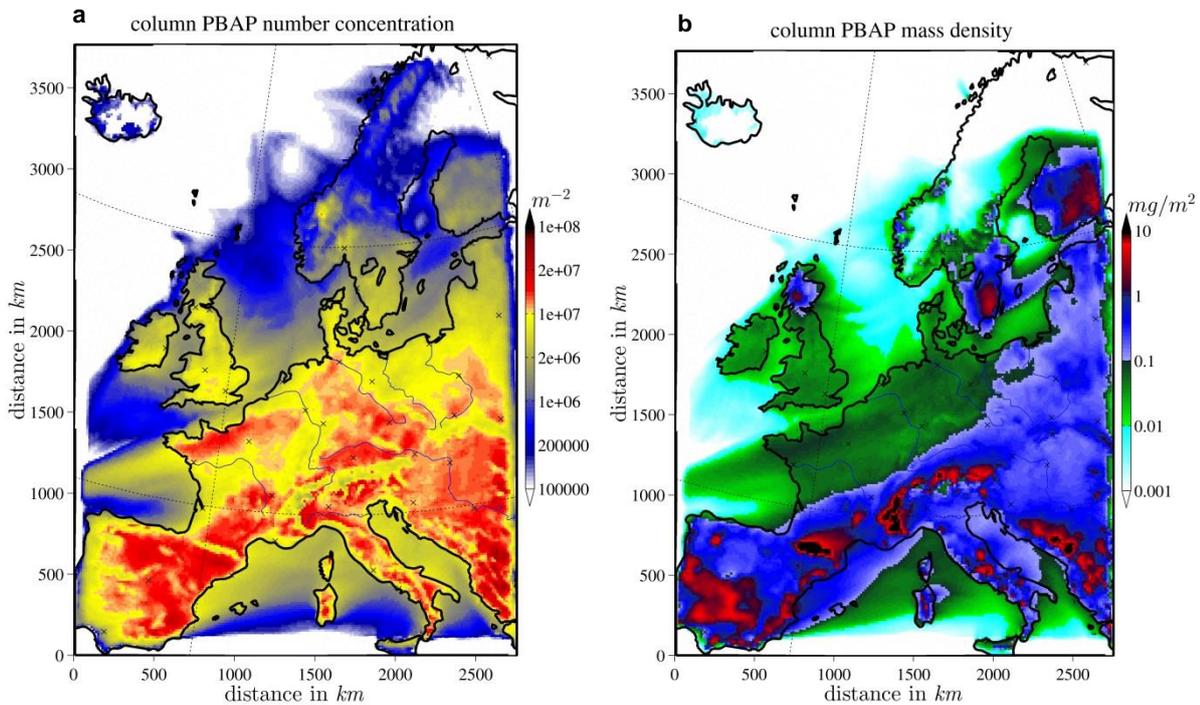


Abbildung 4-14: Vertikal integrierte und zeitlich gemittelte (a) Anzahlkonzentration in m^{-2} und (b) Massendichte in $\mu\text{g}/\text{m}^2$ von PBAP (Birken- und Kiefernpollen, Bakterien und Pilzsporen) während des Zeitraums April 2008.

Ein Vergleich mit Messungen ist im Zusammenhang mit der vertikalen PBAP-Ausbreitung nur vereinzelt möglich. Historische, flugzeugbasierte Messungen der Pollenanzahl in der Umgebung von Göttingen, Deutschland, im Mai 1935 können herangezogen werden, um die relative Abnahme mit der Höhe zu beschreiben. Innerhalb der ersten 500 m über der Erdoberfläche reduzierte sich die Pollenanzahl auf durchschnittlich etwa 86% der bodennahen (10 m bis 40 m Höhe) Anzahl. Auf 1 km Höhe betrug der relative Anteil der Pollenanzahl im Mittel über zehn Flugzeugmessungen 55% , zwischen $1,5 \text{ km}$ und 2 km Höhe im Mittel über dreizehn Aufstiege 21% (Rempe, 1937). Die COSMO-ART Simulationen für Birkenpollen im April 2008 für dieselbe Region geben diese Werte teilweise wieder. Allerdings ist eine deutlich größere Streuung der relativen Anzahlkonzentration auszumachen. So sind die Relativwerte in der entsprechenden Höhe über der Modellorografie häufig um mehrere Größenordnungen geringer als die Konzentration an der untersten Modellschicht und somit unterhalb der Flugzeugmessungen. In kurzen unregelmäßigen Abschnitten wird die bodennahe Anzahlkonzentration durch die Konzentrationen in 100 m bis 2 km über der Erdoberfläche um ein Vielfaches, teilweise um ein oder zwei Größenord-

nungen, überschritten. Zwar sind bei den historischen Flugzeugmessungen in niedriger Höhe Überschreitungen der bodennahen Konzentration festgestellt worden, allerdings maximal etwa 200% des Ausgangswertes. In der Modellsimulation könnten diese extremeren Unterschiede der Betrachtung von nur einer Pollenart geschuldet sein, die aufgrund der spezifischen Baumverteilung nur sehr lokal emittiert werden kann.

In einem Vertikalprofil kann die Ausbreitung der Partikel mit der Höhe dargestellt werden. Hierfür wird die Anzahlkonzentration der einzelnen PBAP entlang eines Levels horizontal über die Modelldomäne und über den Simulationszeitraum gemittelt. Das Vertikalprofil beschreibt somit die durchschnittliche vertikale Verteilung der PBAP (Abbildung 4-15). Der farbige Bereich um die jeweilige Linie der mittleren Konzentration gibt die positive Standardabweichung bezüglich der horizontalen Ausdehnung wieder. Damit soll der Schwankungsbereich der PBAP innerhalb eines Levels angedeutet werden. Ein Bereich in negativer Richtung kann auf einer logarithmischen Skala nicht angegeben werden, wenn die Standardabweichung höher als der Mittelwert ist. Aufgrund der geländefolgenden Vertikalkoordinate (Kapitel 2.1.2) gibt die Ordinate lediglich die Modelllevels wieder. Zur besseren Interpretation der Ergebnisse werden die Level einer spezifischen Höhe zugewiesen, die diese ohne das Vorhandensein von Orografie, z.B. über dem Meer, hätten. Näherungsweise und vor allem in der untersten Level kann die Ordinate als Höhe über dem Erdboden verstanden werden.

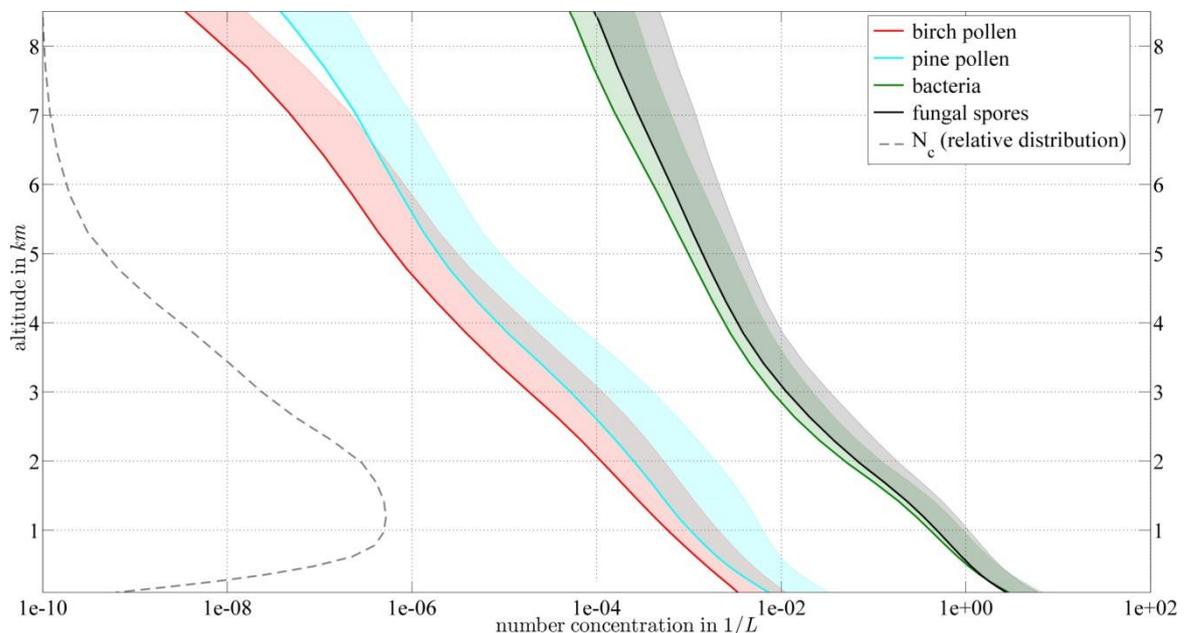


Abbildung 4-15: Vertikalprofil der simulierten PBAP in L^{-1} als Mittelwert über die Modelldomäne und den Zeitraum 07. bis 12. April 2008. Die farbige Umrandung stellt den positiven Bereich der räumlichen Standardabweichung dar.

Das Vertikalprofil verdeutlicht die Reduktion der Partikelanzahlkonzentrationen mit der Höhe um durchschnittlich mehrere Größenordnungen. Der im gleichen Maß abnehmende Bereich der Standardabweichung besagt, dass die Häufigkeitsverteilung der Partikelanzahl bei ansteigender Höhe zu niedrigen Konzentrationen hin verschoben wird. Die mittlere

Anzahlkonzentration von Pilzsporen liegt in dem Vertikalprofil stets etwas höher als die von Bakterien, was sowohl das Verhältnis zwischen den bodennahen Konzentrationen beider PBAP sowie eine im Mittel etwa gleichstarke Abnahme mit der Höhe wiedergibt. Im Vertikalprofil sind die mittleren Konzentrationen der Pollen in den unteren Modellschichten etwa zwei Größenordnungen niedriger als die von Bakterien und Pilzsporen. Dieser Unterschied stimmt mit dem Vergleich der zeitlich gemittelten bodennahen Konzentrationen überein. Birkenpollen sind in jeder Modellschicht stets etwas niedriger als Kiefernpollen und nehmen trotz geringem Durchmesser mit der Höhe etwas stärker ab, vermutlich aufgrund der höheren Partikeldichte.

In einer Höhe zwischen 3 km und 4 km ist der Flüssigwassergehalt L_l maximal, gleichbedeutend mit einem hohen Anteil an Flüssig- und Mischphasenwolken in diesem Level. Die durchschnittlichen PBAP-Konzentrationen in dieser Höhe sind etwa $5 \cdot 10^{-3}\text{ L}^{-1}$ bis $1 \cdot 10^{-2}\text{ L}^{-1}$ für Birkenpollen und etwa 5 L^{-1} für Pilzsporen und Bakterien. Mit Hinblick auf das Wirken von PBAP als IN ist die mittlere Partikelkonzentration in dieser Höhe in derselben Größenordnung wie typische IN-Konzentrationen von Mineralstaub bei -15°C (z.B. DeMott et al., 2010). In den Simulationen beträgt die mittlere Temperatur für dieses Level allerdings etwa -10°C . Hier ist Mineralstaub nur in sehr geringem Maß eisaktiv (z.B. Hoose und Möhler, 2012).

Um eine detaillierte Aussage über die Vertikalverteilung der PBAP-Anzahlkonzentrationen zu treffen, werden Einzelwerte für ausgewählte Abschnitte betrachtet. Anhand dieser Fallbeispiele kann sowohl der Transport der PBAP in unterkühlte Wolkenschichten als auch das Entstehen von Eiskristallen aus BIN verdeutlicht werden. Die Auswahl der Abschnitte erfolgt vor allem aufgrund einer erhöhten PBAP-Anzahlkonzentration, um den Einfluss von PBAP auf Mischphasenwolken zu verdeutlichen. Im Folgenden sind zwei verschiedene Varianten eines detaillierten Höhenprofils gezeigt: (i) An einem festen Ort ist die zeitliche Entwicklung der Anzahlkonzentration innerhalb der Luftsäule über dem Punkt und (ii) für einen bestimmten Zeitpunkt ist die Anzahlkonzentration entlang eines longitudinal oder latitudinal verlaufenden Querschnitts dargestellt. Beide Darstellungen geben die absolute Höhe als Ordinate und die Zeit oder die Entfernung auf der Abszisse an. Die Anzahlkonzentration ist durch eine Farbskala gegeben.

An der Bergstation des Puy de Dôme (PdD), Frankreich, wurde die Eisaktivität von aus Wolkenwasser isolierten Bakterien untersucht (Joly et al., 2013). Im Folgenden wird die simulierte Bakterienkonzentration an diesem Standort beschrieben (Abbildung 4-16). In Kapitel 5 wird die daraus berechnete Konzentration von Bakterien-IN aufgegriffen. Die mittlere Höhe der Orografie der Gitterbox, die PdD miteinschließt, hat eine Höhe von 1065 m über NN.

Die zeitliche Entwicklung der simulierten Konzentrationen über diesem Standort verdeutlicht, dass die Anzahl luftgetragener Bakterien in Bodennähe deutlich konstanter ist als in den darüber liegenden Schichten. Die Bakterienkonzentration in der untersten Modell-

schicht beträgt durchschnittlich etwa $1 L^{-1}$ und ist teilweise über $10 L^{-1}$. In weiten Teilen der Zeitreihe unterschreitet die Temperatur $0^{\circ}C$ in einer Höhe von etwas mehr als $2 km$. Eine Verschiebung dieser Temperaturgrenze zu niedrigeren Modellschichten bringt dort häufig eine erhöhte Bakterienkonzentration mit sich. Ein Transport der Bakterienpartikel in die freie Troposphäre findet in kurzen, unregelmäßigen Abständen statt und bewirkt, dass die Anzahlkonzentration in $5 km$ Höhe kurzzeitig bis über $0,01 L^{-1}$ erreicht. Langzeitmessungen am PdD ergeben eine Bakterienkonzentration im Wolkenwasser zwischen $3,3 \cdot 10^3 mL^{-1}$ und $2,44 \cdot 10^5 mL^{-1}$ (Vaätilingom et al., 2012). Aufgrund der Größe und Hygroskopizität von Bakterien (Ariya et al., 2009) können diese effektiv von Wolkentropfen aufgenommen werden (Kanakidou et al., 2005). Die Anzahl an simulierten luftgetragenen Bakterien kann daher mit der Anzahl von im Wolkenwasser gelösten Bakterien verglichen werden. Die simulierte Bakterienanzahlkonzentration wird für den Vergleich auf den simulierten Flüssigwassergehalt L_l bezogen. Der von der Simulation berechneten Mittelwert liegt über dem Durchschnittswert von bodennahen luftgetragenen Bakterien ($1,86 \cdot 10^6 mL^{-1}$) in der hier gezeigten Zeitreihe (Abbildung 4-16), allerdings beinhaltet der simulierte Konzentrationsbereich die abgeschätzten Werte.

Zusätzlich konnten bei Flugzeugmessungen über Michigan, USA, verteilt über zwei Jahre mittlere Bakterienkonzentrationen im Wolkenwasser von $4,3 \cdot 10^5 mL^{-1}$ bzw. $9,2 \cdot 10^4 mL^{-1}$ ermittelt werden (Kourtev et al., 2011). Die *in-situ* Konzentrationen dieser Gegend befinden sich im oberen Bereich der am PdD gemessenen Werte. Im Vergleich zu der Hintergrundkonzentration von luftgetragenen Bakterien am JFJ wird deutlich, dass die Simulation der Bakterienkonzentrationen den durchschnittlichen Messwert von $34 L^{-1}$ (nach Xia et al., 2013) um etwa eine Größenordnung unterschätzt.

Die Anzahlkonzentration der Birkenpollen in der untersten Modellschicht ist an dem Standort JFJ um etwa zwei Größenordnungen niedriger als die von Bakterien (Abbildung 4-17). Ereignisse mit hohen Konzentrationen am Boden und in der darüber liegenden Luftsäule treten für Birkenpollen und Bakterien zeitgleich auf. Dieser Verlauf deutet darauf hin, dass PBAP-Konzentrationen am JFJ ansteigen, wenn Luftmassen von der Grenzschicht in die freie Troposphäre aufsteigen und dadurch PBAP mit sich transportieren. Auffällig ist, dass bodennahe Pollenkonzentrationen teilweise niedriger sind als Konzentrationen in den direkt darüber liegenden Schichten. Dieses Verhalten wird durch die Bakterien nicht wiedergegeben, da diese zusätzlich in der nahen Umgebung emittiert werden.

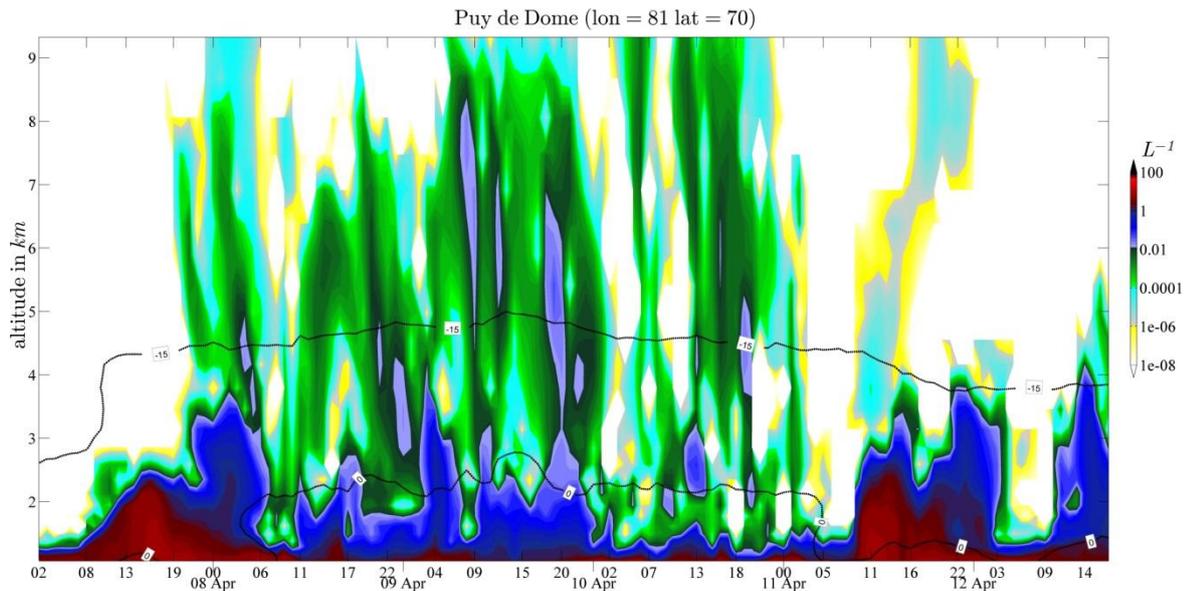


Abbildung 4-16: Zeitliche Entwicklung der Anzahlkonzentration von Bakterien in L^{-1} in der Luftsäule über dem Berg Puy de Dôme, Frankreich, zusammen mit den Isothermen bei $0^{\circ}C$ und $-15^{\circ}C$ als schwarze Linien.

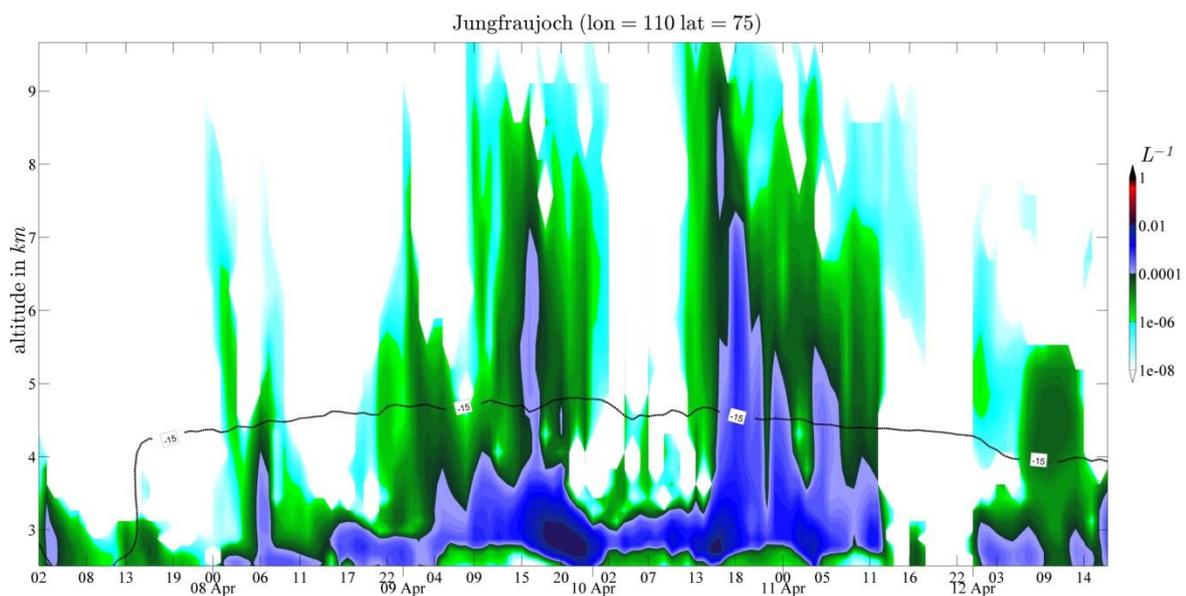


Abbildung 4-17: Zeitliche Entwicklung der Anzahlkonzentration von Birkenpollen in L^{-1} in der Luftsäule über dem Jungfraujoch, Schweiz, zusammen mit der Isotherme bei $-15^{\circ}C$ als schwarze Linie.

In einem Querschnitt entlang eines Längengrades durch Karlsruhe mit der Anzahlkonzentration von Pilzsporen wird deutlich, wie die Orografie den Transport in höhere Schichten beeinflussen kann (Abbildung 4-18). Hohe Konzentrationen in den untersten Modellschichten sind nicht ausschließlich für einen effektiven Transport in die freie Troposphäre notwendig. So treten zu diesem Zeitschritt zwischen Alpen und Nordsee (47° bis 52° geografischer Breite) über einen vergleichsweise langen Abschnitt bodennah sehr hohe Konzentrationen auf. In 4 km Höhe über NN ist die Pilzsporenanzahl meist geringer als in einem Abschnitt nördlich von Norwegen (61° bis 65° geografischer Breite). Zudem wird die Verschiebung der $0^{\circ}C$ Grenze zu einer geringeren Höhe in nördlichen Gebieten deutlich. Dies

könnte dem Einfluss von BIN auf Mischphasenwolken aufgrund des geringeren Höhenunterschiedes zwischen Emission und Wolkenniveau entgegenwirken.

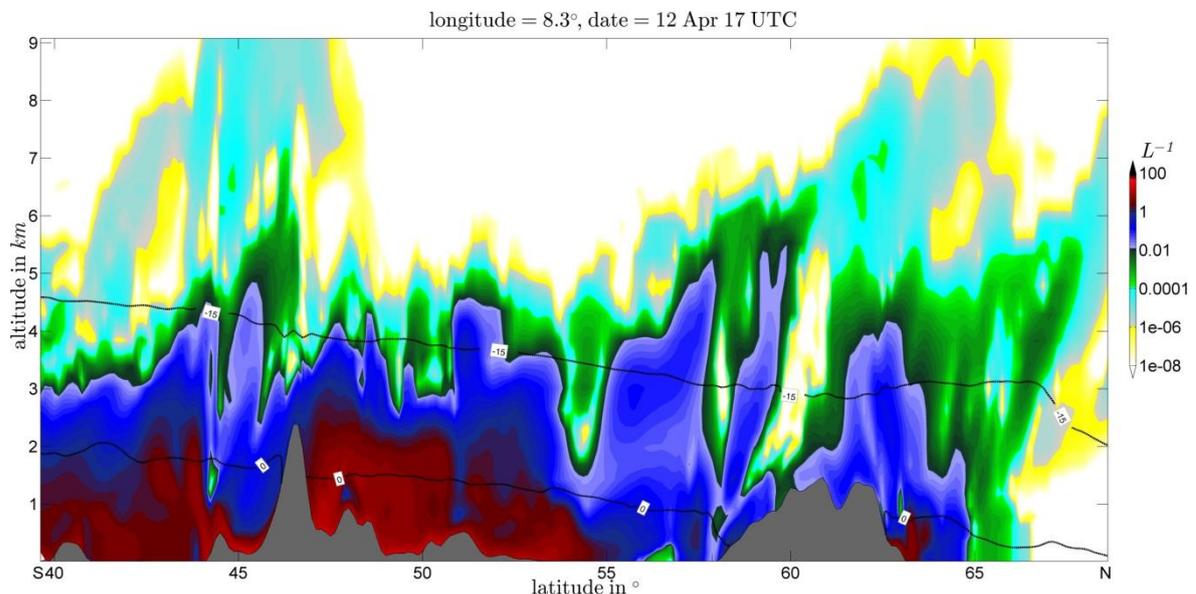


Abbildung 4-18: Anzahlkonzentration von Pilzsporen in L^{-1} in einem Querschnitt entlang eines Längengrades durch Karlsruhe zusammen mit der Orografie als graue Fläche und den Isothermen bei $0^{\circ}C$ und $-15^{\circ}C$ als schwarze Linien.

4.5. Ausbreitung von Bodenstaubpartikeln

Bodenstaubpartikel sind eine Agglomeration von (nicht genau spezifizierten) organischen Bestandteilen und Staubpartikeln. Diese Eigenschaft unterscheidet sie von den bisher beschriebenen PBAP. Daher werden die Simulationsergebnisse des Bodenstaubs separat von den in dieser Arbeit simulierten PBAP beschrieben und deren Konzentration wird nicht zu den Gesamt-PBAP hinzuaddiert. In der numerischen Lösung zur Ausbreitung der Bodenstaubpartikel wird im Gegensatz zu den PBAP eine Partikelgrößenverteilung, aufgeteilt in drei Moden, verwendet (Kapitel 2.3.1).

Der vertikale Gesamtemissionsfluss F_v nach Gleichung (2-34) als Funktion der Schubspannungsgeschwindigkeit u_* besitzt eine jahreszeitliche Variation über den Flächenanteil brachliegender, landwirtschaftlich genutzter Felder. Der über die drei Moden summierte Fluss ist, horizontal über das Modellgebiet verteilt, in Abbildung 4-19 gezeigt. Die Emissionen im östlichen Domänenteil Zentraleuropas dominieren gegenüber den übrigen Landflächen aufgrund hoher Windgeschwindigkeiten und einem großen Flächenanteil landwirtschaftlicher Nutzflächen. Vereinzelt treten zudem Emissionen im südlichen Teil der Modelldomäne (z.B. Spanien) auf, die meist eine Größenordnung niedriger als die Emissionen in Polen und Ostdeutschland sind. Die mittleren Emissionsflüsse des Bodenstaubs über den Landflächen und dem April-Zeitraum betragen $0,0042 \mu g/m^2s$ für die kleinste Mode 1, $0,0083 \mu g/m^2s$ für die mittlere Mode 2 bzw. $0,0292 \mu g/m^2s$ für die große Staubmode 3.

Unter Verwendung der Größenverteilung der emittierten Staubpartikel (Tabelle 2-1) kann der Massenfluss der Emission in einen Anzahlfluss umgerechnet werden. Für die oben genannten, mittleren Massenflüsse der drei Moden beträgt der Anzahlfluss $256,014 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (Mode 1), $7,55 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (Mode 2) bzw. $3,58 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (Mode 3). Damit ist der mittlere Emissionsfluss des gesamten Bodenstaubs im April vergleichbar mit dem mittleren Emissionsfluss von Bakterien (Kapitel 4.2).

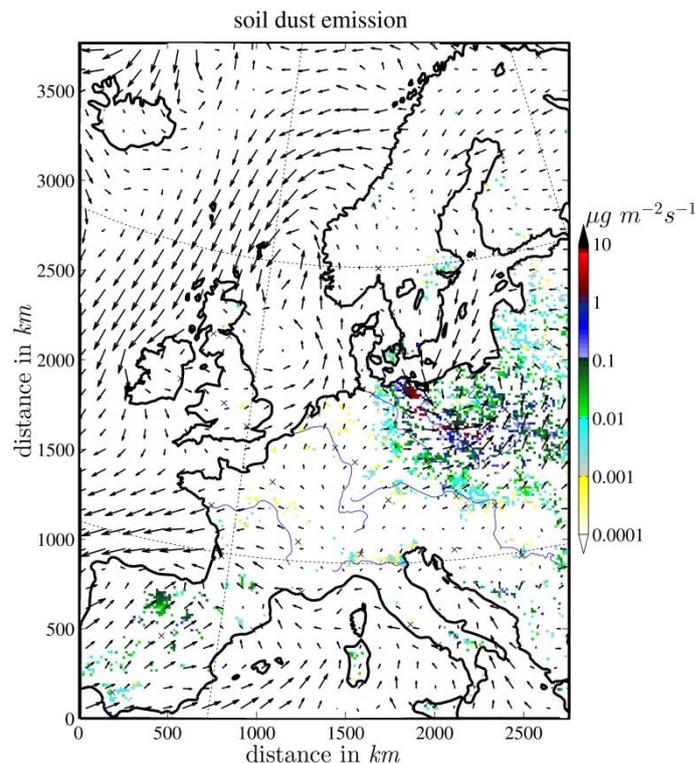


Abbildung 4-19: Summe des vertikalen Gesamtemissionsflusses F_v von Bodenstaubpartikeln in $\mu\text{g}/\text{m}^2\text{s}$ über alle drei Moden der Größenverteilung am 08. April 2008 um 1 Uhr UTC (beliebiger Zeitpunkt mit hohem Emissionsfluss). Die Pfeile stellen die Windrichtung dar und deren Länge repräsentiert die Windgeschwindigkeit.

Die zeitlich gemittelte Bodenstaubkonzentration in der untersten, bodennahen Modellschicht zeigt, dass sich die sehr lokal emittierten Partikel über weite Teile der Modelldomäne ausbreiten. In Gebieten hoher Emission sind die Konzentrationen jedoch ein bis zwei Größenordnungen höher als in Hintergrundgebieten (Abbildung 4-20a). Die mittlere Anzahlkonzentration über die Landflächen des Modellgebietes beträgt für den April-Zeitraum $313,3 \text{ L}^{-1}$ (Mode 1), $1,73 \text{ L}^{-1}$ (Mode 2) bzw. $0,307 \text{ L}^{-1}$ (Mode 3). Der Mittelwert über das gesamte Modellgebiet inklusive Meeresflächen ist etwa drei Größenordnungen geringer und beträgt als Summe über alle Moden $1,83 \text{ L}^{-1}$. Obwohl der Emissionsfluss von Bodenstaub in derselben Größenordnung liegt wie für Bakterien, ist die Bodenstaubanzahlkonzentration etwa zwei Größenordnungen höher.

In der Simulation wird die Anzahlkonzentration N_{SD} und Massendichte L_{SD} des Bodenstaubs separat voneinander berechnet. Der Partikeldurchmesser d_{SD} ist dadurch variabel.

Die mittlere L_{SD} in der untersten Modellschicht ist für die Simulation Anfang April 2008 vergleichbar zu der horizontalen Verteilung von N_{SD} (Abbildung 4-20b). Das horizontal über die Landflächen und zeitlich gemittelte L_{SD} verteilt sich folgendermaßen auf die Größenmoden: $0,399 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Mode 1), $0,234 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Mode 2) und $0,448 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Mode 3). Im Mittel über die Gesamtfläche der Domäne ist L_{SD} aufsummiert über alle drei Moden $2,35 \cdot 10^{-2} \mu\text{g}/\text{m}^3$.

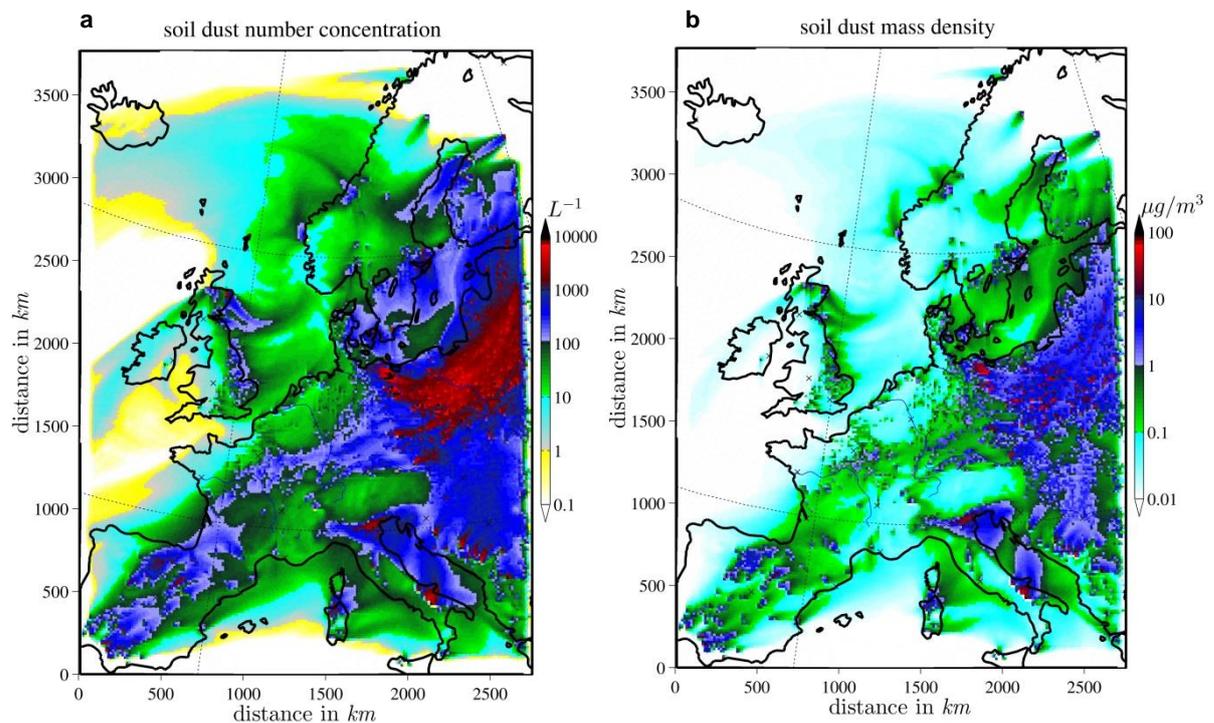


Abbildung 4-20: (a) Anzahlkonzentration und (b) Massendichte von Bodenstaub in L^{-1} bzw. $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Summe über allen drei Moden in der untersten Modellschicht als zeitliche Mittelwerte über den Simulationszeitraum Anfang April 2008.

Bei einem direkten Vergleich der Bodenstaubkonzentration mit Luftmessungen muss berücksichtigt werden, dass deren Größenbereich mit anderen Partikeln koinzidiert. Lediglich mit aufwendigen Messmethoden, wie der Aerosolmassenspektroskopie, lassen sich Bodenstaubpartikel eindeutig von anderen Partikeln, z.B. aus Ruß, Seesalz oder Wüstenstaub, unterscheiden. Anhand ihres Gefrierungsverhaltens, respektive der Temperatur bei der die Eiskernung einsetzt, kann jedoch abgeleitet werden, dass Bodenstaubpartikel auf PM10-Filtern vorhanden sind. Dies suggerieren Analysen von Filterproben am JFJ, deren Partikel bei -8°C bis -12°C als IN fungieren (Conen et al., 2012), und damit Tropfen bei etwas höherer Temperatur gefrieren lassen als beispielsweise Mineralstaub-IN. Als Einschätzung der Bodenstaubkonzentration wird daher ein Vergleich mit PM10-Messungen einer ausgewählten, exemplarischen Station durchgeführt, die in ihrer unmittelbaren ($<5 \text{ km}$) und weitläufigeren ($\sim 14 \text{ km}$) Umgebung durch landwirtschaftlich genutzte Gebiete dominiert ist (Abbildung 4-21). Die Station befindet sich Mecklenburg-Vorpommern ($53^\circ 18' 8'' \text{ N}$; $11^\circ 21' 46'' \text{ E}$). Als etwaige Einschätzung der dominanten Bestandteile des PM10 ist die simulierte, mittlere Windgeschwindigkeit und Windrichtung ergänzt. Anhand von Satelliten-

fotos ist die vorherrschende Landnutzung der unmittelbaren Umgebung ($<5\text{ km}$) in drei Kategorien (landwirtschaftlich, urban, bewaldet) eingeteilt. Zudem ist der Anteil brachliegender Ackerflächen p_{soil} aus Gleichung (2-50) in den Modellgitterboxen der Anströmrichtung der Stationen den Windvektoren als Zahlenwert in Prozent angefügt. Die Pfeilfarbe bezieht sich somit auf PM10-Messungen, der Zahlenwert und dessen Farbe an den Windpfeilen bezieht sich auf Bodenstaubsimulation.

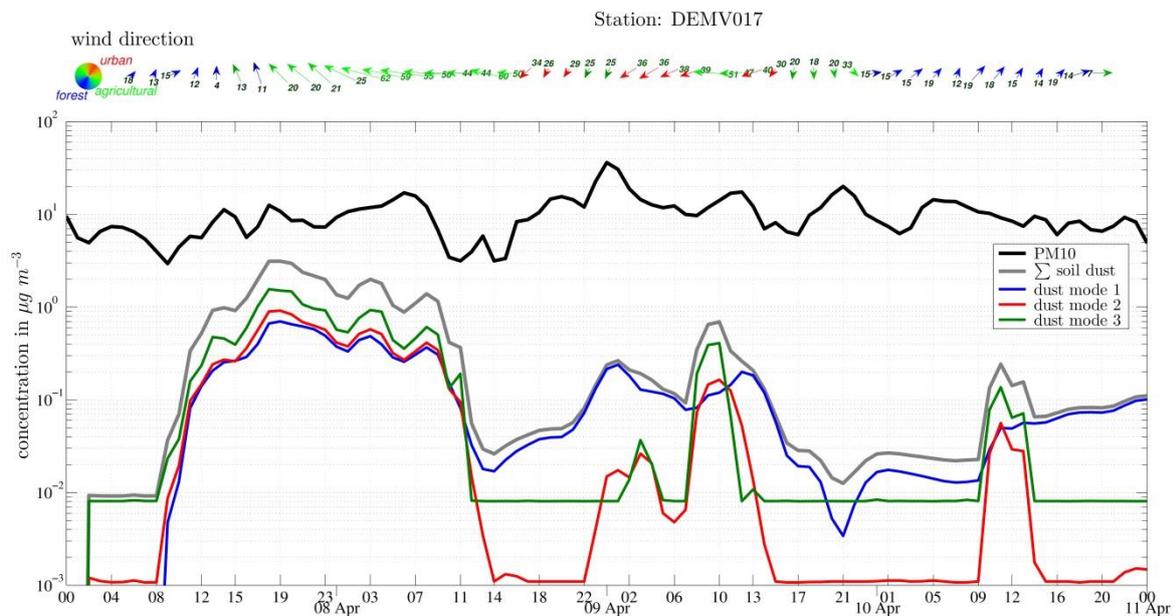


Abbildung 4-21: Zeitreihe der PM10-Konzentration gemessen an einer ländlichen Station in Mecklenburg-Vorpommern, und der simulierten Bodenstaubkonzentration an dem Gitterpunkt, der die Messstation enthält, in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für Anfang April 2008. Die Windpfeile geben die über zwei Stunden gemittelte Windgeschwindigkeit und -richtung anhand der Simulation wieder. Die Farbskalierung bezieht sich auf die Charakteristika der unmittelbaren ($<5\text{ km}$) Umgebung der Station mit der Farblegende als Kreisdiagramm. Die Zahlenwerte an den Windvektoren geben den Wert von p_{soil} wieder, der aus dem Mittelwert der Gitterboxen in Anströmrichtung resultiert.

Der Vergleich des simulierten Bodenstaubs mit PM10-Messungen an einer Stationen umgeben von einem hohen Anteil landwirtschaftlich genutzter Flächen zeigt, dass die PM10-Massendichte L_{PM10} stets die des Bodenstaubs überwiegt (Abbildung 4-21). Dieser Unterschied ist häufig ein bis zwei Größenordnungen groß. Die mit COSMO-ART simulierte L_{SD} variiert um bis zu zwei Größenordnungen, deutlich abhängig von der Windgeschwindigkeit und dem Wert für p_{soil} in der vorherrschenden Anströmrichtung. Hingegen zeigen die PM10-Messwerte lediglich eine geringe Schwankung um maximal Faktor vier. Somit wird ein erheblicher Massenanteil entweder nicht in der näheren Umgebung oder windunabhängig, beispielsweise durch die Verbrennung fossiler Rohstoffe oder die Bodenbestellung, emittiert. Auch die für den Zeitpunkt und die Station simulierte Windrichtung korreliert nur geringfügig mit L_{PM10} . Eine leicht geringere L_{PM10} am Anfang und Ende der gezeigten Zeitreihe tritt zusammen mit einer niedrigen Windgeschwindigkeit aus Richtung des nahegelegenen Waldgebietes auf. In der Nacht zum 9. April, bei Anströmrichtung aus der unmittelbar an die Station anschließenden Ortschaft, zeigt L_{PM10} ein Maximum. Nachts ist

die anthropogene Partikelemission, beispielsweise Straßenverkehr, häufig am geringsten. Das Maximum der simulierten L_{SD} wird durch eine hohe Windgeschwindigkeit bei Anströmung aus Südost hervorgerufen. Die für diese Richtung auf den Satellitenbildern gezeigten Felder sind in der gröber aufgelösten Landnutzungsdatenbank, als Grundlage für die Simulation, lediglich in westlicher Richtung angegeben. Unabhängig davon nimmt L_{SD} ab, wenn die Windrichtung auf Westen dreht und die Geschwindigkeit gleichzeitig abnimmt. L_{PM10} nimmt leicht zu, wenn Wind mehr aus Richtung des Ackerlands kommt. Dies deutet einen geringen Einfluss des Bodenstaubs in den PM10-Messungen an.

Aus dem Vertikalprofil der Bodenstaubpartikel (Abbildung 4-22), berechnet aus den horizontalen und zeitlichen Mittelwerten jeder Modellschicht, geht eine wesentlich geringere Abnahme mit steigender Höhe hervor, als für PBAP. Die Konzentrationen in der untersten Modellschicht liegen bei etwa $10 L^{-1}$ für die mittlere und große Bodenstaubmode (2 und 3) bzw. $10^4 L^{-1}$ für die kleinste Mode. Die Konzentration von Partikeln in der kleinen und mittleren Mode nimmt bis zur Tropopause um eine bzw. zwei Größenordnungen mit der Höhe ab. Aufgrund einer geringen Abnahme der Massendichte mit der Höhe nimmt der mittlere Durchmesser kleiner und mittlerer Bodenstaubpartikel leicht zu. Bei Bodenstaubpartikeln der großen Mode 1 sind Anzahlkonzentration und Massendichte mit der Höhe bis zur Tropopause nahezu konstant. Der mittlere Durchmesser von Bodenstaubpartikeln der Mode 3 nimmt von der Bodenschicht bis in etwa $2 km$ Höhe deutlich ab und ist oberhalb von $500 m$ größer als der mittlere Durchmesser der Staubmode 2. Die vergleichsweise großen Partikel in der Größenverteilung der Mode 3 sedimentieren und deponieren schneller als die kleineren Partikel derselben Staubmode. Die dadurch abnehmende Partikelanzahl wird durch Advektion der kleineren Partikel kompensiert. Der Emissionsfluss ist im Unterschied zur Staubmode 2 etwas geringer und die Advektion überwiegt nicht gegenüber der Sedimentation.

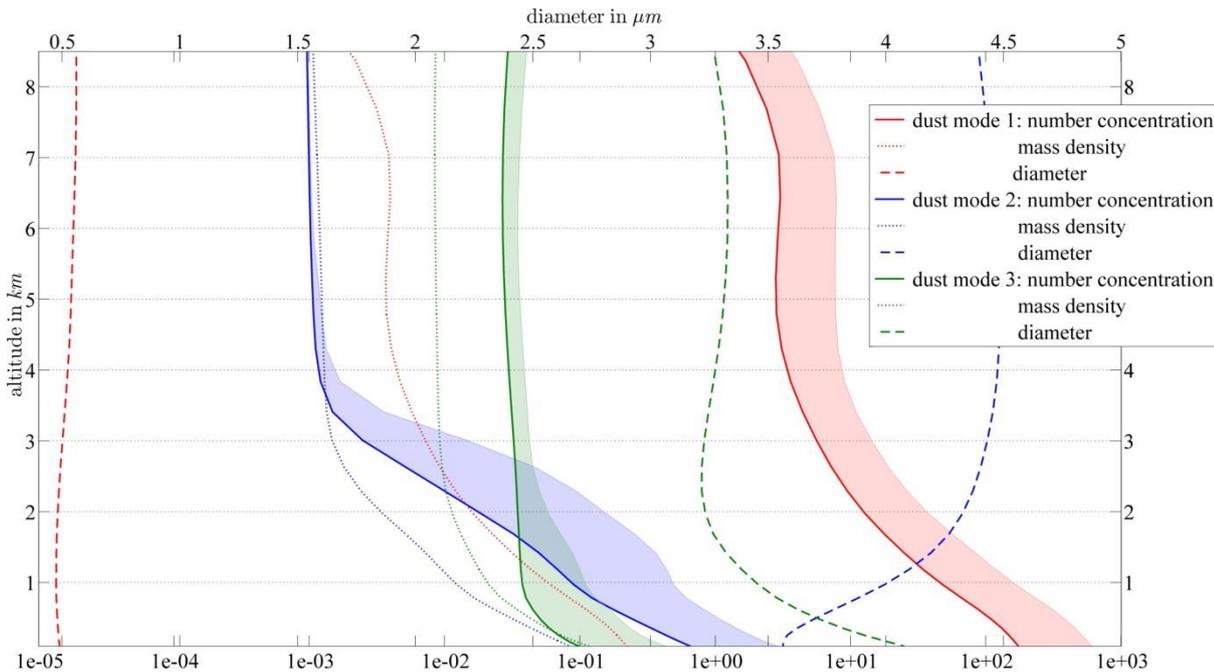


Abbildung 4-22: Vertikalprofil der horizontal und zeitlich mittleren Bodenstaubanzahlkonzentration (inklusive positiver Standardabweichung) und -massendichte in L^{-1} bzw. $\mu g/m^3$ (untere Achse) und der daraus berechnete Mediandurchmesser in μm (obere Achse) für die einzelnen Moden der Größenverteilung.

Das Vertikalprofil des Bodenstaubs deutet unterschiedliche Aspekte einer polydispersen Partikelgrößenverteilung an und gibt möglicherweise dadurch eine in der Summe geringere Abnahme der Anzahlkonzentration mit der Höhe wieder als für PBAP.

4.6. Zusammenführung der Ergebnisse

Kapitel 4 thematisiert die Konzentrationen von simulierten PBAP sowie Bodenstaub und zeigt für alle Partikel plausible horizontale und vertikale Verteilungen. Die Größenordnung der mittleren Emissionen und mittleren bodennahen Konzentrationen stimmen mit Ergebnissen aus verschiedenen GCM überein. Langzeit- und Hintergrundmessungen von verschiedenen PBAP decken zusätzlich den Konzentrationsbereich in COSMO-ART ab. An einigen Stationen in der Schweiz korrelieren die simulierten Tagesmittelwerte für Birkenpollen gut mit Birkenpollenzählungen. Andere Stationen in der Schweiz zeigen teilweise deutliche Unterschiede zwischen simulierten und gemessenen Tagesmittelwerten, die jedoch nicht eindeutig in eine Richtung weisen. Eine Abweichung der Simulationswerte von den Messungen kann in dieser Region teilweise von einer ungenau wiedergegebenen Modellorografie aufgrund einer Auflösung von $14 km$ resultieren. Kiefernpollen werden zu dem Zeitraum, den die Simulation abdeckt, nicht freigesetzt, da ihre Blütezeit erst Mitte bis Ende April startet. Die Emissionsparametrisierung wurde testweise ausgeführt und ermöglicht die Untersuchung von Kiefernpollen zu dem Simulationszeitraum. Die berechneten

Konzentrationen in der untersten Modellschicht stimmen im Mittel mit Messungen während der Blütesaison überein.

In einem direkten Vergleich wurden die simulierten Pilzsporenkonzentrationen anhand von FBAP-Messungen eingeschätzt. Dieser Vergleich wird dadurch gerechtfertigt, dass FBAP-Messungen eine geeignete untere Abgrenzung der PBAP-Konzentrationen darstellen und der FBAP-Größenbereich häufig eine deutliche Erhöhung bei dem Durchmesser zeigt, der mit dem Durchmesser von Pilzsporen übereinstimmt. Zusätzlich zu zwei literaturbasierten Emissionsparametrisierungen konnte eine eigene Parametrisierung an die FBAP-Konzentrationen an vier verschiedenen Standorten angepasst werden. Der Vergleich verdeutlicht, dass die Anzahlkonzentrationen simulierter Pilzsporen häufig einen sehr ähnlichen Tagesgang zu den FBAP-Konzentrationen aufweisen. Die Konzentration der Pilzsporen wird teilweise von der Grenzschichthöhe beeinflusst. Meist stimmen die Pilzsporenkonzentrationen mit der Größenordnung der FBAP-Messungen gut überein. Generell zeigen die Unterschiede, dass die tatsächlichen Parameter zur Emission von PBAP nicht hinreichend berücksichtigt werden oder nicht genau bekannt sind.

Die vertikale Ausbreitung der PBAP zeigt eine Abnahme der Partikelkonzentrationen mit der Höhe von zwei bis drei Größenordnungen zwischen Erdboden und Tropopause. In der Höhe mit maximalem Wolkenwassergehalt (3 km bis 4 km) beträgt die Summe der Konzentrationen von Birken- und Kiefernpollen, Pilzsporen und Bakterien zwischen 1 L^{-1} und 10 L^{-1} . Diese Summe beinhaltet allerdings einen Anteil an nicht eisaktiven Bakterien und Pilzsporen. Zudem bestimmt die Umgebungstemperatur, wie viele PBAP in dieser Höhe zu IN aktiviert werden. Die Analyse von einzelnen Temperatur- bzw. Längenabschnitten zeigt, dass INA PBAP in einer Konzentration zwischen $0,01\text{ L}^{-1}$ und 1 L^{-1} in einer Höhe zwischen 3 km und 5 km auftreten können.

5 Modellsimulationen zur Wirkung biologischer Eiskeime unter atmosphärischen Bedingungen

5.1. Allgemeine Beschreibung der Simulationen

Ein potentieller Einfluss von PBAP auf Mischphasenwolken erfolgt über das Immersionsgefrieren von Wolkentröpfchen, bei denen PBAP als Eiskeime fungieren. Dieser Gefriervorgang, der aufgrund der BIN bei höheren Temperaturen (unter 0°C) stattfindet als beispielsweise bei Mineralstaub-IN, ist der Ausgangspunkt der Modellstudie der vorliegenden Arbeit. Für die Einschätzung der Effektivität der BIN unter atmosphärischen Bedingungen muss beurteilt werden, (i) ob deren IN-Anzahlkonzentrationen in Relation zu atmosphärisch dominanten IN aus anderen Quellen vergleichbare Anzahlkonzentrationen erreicht und (ii) ob die Gefrierereignisse ausgelöst durch PBAP häufig genug innerhalb der Modelldomäne und des Simulationszeitraums auftreten. Die in Wolken enthaltene IN-Anzahlkonzentration N_{IN} wird anhand der PBAP-Konzentration und der temperaturabhängigen eisaktiven Fraktion f_{IN} berechnet (Kapitel 3.3). Die Parametrisierung des Immersionsgefrierens bedingt, dass BIN nur in Wolkenteilen mit Flüssigwasseranteilen vorkommen. N_{IN} kann entsprechend Gleichung (2-26) zur Anzahlkonzentration der Eiskristalle N_i innerhalb der Wolke beitragen. Dieser Beitrag zu N_i ist unter verschiedenen Umgebungsbedingungen und aufgrund einer stark variierenden PBAP-Konzentration sehr unterschiedlich. Um zwischen den IN einzelner PBAP zu unterscheiden, werden die jeweiligen „diagnostischen“ IN analysiert. In der vorliegenden Arbeit repräsentieren diagnostische IN diejenigen Partikel, die lediglich durch die Anwendung der Eisnukleationsparametrisierung in Wolken gebildet wurden, ohne die folgenden Zeitschritte zu beeinflussen und ohne selber beeinflusst zu werden. Die Konzentration der diagnostischen IN berechnet sich anhand der Parametrisierung abhängig von der Konzentration des jeweiligen als IN fungierenden Aerosols und der Temperatur an demselben Gitterpunkt. Beinhaltet die Simulation im Folgenden den Einfluss von IN auf die Wolkenmikrophysik via heterogener Eisnukleation, werden diese als „prognostische“ IN bezeichnet. Mit zwei unabhängigen Szenarien soll der Einfluss der BIN auf Mischphasenwolken in Relation zum bestehenden Einfluss durch „konventionelle“ IN betrachtet werden: (1) einem Hintergrundscenario ausschließlich mit Mineralstaub-IN und (2) einem Szenario mit zusätzlichen BIN sowie derselben Hintergrundkonzentration durch Mineralstaub-IN als Quelle für Eiskristalle (Abbildung 5-1). Beide Szenarien beinhalten das Immersionsgefrieren und die Depositionsnukleation von Mineralstaub-IN (ausschließlich bei $T < -15^{\circ}\text{C}$) nach Phillips et al. (2008), ausgehend von einer konstanten Hintergrundkonzentration der Staubpartikel von 100 L^{-1} ($d_g = 0,64 \mu\text{m}$). Das verwendete Temperaturlimit stellt einen unteren Schwellenwert dar, ab dem Mineralstaub üblicherweise eisaktiv ist. Laboruntersuchungen zeigen allerdings, dass Mineralstaub auch

bei etwas höheren Temperaturen weiterhin eisaktiv sein kann. Bei einer aerosolabhängigen Parametrisierung für Mineralstaub-IN, abgeleitet aus aktuellen AIDA-Messungen, ist daher eine untere Temperaturbegrenzung von $T = -12^{\circ}\text{C}$ angegeben (Niemand et al., 2012). Die gewählte Hintergrundkonzentration ist signifikant geringer als die Konzentration beim direkten Transport von Mineralstaub aus der Sahara nach Zentraleuropa während eines Staubereignisses (Klein et al., 2010; Stanelle et al., 2010).

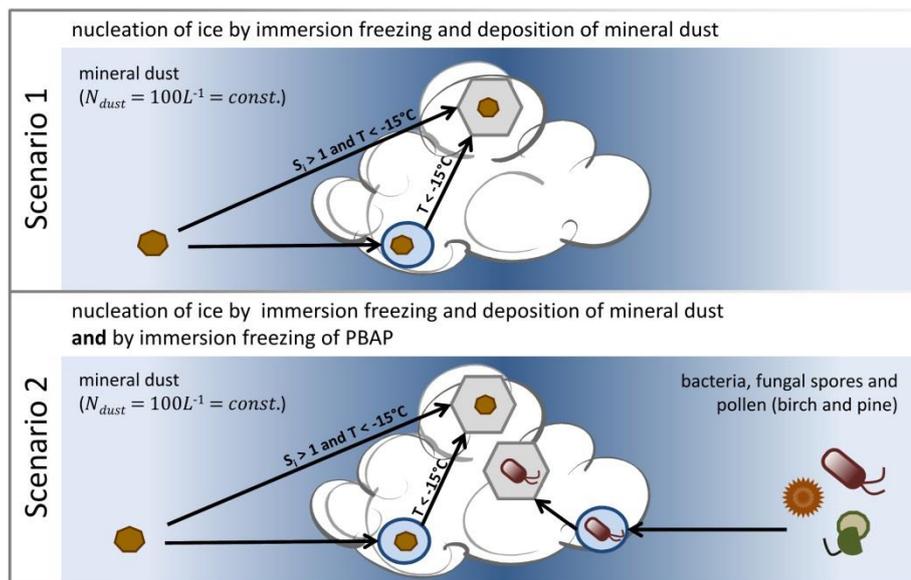


Abbildung 5-1: Schematische Darstellung der in den Szenarien jeweils für die heterogene Eisnukleation verwendeten IN.

Die in der vorliegenden Arbeit simulierten BIN werden aufgrund der in Kapitel 4 gezeigten PBAP-Konzentrationen berechnet. Für Bakterien-IN wurden zwei Annahmen bezüglich dem Anteil an Gesamtbakterien, die zur Eisnukleation beitragen können, getroffen. Zum einen sind, wie in Kapitel 3.3 erläutert, nach Lindemann et al. (1982) 0 – 4% der Bakterien ähnlich eisaktiv wie die Art *Pseudomonas syringae* und können anhand der Parametrisierung in Gleichung (3-8) als IN wirken. Diese Annahme für f_{max} stimmt mit der Abschätzung von Garcia et al. (2012) überein. Unter Berücksichtigung von f_{max} sind somit lediglich maximal $f_{max} \cdot f_{INA} = 0,112\%$ der Gesamtbakterien eisaktiv. Als Sensivitätstest wird der Anteil von INA Bakterien mit 100% angenommen, wodurch der Maximalanteil der Bakterien-IN gleich $f_{max} \cdot f_{INA} = 2,8\%$ ist. Die Annahme für den Anteil an eisaktiven *Cladosporium* Sporen an der Gesamtanzahl der simulierten Pilzsporen ist bei beiden Varianten, mit geringem und maximalen Anteil an INA Bakterien, identisch ($f_{max} \cdot f_{INA} = 29\%$). In aktuellen Studien sind weitere INA Pilzsporenarten ermittelt worden (Huffman et al., 2013). Der Beitrag dieser Arten auf die heterogene Eisnukleation von BIN ist in der vorliegenden Arbeit nicht berücksichtigt. Wie in Kapitel 4.1 erläutert, wurde die Partikelkonzentration von Kiefernpollen unter optimierten Bedingungen simuliert. Die Anzahl an Kiefernpollen-IN kann somit nur als vorläufiges Ergebnis betrachtet werden.

5.2. Diagnostische biologische Eiskeime

5.2.1. Vertikale Ausbreitung

Eine zentrale Fragestellung in Kapitel 4 beinhaltet die vertikale Ausbreitung der PBAP, um eine Aussage über deren Anzahlkonzentrationen in der Höhe von Mischphasenwolken zu treffen. So wie Abbildung 4-15 die mittlere vertikale Verteilung der PBAP angibt, kann vergleichbar dazu ein Vertikalprofil der diagnostischen IN berechnet werden (Abbildung 5-2). Diese Vertikalverteilung entsteht aus dem horizontalen Mittelwert der IN-Anzahlkonzentration jeder Modellschicht über die bewölkten und wolkenfreien Gebiete der kompletten Modelldomäne. Die als Ordinate angegebene Höhe bezieht sich dabei erneut auf die Höhe der jeweiligen Modellschicht ohne orografische Veränderung der Schichtung. Zusätzlich beinhaltet Abbildung 5-2 die Vertikalprofile der mittleren PBAP-Konzentrationen und des mittleren N_c aus Abbildung 4-15. Die Ordinate auf der rechten Seite von Abbildung 5-2 gibt die mittlere Temperatur der Höhenschicht an. Selbst wenn die mittlere Temperatur in unteren Modellschichten bei $T > 0^\circ\text{C}$ liegt, kann die Temperatur lokal deutlich unter 0°C liegen. So können IN selbst diesen Schichten vorkommen.

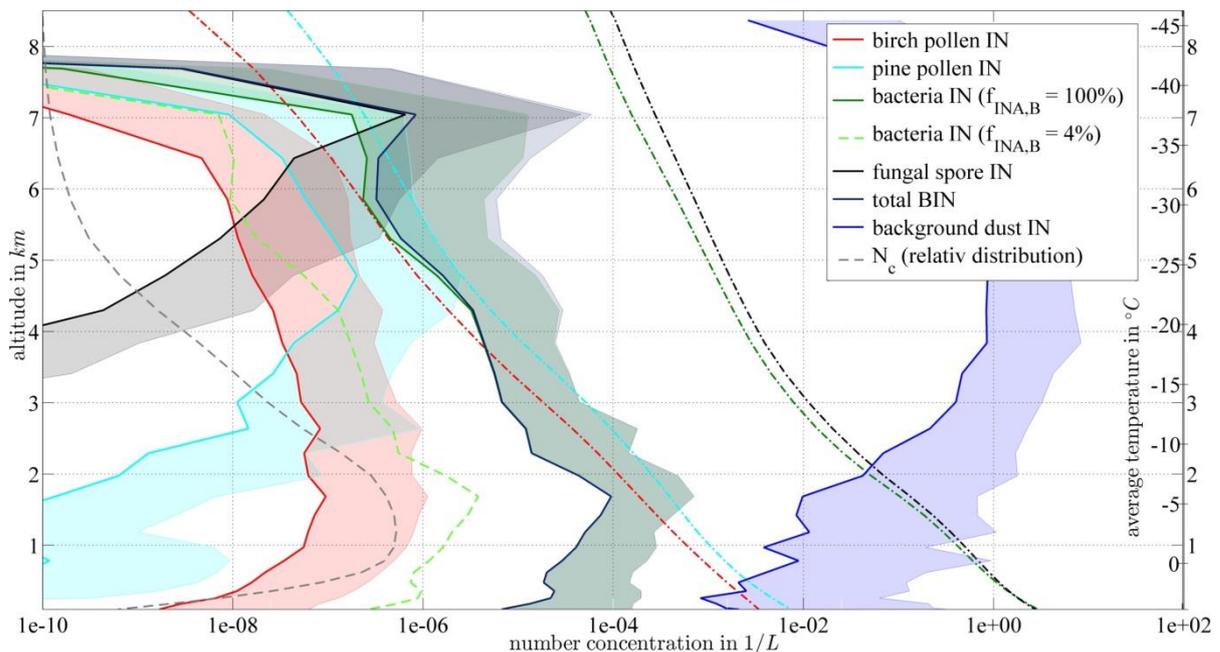


Abbildung 5-2: Vertikalprofil der diagnostischen BIN und Mineralstaub-IN in L^{-1} : Räumlicher und zeitlicher Mittelwert über bewölkte und wolkenfreie Gebiete der kompletten Modelldomäne der einzelnen BIN gegenüber einer exemplarischen Höhenachse anhand der Höhe der Modellschichten ohne Beeinflussung durch Orografie. Die farbige Umrandung stellt den positiven Bereich der räumlichen Standardabweichung dar. Die Temperaturskala bezieht sich auf die mittlere Temperatur pro Modellschicht und skizziert einen typischen Temperaturverlauf mit der Höhe.

Das Vertikalprofil der mittleren Anzahl der Gesamt-BIN, als Summe der einzelnen in der Simulation verwendeten PBAP, erreicht in einer Höhe von etwa 2 km im Simulationszeitraum Anfang April 2008 eine maximale Konzentration von 10^{-4} L^{-1} . In einer vergleichbaren

Höhe befindet sich zudem die im horizontalen und zeitlichen Mittel höchste Konzentration von Bakterien-IN. Bei einem Anteil von INA Bakterien ($f_{INA,B}$) von 100% sind die Vertikalprofile von Bakterien-IN und Gesamt-BIN bis 4 km Höhe deckungsgleich, oberhalb davon sehr ähnlich. Bakterien-IN liefern daher den im Mittel höchsten Beitrag zur BIN-Gesamtkonzentration. Der Bereich der Standardabweichung anhand der räumlichen Variation erstreckt sich ein bis zwei Größenordnungen über den Mittelwert. Ein Bereich unterhalb des Mittelwertes kann nicht angegeben werden, weil die Standardabweichung meist höher als der Mittelwert ist. Dieser weite Größenbereich gibt eine hohe Variation der Aerosolkonzentration wieder und deutet an, dass es einige Gebiete mit deutlich höherer BIN-Konzentration gibt.

Das Maximum im Vertikalprofil von Birken- und Kiefernpollen-IN liegt zwischen 2 km und 4 km Höhe. Zwischen der Erdoberfläche und der Höhe ihrer maximalen IN-Konzentration steigt die Anzahl der Pollen-IN aufgrund der effektiveren IN-Aktivierung bei sinkender Temperatur deutlich an. Im Vergleich zu den Bakterien-IN ist der Gradient in den untersten Modellschichten bei Pollen-IN wesentlich stärker. Hier werden nur selten Temperaturen $<-8^{\circ}\text{C}$ bzw. $<-15^{\circ}\text{C}$ erreicht, ab dieser Birken bzw. Kiefernpollen aktiviert werden. Die in der vorliegenden Arbeit betrachteten INA Pilzsporen sind lediglich ab -28°C eisaktiv. Pilzsporen-IN treten in der Simulation erst ab einer Höhe von 4 km auf und erreichen die maximalen Konzentrationen in 7 km Höhe. Oberhalb von etwa 8 km nehmen die Konzentrationen von allen BIN deutlich ab. Die Temperaturen innerhalb der Wolke fallen unter -38°C , sodass homogene Eisnukleation anstelle der heterogenen Eisnukleation einsetzt. Zusätzlich zu dem Vertikalprofil der diagnostischen BIN ist die mittlere IN-Hintergrundkonzentration aus der heterogenen Eisnukleation von Mineralstaub, ausgehend von einer konstanten Aerosolkonzentration, in Abbildung 5-2 dargestellt. Die Konzentration der Mineralstaub-IN ist durchweg höher als die BIN-Konzentration.

Im Vergleich zum Vertikalprofil der PBAP nimmt, mit Ausnahme der Pilzsporen, die IN-Konzentration oberhalb des Maximums im gleichen Umfang ab wie die jeweilige Aerosolkonzentration. Lediglich Pilzsporen-IN zeigen aufgrund eines deutlich höheren T_{max} ein anderes Vertikalprofil. Somit sind die Konzentrationen der einzelnen, diagnostischen IN stets durch die Konzentrationen ihrer PBAP begrenzt. Dadurch kann der Bereich des Vertikalprofils der IN-Konzentration oberhalb des Maximums als „partikellimitiert“ bezeichnet werden. Unterhalb des absoluten Maximums ist die IN-Konzentration vom Verlauf der temperaturabhängigen eisaktiven Fraktion abhängig, weshalb der Bereich als „temperaturlimitiert“ gilt.

5.2.2. Temperaturabhängigkeit

Um die Limitationsbereiche der BIN-Konzentration zu verdeutlichen, kann die IN-Konzentration des Vertikalprofils aufgrund der Temperaturabnahme mit der Höhe in einem Temperaturprofil dargestellt werden. Die raum- und zeitabhängige Konzentration der

einzelnen, diagnostischen IN wird dafür der Temperatur zugeordnet, die an demselben Orts- und Zeitpunkt herrscht. Am Beispiel von Bakterien ($f_{INA,B} = 100\%$) ist zunächst die im gesamten Simulationszeitraum maximal auftretende IN-Konzentration temperaturabhängig dargestellt (Abbildung 5-3). Zusätzlich sind in Abbildung 5-3 die eisaktive Fraktion f_{IN} für Bakterien (aus Abbildung 3-2) und die bei der jeweiligen Temperatur auftretende Anzahlkonzentration von INA Bakterien dargestellt. Für diese Berechnung sowie vergleichbare, temperaturabhängige Darstellungen diagnostischer IN wird nicht die universelle Temperaturvariable des Modells verwendet, sondern eine diagnostische Temperatur, die zum selben Berechnungsschritt wie die diagnostischen IN ausgegeben wird und nicht durch Freisetzung latenter Wärme beeinflussbar ist.

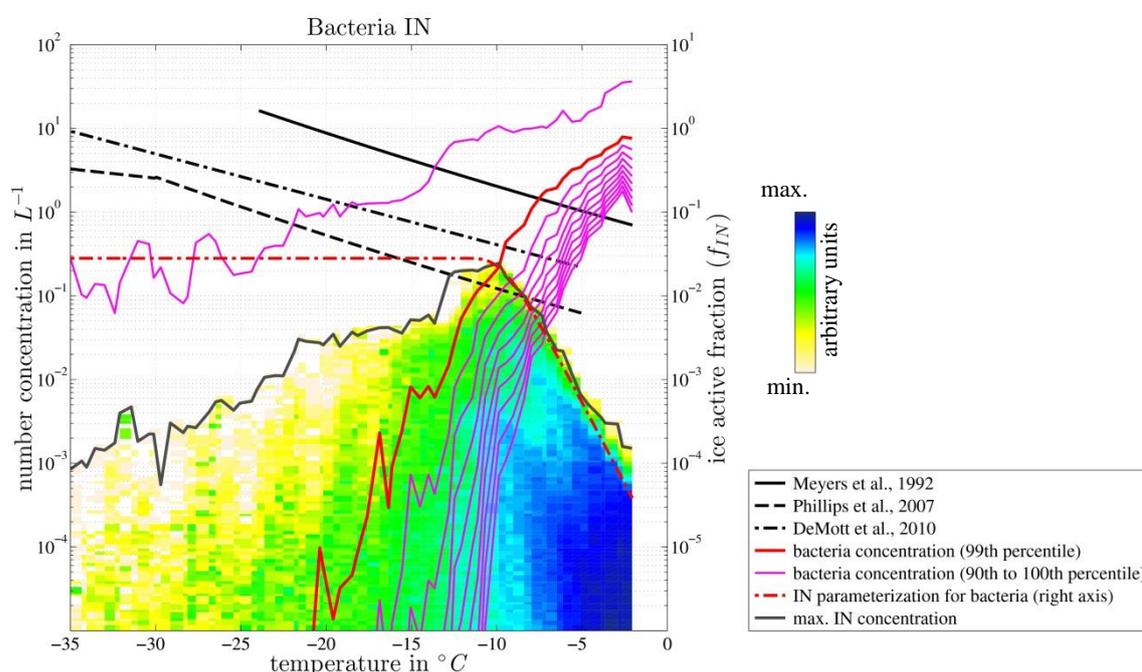


Abbildung 5-3: Bakterien-IN- und Bakterienkonzentration in L^{-1} innerhalb von Wolken und Parametrisierung des eisaktiven Anteils f_{IN} von Bakterien gegenüber der Temperatur in $^{\circ}C$ zusammen mit einem 2D-Histogramm der IN-Konzentration in L^{-1} für *Pseudomonas syringae* Bakterien ($f_{INA,B} = 100\%$). Die Farbe des 2D-Histogramms repräsentiert die Häufigkeit von IN pro Temperatur- und Konzentrationsintervall. Die unterschiedlichen magentafarbenen Linien repräsentieren das 90. bis 100. (\cong Maximalkonzentration) Perzentil der unterschiedlichen Bakterienkonzentrationen innerhalb von Wolken, die rote Linie gibt das 99. Perzentil an. Die schwarzen Linien zeigen aerosolunabhängige Parametrisierungen.

Neben dem Verlauf der IN-Konzentrationen mit der Temperatur ist die Häufigkeit der auftretenden IN-Konzentrationen für einen deutlichen Einfluss der PBAP auf die Wolkenprozesse ausschlaggebend. Ein über die räumliche und zeitliche Ausdehnung des Modells pro Temperaturschritt ermittelter Maximalwert könnte vorwiegend durch das Auftreten von Ausreißern bedingt sein. Diese Konzentrationen wären aufgrund ihres seltenen Auftretens für einen Gesamteinfluss nicht ausschlaggebend. Die Berechnung einer mittleren IN-Konzentrationsverteilung innerhalb der Wolken pro Temperaturintervall wird durch Hintergrundbereiche der PBAP-Konzentrationen, die häufig um mehrere Größenordnungen variieren können, stark beeinflusst. Daher wird die Darstellung von Anzahlkonzentration

gegenüber der Temperatur alternativ in ein 2D-Histogramm aus Konzentrations- und Temperaturschritten eingeteilt (Abbildung 5-3). Ein Abschnitt wird dabei farblich gekennzeichnet, wenn IN in dem entsprechenden Konzentrations- und Temperaturintervall zu einem beliebigen Orts- und Zeitpunkt der Simulation auftreten. Die Farbe des Abschnitts repräsentiert die Häufigkeit dieser IN-Konzentration in dem jeweiligen Temperaturbereich. Die absoluten Werte der Häufigkeit hängen von der Anzahl der Gitterpunkte und der Länge der Modellsimulation ab und haben daher keine Aussagekraft über die Effektivität der BIN. Anhand der relativen Werte der Häufigkeit kann beurteilt werden, ob IN-Konzentrationen in dem jeweiligen Temperaturbereich lediglich vereinzelt oder verstärkt vorkommen.

Das 2D-Histogramm der IN pro Konzentrations- und Temperaturintervall (Abbildung 5-3) beinhaltet zusätzlich zwei aerosolunabhängige Eisnukleationsparametrisierungen (Meyers et al., 1992; Phillips et al., 2007) und einen temperaturabhängigen Fit für in DeMott et al. (2010) gezeigte IN-Messungen für verschiedene Umgebungen. Den drei Referenzen liegen mehrere *in-situ* Beobachtungen der Eiskristallkonzentration in natürlichen Wolken zugrunde. Die abgeleiteten temperaturabhängigen Funktionen geben, insbesondere bei niedriger Temperatur, wesentlich höhere Konzentrationen im Vergleich zu den hier gezeigten BIN-Konzentrationen wieder. Dieser Unterschied deutet an, dass BIN in natürlichen Wolken nur einen kleinen Teil der gesamten IN ausmachen.

Bei einer Temperatur von etwa -9°C erreicht die Konzentration der Bakterien-IN ihr absolutes Maximum pro Gitterpunkt (Abbildung 5-3). Im Unterschied zur maximalen Konzentration der INA Bakterien beträgt die Bakterien-IN-Konzentration 2,8% dieses Wertes, was f_{max} entspricht. Im Bereich zwischen -2°C und -9°C verläuft die IN-Konzentration deckungsgleich zu der zugehörigen eisaktiven Fraktion. Bei jeder Temperaturreduktion steigt die IN-Konzentration im selben Umfang wie die eisaktive Fraktion an. Da f_{IN} für jedes monodisperse PBAP ausschließlich von der Temperatur abhängt, ist die IN-Konzentration zwischen der Temperatur des Maximalwerts und -2°C temperaturlimitiert. Bei Temperaturen unterhalb des Maximums bei -9°C nimmt die IN-Konzentration näherungsweise so viel mit absinkender Temperatur ab, wie die Bakterienkonzentration. Eine Korrelation zwischen temperaturabhängiger IN- und Bakterienkonzentration bedeutet, dass die IN-Anzahl durch die Partikelanzahl bedingt ist und eine Verschiebung der Partikelanzahl hin zu höheren Konzentrationen gleichzeitig eine höhere IN-Konzentration bewirkt. IN im Bereich kälter als -9°C sind durch die jeweiligen PBAP-Konzentrationen limitiert.

Entsprechen der Auswertung in Abbildung 5-3 können die Konzentrationen der weiteren, in dieser Arbeit simulierten BIN als 2D-Histogramm dargestellt werden (Abbildung 5-4). Die Konzentration von Bakterien-IN mit $f_{INA,B} = 4\%$ ist linear um 4% verschoben und hat dementsprechend ein Maximum von 10^{-2} L^{-1} bei -9°C (Abbildung 5-4c). Die Einteilung in Temperatur- und Konzentrationsintervall zeigt, dass der Maximalwert vergleichsweise selten erreicht wird, um eine Größenordnung niedrigere Konzentrationen bei derselben Temperatur jedoch deutlich häufiger auftreten. Im Temperaturbereich zwischen -2°C

und -9°C besteht parallel zu f_{IN} innerhalb geringer Konzentrationsunterschiede ein hoher Gradient in der Häufigkeit. Oberhalb von -2°C ist die Parametrisierung für INA Bakterien nicht definiert und die Temperaturverteilung der diagnostischen IN bricht abrupt ab. Ausgehend vom Maximalwert nimmt die IN-Konzentration gegenüber kälteren Temperaturen vergleichsweise geringfügig mit fallender Temperatur ab. Die Häufigkeit einer bestimmten IN-Konzentration ist bei Temperaturen unterhalb von -20°C meist geringer als in dem wärmeren Temperaturbereich zwischen -2°C und -9°C . Das deutet an, dass es vergleichsweise wenige Ereignisse gibt, bei denen Bakterien in Höhenschichten mit Temperaturen unterhalb von -20°C transportiert werden.

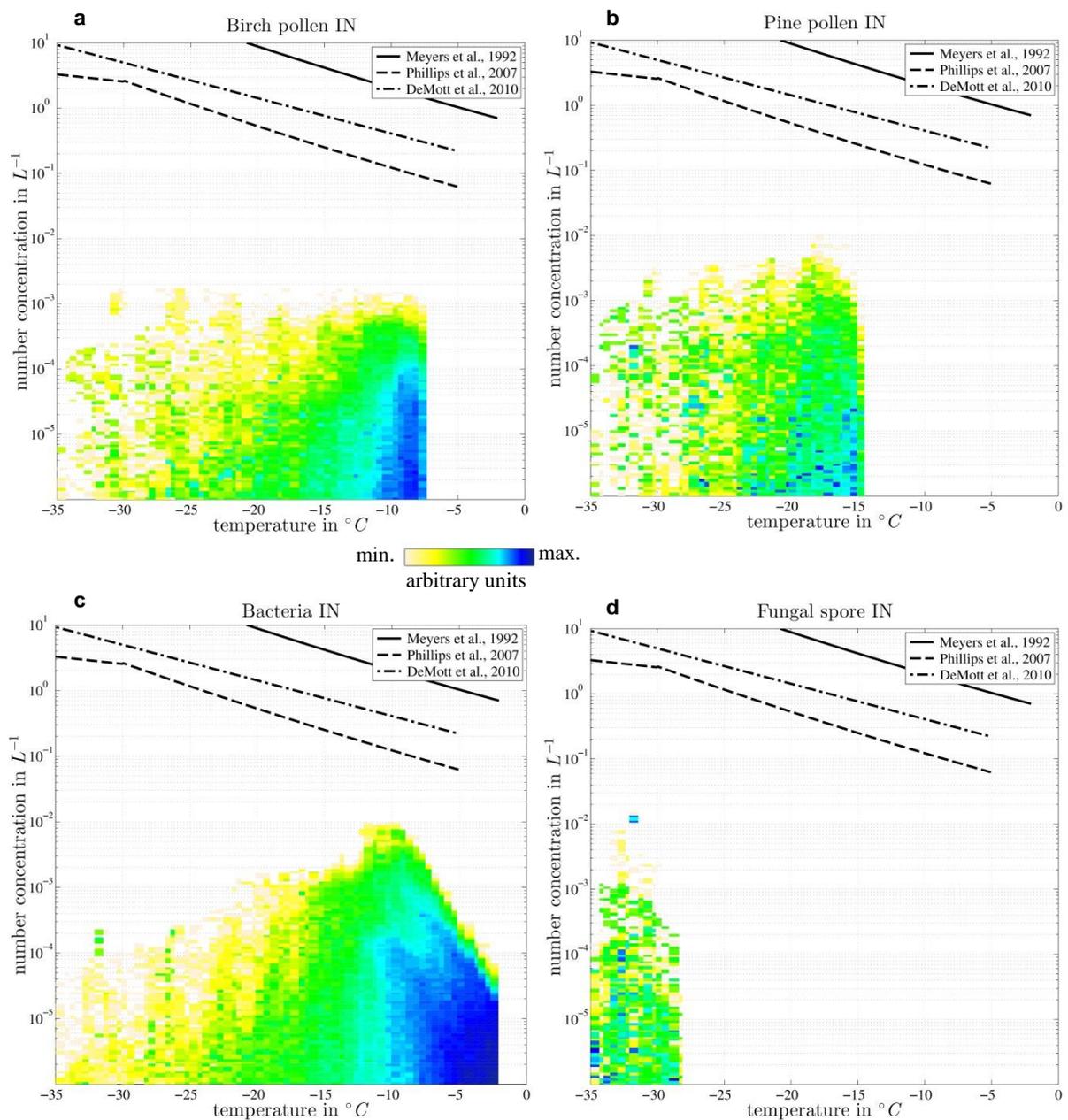


Abbildung 5-4: 2D-Histogramm von Temperatur in $^{\circ}\text{C}$ und IN-Konzentration L^{-1} für IN von (a) Birken- und (b) Kiefernpollen, (c) INA Bakterien ($f_{INA,B} = 4\%$) und (d) INA Pilzsporen. Die schwarzen Linien zeigen aerosolunabhängige Parametrisierungen.

Der Temperaturverlauf von Birkenpollen-IN erreicht knapp unterhalb von $T_{max} = -8^{\circ}\text{C}$ einen geringfügig ausgeprägten Peak (Abbildung 5-4a). Bei wärmeren Temperaturen nimmt die maximale IN-Konzentration nur leicht ab, wird aber wesentlich seltener erreicht als bei -10°C . Die maximalen Konzentrationen der Kiefernpollen-IN sind etwas höher als die der Birkenpollen-IN und erreichen bei etwa -17°C ihre Maximalkonzentration von 10^{-2}L^{-1} (Abbildung 5-4b). Oberhalb von -14°C tritt keine Eisnukleation von Kiefernpollen mehr ein.

Die in der vorliegenden Arbeit betrachteten Pilzsporen sind, im Gegensatz zu den übrigen BIN, bei deutlich niedrigeren Temperaturen eisaktiv (Abbildung 5-4d). Ab -28°C steigt die Pilzsporen-IN-Konzentration mit abnehmender Temperatur deutlich an. Der Maximalwert der IN-Konzentration von $5 \cdot 10^{-2} \text{L}^{-1}$ wird lediglich bei -31°C erreicht. Bei -20°C ist die Anzahlkonzentration von Pilzsporen-IN geringfügig höher als die von Bakterien-IN (bei $f_{INA,B} = 4\%$). Unterhalb von -31°C haben Pilzsporen innerhalb der BIN die höchste Konzentration. Allerdings sind deren Maximalwerte etwa zwei Größenordnungen niedriger als Werte der aerosolunabhängigen Parametrisierungen.

5.2.3. Horizontale Verteilung

Die horizontale Verteilung der vertikal integrierten Anzahlkonzentration von diagnostischen IN ist als Mittelwert über bewölkte und wolkenfreie Gebiete der kompletten Modelldomäne und den Simulationszeitraum April 2008 in Abbildung 5-5 dargestellt. Die Verteilung der IN ist maßgeblich durch die in dem Zeitraum auftretende Bewölkung gegeben. Für BIN unterscheidet sich die Konzentration zwischen den Abbildungen 5-5a und 5-5b etwa um eine Größenordnung aufgrund des Anteils an INA Bakterien, auf die die Parametrisierung der Eisnukleation aus Kapitel 3.3 angewandt wird. Die Gebiete mit der höchsten Konzentration von BIN in der vertikalen Luftsäule liegen im zentraleuropäischen Festland (Deutschland, Frankreich und Benelux) und dem Alpenraum mit Werten von 100m^{-2} bis 1000m^{-2} ($f_{INA,B} = 100\%$) bzw. 10m^{-2} bis 100m^{-2} ($f_{INA,B} = 4\%$). In einigen Gebieten wird selbst bei einem Mittelwert über sechs Tage deutlich, dass stets eine typische Anströmrichtung herrscht und Partikel häufig in dieselbe Richtung transportiert werden. Bewirkt die mittlere Windrichtung dort oft eine Abkühlung des Luftpaketes, treten vermehrt IN horizontal abseits eines PBAP-Quellgebietes auf. Dieses Verhalten wird beispielsweise südlich von Island oder Irland deutlich, oder in einem Streifen erhöhter IN-Konzentration vom Süden Spaniens über das Mittelmeer nach Italien. Die Konzentration von Mineralstaub-IN pro Luftsäule über die komplette vertikale Modellausdehnung ist meist wesentlich höher als die von BIN (Abbildung 5-5c). Die Luftsäulen mit den höchsten Konzentrationen von Mineralstaub-IN zwischen 10^7m^{-2} und 10^8m^{-2} liegen über der Ostsee und nördlich von Schottland.

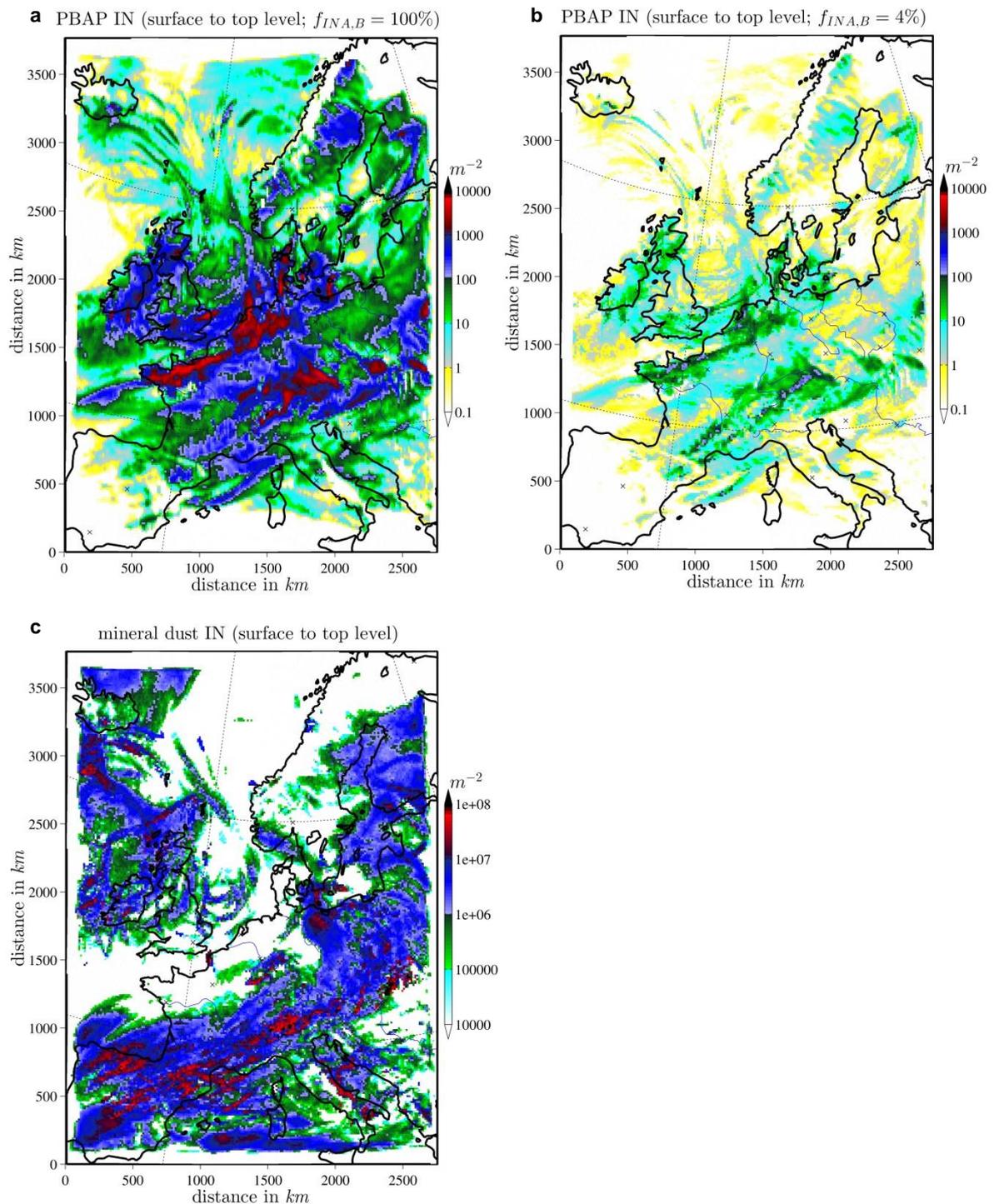


Abbildung 5-5: Vertikal integrierte Anzahlkonzentration über die Gesamthöhe des Modells in m^{-2} für in Wolken enthaltene, diagnostische BIN (a: $f_{INA,B} = 100\%$; b: $f_{INA,B} = 4\%$) und (c) Mineralstaub-IN.

Abbildung 5-6 zeigt, im Gegensatz zu Abbildung 5-5, die vertikal integrierte IN-Konzentration vom Erdboden bis zu Level 26, das ohne orografische Stauchung einer Höhe von etwa 2,2 km entspricht und bei dem im Mittel eine Temperatur von $-10^{\circ}C$ herrscht. Abbildung 5-6a beinhaltet die Anzahl an BIN in dieser Luftsäule ausgehend von einer Fraktion von INA Bakterien von 100%. Im Vergleich zu Abbildung 5-5a ist in vielen Gebieten

der Modelldomäne lediglich ein kleiner Rückgang der IN-Konzentration zu beobachten, mit den größten Unterschieden südlich von 45° geografischer Breite und in Osteuropa östlich von 15° geografischer Länge. Deutliche Unterschiede hingegen zeigen die horizontalen Verteilungen der Mineralstaub-IN-Konzentration pro Luftsäule bis zur Modellobergrenze (Abbildung 5-5c) und bis Level 26 (Abbildung 5-6b). Die Parametrisierung der Eisknucleation ermöglicht erst ab -15°C das Gefrieren von Wolkentropfen mit Mineralstaub-IN. Dadurch treten in nahezu dem kompletten Modellgebiet innerhalb der untersten 14 Level keine Mineralstaub-IN auf. Lediglich in einigen Gebieten beträgt die Temperatur bei Level 26 unter -15°C , bedingt durch eine niedrige Temperatur am Boden oder die Höhenverschiebung der Modellschichtung durch Orografie. In diesen Luftsäulen ist die Dichte an Mineralstaub-IN mit mehr als 10^4 m^{-2} wesentlich höher als bei BIN. Anhand dieser Berechnungen kann gezeigt werden, dass BIN im April innerhalb der unteren Troposphäre, im Mittel bei etwa $2,2\text{ km}$ Höhe, die heterogene Eisknucleation dominieren.

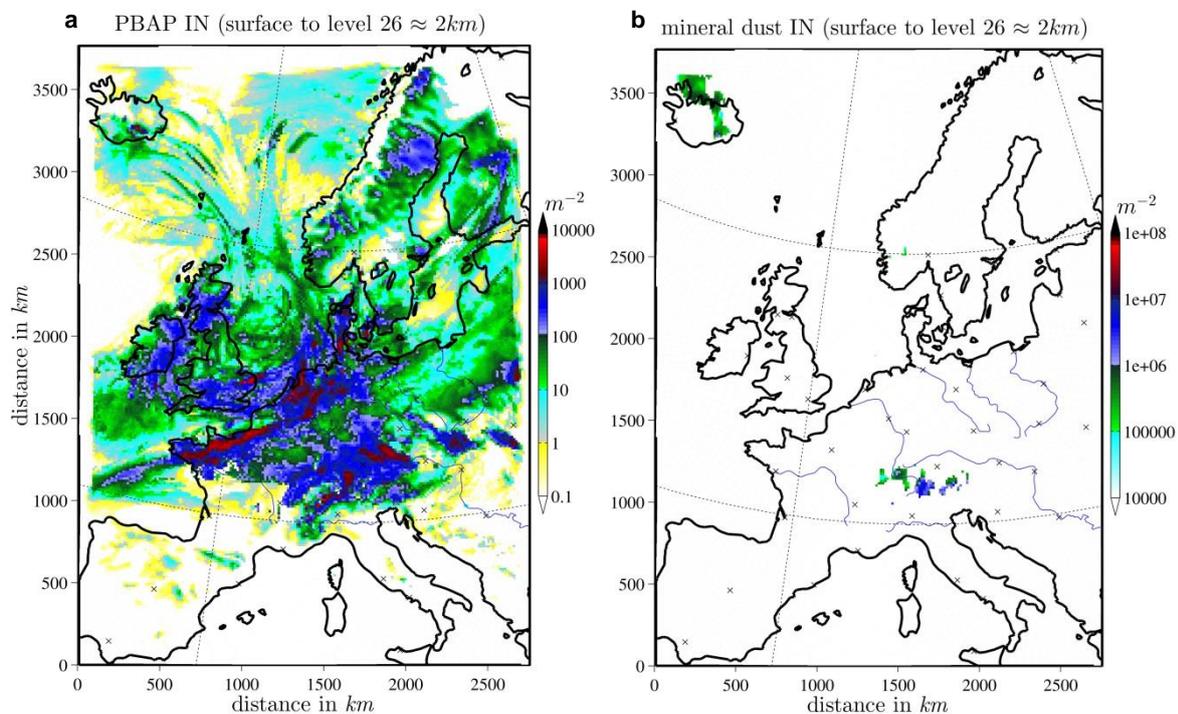


Abbildung 5-6: Vertikal integrierte Anzahlkonzentration in einer Luftsäule von der Modelluntergrenze bis zu Level 26 (entspricht etwa $2,2\text{ km}$ Höhe) in m^{-2} für in Wolken enthaltene, diagnostische (a) BIN ($f_{IN,A,B} = 100\%$) und (b) Mineralstaub-IN.

Die Gesamtanzahl von BIN aus den Abbildungen 5-5 und 5-6 setzt sich in der Modellsimulation der vorliegenden Arbeit aus IN von vier verschiedenen PBAP zusammen. Je nach Anzahlkonzentration der Partikel und Temperaturbereich sind unterschiedliche IN aktiv und dominieren die Gesamt-BIN. Eine Aussage über die vertikale Verteilung der einzelnen BIN-Anzahlkonzentration und der daraus resultierende Einfluss auf die Gesamtkonzentration der IN ist in Kapitel 5.2.1 gegeben. Die horizontale Verteilung der dominanten BIN wird anhand der jeweils höchsten IN-Anzahlkonzentration innerhalb der BIN pro vertikaler Luftsäule

berechnet (Abbildungen 5-7 und 5-8). Erneut ist zwischen einem Anteil von INA Bakterien von 4% und 100% unterschieden. In dem ersten der beiden Fälle sind Pilzsporen-IN in dem Simulationsgebiet häufiger dominant als Bakterien-IN. Die Bakterien-IN sind meist in Regionen mit vergleichsweise hoher Temperatur, vorwiegend innerhalb der untersten 2 km, der dominante BIN-Typ, beispielsweise in Teilen Skandinaviens oder des Nordseegebietes inklusive der Britischen Inseln. Pollen-IN sind im Gegensatz zu den übrigen IN ausschließlich in Gebieten mit besonders hoher Pollenkonzentration das häufigste BIN. Für sieben ausgewählte Standorte (Manchester, UK (Man); Karlsruhe, Deutschland (KA); Puy de Dôme, Frankreich (PdD); Sevilla, Spanien; Kiruna, Schweden; Jungfrauoch, Schweiz (JFJ); Trieste, Italien) ist die prozentuale Verteilung der einzelnen BIN angegeben (Kreisdiagramme in Abbildungen 5-7 und 5-8). Bei 4% INA Bakterien zeigt drei Standorte bei Bakterien-IN den höchsten Anteil, bei einem weiteren ist der Anteil der Bakterien-IN bei 20%. Zwei südliche Standorte zeigen pro Luftsäule den höchsten BIN-Anteil bei Pilzsporen-IN.

Bei dem Sensitivitätstest mit einem höheren Anteil an INA Bakterien ($f_{INA,B} = 100\%$) ist die Gesamtanzahl der BIN häufiger durch Bakterien-IN dominiert. Sowohl Pilzsporen-IN als auch Pollen-IN haben lediglich in einigen Gebieten, hauptsächlich im südlichen Teil der Modelldomäne, den höchsten Anteil an den gesamten BIN pro Luftsäule. An den nördlicheren der gezeigten Standorte ist der Anteil der Bakterien-IN-Konzentration pro Luftsäule über 98%. An lediglich drei der Standorte (Sevilla, PdD, Trieste) haben Bakterien-IN nicht den höchsten Anteil der Gesamt-BIN. In Gebieten mit hoher PBAP-Konzentration beträgt die vertikal integrierte BIN-Konzentration zwischen $100 m^{-2}$ und $10^3 m^{-2}$. Zusätzlich kann anhand von Abbildung 5-6a gezeigt werden, dass BIN sich hauptsächlich innerhalb der untersten 2 km der Atmosphäre konzentrieren. In Gebieten mit hoher vertikal integrierter Konzentration ist die Anzahlkonzentration der BIN im Mittel über die untersten 2 km etwa $0,05 m^{-3}$ bis $0,5 m^{-3}$.

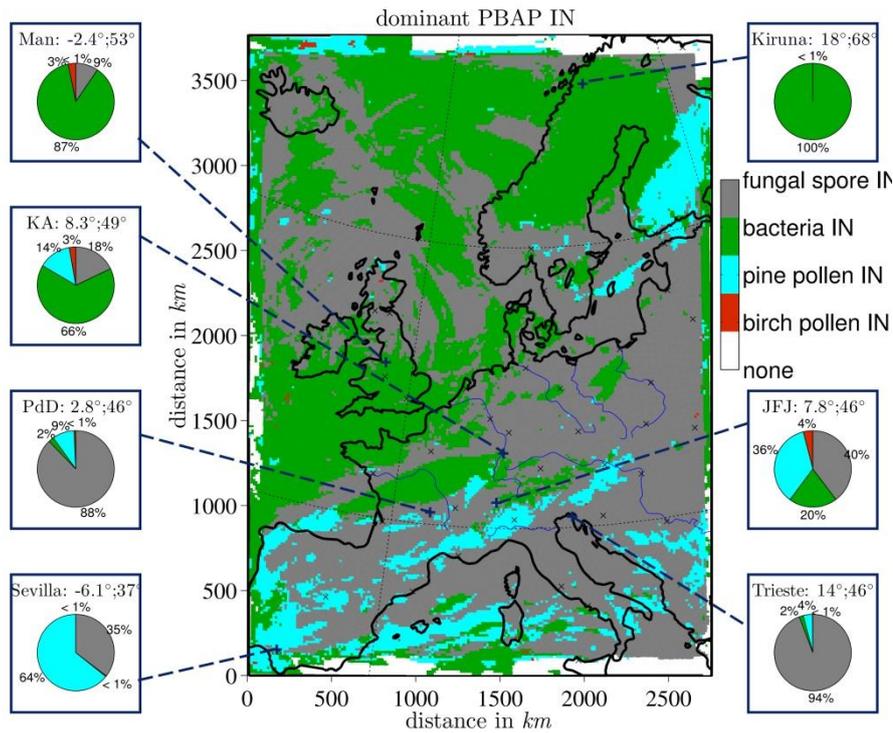


Abbildung 5-7: Dominanter Anteil der über die gesamte Modellhöhe vertikal integrierten Anzahlkonzentration von diagnostischen BIN mit $f_{INA,B} = 4\%$. Die Kreisdiagramme geben den Anteil der verschiedenen BIN an ausgewählten Standorten an (mit Angabe der Längen- und Breitengrade hinter der Ortsbezeichnung).

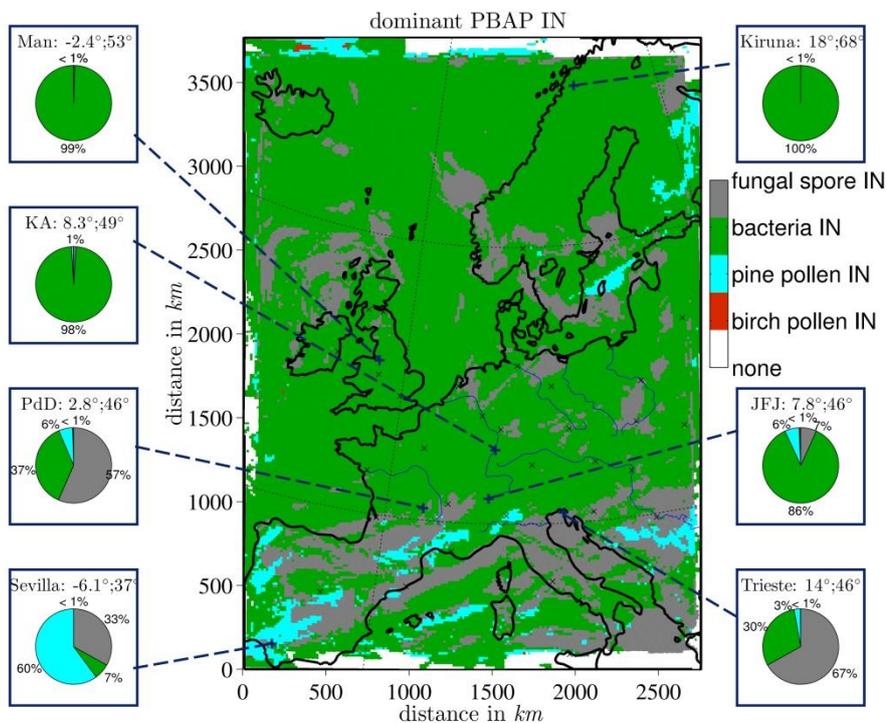


Abbildung 5-8: Dominanter Anteil der über die gesamte Modellhöhe vertikal integrierten Anzahlkonzentration von diagnostischen BIN mit $f_{INA,B} = 100\%$. Die Kreisdiagramme geben den Anteil der verschiedenen BIN an ausgewählten Standorten an (mit Angabe der Längen- und Breitengrade hinter der Ortsbezeichnung).

5.3. Vergleich der simulierten Eiskeimkonzentrationen mit Messungen

Ein direkter Vergleich der hier gezeigten Simulation mit Messungen innerhalb von Wolken ist aufgrund zeitlicher und methodischer Unterschiede nicht möglich. Während des gewählten Zeitraums wurden in Europa keine *in-situ* IN-Konzentrationen gemessen. Analysen der Bakterienkonzentration mit Messreihen auf Bergstationen oder mit Flugzeugmessungen geben lediglich eine Stichprobe wieder. Die berechnete IN-Konzentration gibt dabei die Anzahl an INA Bakterien, wenn diese in unterkühlte Schichten der Wolke aufsteigen würden. Durch Advektion und turbulente Durchmischung kann eine deutliche Abweichung zu den tatsächlichen, in der Wolke enthaltenen Bakterienkonzentrationen entstehen. Lediglich eine Aussage über die Größenordnung der IN-Konzentrationen ist in dem angewandten Vergleich sinnvoll. Die verschiedenen Messungen des Bakteriengehalts in Wolken sind meist in einem Bereich zwischen $2 \cdot 10^3 \text{ mL}^{-1}$ und $4 \cdot 10^5 \text{ mL}^{-1}$ (Kapitel 4.4; Kourtev et al., 2011; Väitilingom et al., 2012). Diese Größenordnung des gemessenen Bakteriengehalts stimmt in etwa mit den Modellsimulationen überein, wobei die simulierten Konzentrationen meist im unteren Abschnitt dieses Bereichs liegen. Wird für den Größenbereich dieser Messungen angenommen, dass 1% der enthaltenen Bakterien als IN fungieren sind und der Anteil an Bakterien-IN damit bei 1% des Bakteriengehalts pro Wolkenwasser liegt, wäre ein Maximalbereich für Bakterien-IN von $4 \cdot 10^3 \text{ mL}^{-1}$ pro Wolkenwasser zu erwarten.

Darüber hinaus wurde mittels Analyse des Gefrierhaltens von Wolken- und Niederschlagspartikeln in Kombination mit biologischen Analysemethoden (z.B. DNS-Sequenzierung) der Anteil an INA Bakterien in Wolken- und Niederschlagsproben bestimmt. In Schneeproben aus Montréal, Kanada, von März 2008 ist eine Konzentration von IN zwischen $0,32 \text{ mL}^{-1}$ bei -11°C und 160 mL^{-1} bei -16°C nachgewiesen worden. Die Schneeproben enthalten dabei eine Vielzahl von Bakterienarten, deren Temperatur beim Einsetzen des Gefriervorgangs ähnlich der von Bakteriensuspensionen mit *Pseudomonas syringae* (Mortazavi et al., 2008) ist. Die Größenordnung der IN-Konzentrationen kann durch die mittlere Konzentration von BIN aus der Simulation wiedergegeben werden, obwohl die mittleren Simulationswerte eine Abnahme zwischen -11°C und -16°C zeigen (Abbildung 5-4).

Am PdD wurde nach der Probenahme von Wolkenwasser Gefrierexperimente der extrahierten Bakterien durchgeführt, um eine genaue Einschätzung über den Anteil an INA Bakterien im Wolkenwasser zu erhalten (Joly et al., 2013). Mit dieser Methode wird, ausgehend von der bodennahen Bakterienkonzentration, der Anteil an INA Bakterien bei einer bestimmten Temperatur(-spanne) analysiert, die allerdings erst in einer entsprechenden Höhe über dem Gipfel erreicht werden könnte. Deshalb kann auch hier nur eine Aussage über die Übereinstimmung der Größenordnungen vorgenommen werden. Anhand der Skalierung der Anzahl gefrorener Bakterienproben mit dem gemessenen Wolkenwassergehalt L_c konnte im Winter eine Konzentration an INA Bakterien von $3,8 \cdot 10^{-6} \text{ mL}^{-1}$ bis

$1,15 \cdot 10^2 \text{ mL}^{-1}$ und im Sommer von $1,7 \cdot 10^{-5} \text{ mL}^{-1}$ bis $5,34 \cdot 10^2 \text{ mL}^{-1}$ im Wolkenwasser nachgewiesen werden (Joly et al., 2013). Anhand der Messungen kann ein Bereich der INA Bakterienanzahl pro L_c abhängig von der Temperatur skizziert werden (Abbildung 5-9). Unter Annahme eines Tropfendurchmessers von $10 \mu\text{m}$ kann der Bereich auf einen Anteil an INA Bakterien pro Anzahl an Wolkentropfen N_c von $\sim 10^{-15} [\#/\#]$ bis $8 \cdot 10^{-7} [\#/\#]$ skaliert werden (Joly et al., 2013).

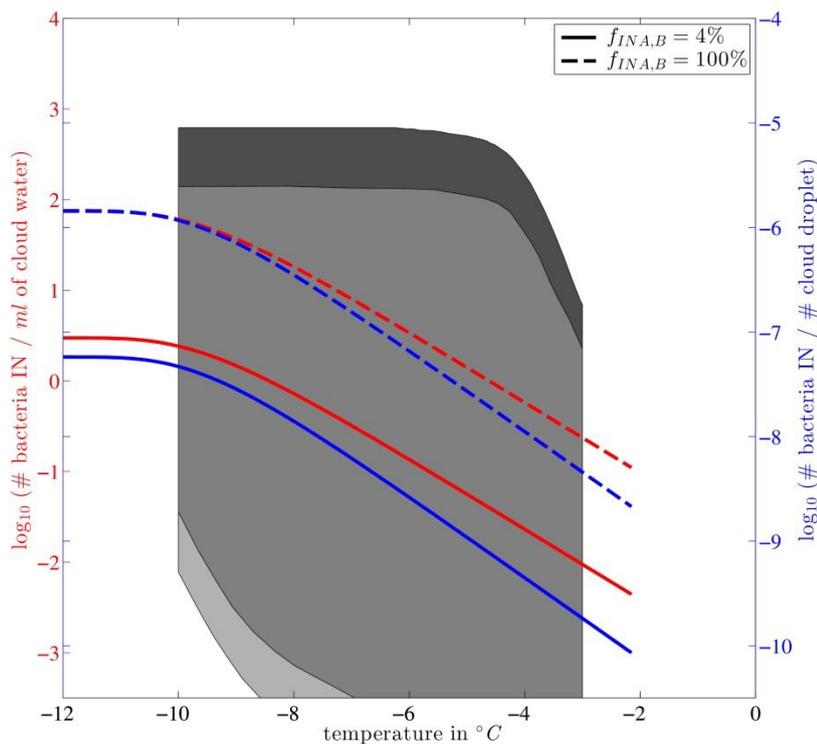


Abbildung 5-9: Konzentration potentieller Bakterien-INA pro Wolkenwassergehalt in mL^{-1} (rot, linke Ordinate) und pro Wolkentropfenanzahl (blau, rechte Ordinate) am Gitterpunkt des Puy de Dôme, zusammen mit dem abgeschätzten Bereich der Bakterien-INA pro Wolkenwassergehalt in mL^{-1} (linke Ordinate) und Wolkentropfenanzahl (rechte Ordinate) aus Joly et al. (2013) gegenüber der Temperatur in $^{\circ}\text{C}$.

Um die Simulationsergebnisse konsistent zu dem experimentellen Vorgehen in Joly et al. (2013) darzustellen, wird die simulierte Bakterienkonzentration am Gitterpunkt PdD auf die simulierte Werte von L_c oder N_c bezogen. Hierzu werden die Konzentrationen aus dem Level verwendet, das der tatsächlichen Höhe des Berges entspricht ($1465 \text{ m} \cong \text{Level 33}$). Auf die Bakterienkonzentration pro Wolkenwassergehalt oder Wolkentropfenanzahl wird daraufhin die in der vorliegenden Arbeit verwendete Parametrisierung der heterogenen Eisnukleation angewandt (Kapitel 3.3) und über die Simulationsdauer gemittelt. Die potentiell vorherrschende Konzentration von Bakterien-INA pro L_c oder N_c betragen $2,53 \text{ mL}^{-1}$ bzw. $4,91 \cdot 10^{-8} [\#/\#]$ bei -10°C ($f_{\text{INA},B} = 4\%$) (Abbildung 5-9). Der relativ starke Anstieg der Konzentration von Bakterien-INA in Joly et al. (2013) zwischen -3°C und -4°C wird durch die in der vorliegenden Arbeit verwendete Parametrisierung nicht wiedergegeben. Die aus der vorliegenden Modellsimulation berechneten Konzentrationen von Bakterien-INA steigen stetig und weniger steil zwischen -2°C und -11°C an. Die Konzentrationen liegen für

$f_{INA,B} = 100\%$ im Gegensatz zu $f_{INA,B} = 4\%$ entsprechend um einen Faktor 25 höher. Die simulierten Bakterien-IN ($f_{INA,B} = 100\%$) erreichen innerhalb von Wolken Konzentrationen in der Größenordnung von $\sim 10 \text{ mL}^{-1}$ pro L_c bzw. $\sim 1,6 \cdot 10^{-7}$ pro N_c . Im Vergleich zu Joly et al. (2013) befinden sich die simulierten IN-Konzentrationen in dem durch die Messwerte gegebenen Größenbereich.

5.4. Diagnostische Eiskeime von Bodenstaubpartikeln

Die Gesamtanzahlkonzentration der diagnostischen Bodenstaub-IN setzt sich aus der Summe der IN-Konzentration, berechnet aus allen drei Moden der Größenverteilung, zusammen. Für $n_s(T)$ nach Gleichung 3-5 wird die Aerosoloberfläche anhand des Median-durchmessers der Anzahlverteilung d_g verwendet. Die Bodenstaub-IN-Anzahlkonzentration ist als Mittelwert über die horizontale Ausdehnung des Modellgebietes und die Simulationsdauer im April 2008 als Vertikalprofil in Abbildung 5-10 dargestellt. Die Abbildung enthält zusätzlich die Vertikalprofile der mittleren Anzahlkonzentration von Bodenstaubpartikeln aus Abbildung 4-22 und das Vertikalprofil der Hintergrund-Mineralstaub-IN. Die Verteilung der Bodenstaub-IN mit der Höhe unterscheidet sich deutlich von dem Vertikalprofil der BIN, dominiert durch Bakterien-IN und Pilzsporen-IN, und entspricht mehr dem Vertikalprofil der Hintergrund-IN. Die Anzahlkonzentration von Bodenstaub-IN liegt etwa ein bis drei Größenordnungen niedriger als die der Hintergrund-IN, mit dem größeren Abstand zwischen 2 km und 4 km Höhe. Zwischen circa 2 km und 3 km Höhe liegt die mittlere Bodenstaub-IN-Konzentration im selben Größenbereich wie die mittlere Gesamt-BIN-Konzentration. Unterhalb dieses Höhenbereichs haben Bakterien-IN (und damit die Gesamt-BIN) die höhere mittlere Konzentration. Oberhalb des Höhenbereichs, ab etwa 3 km über dem Erdboden, ist die Konzentration der Bodenstaub-IN höher als die von BIN. Der oberhalb von 3 km eintretende Anstieg der mittleren Konzentration von Bodenstaub-IN mit der Höhe ist im Vertikalprofil der BIN nicht enthalten. In dem Level, das unbeeinflusst von Orografie einer Höhe von 6 km über NN entspräche, befindet sich im Vertikalprofil der horizontal und zeitlich gemittelten Konzentration der Bodenstaub-IN ein deutliches Maximum von $0,05 \text{ L}^{-1}$.

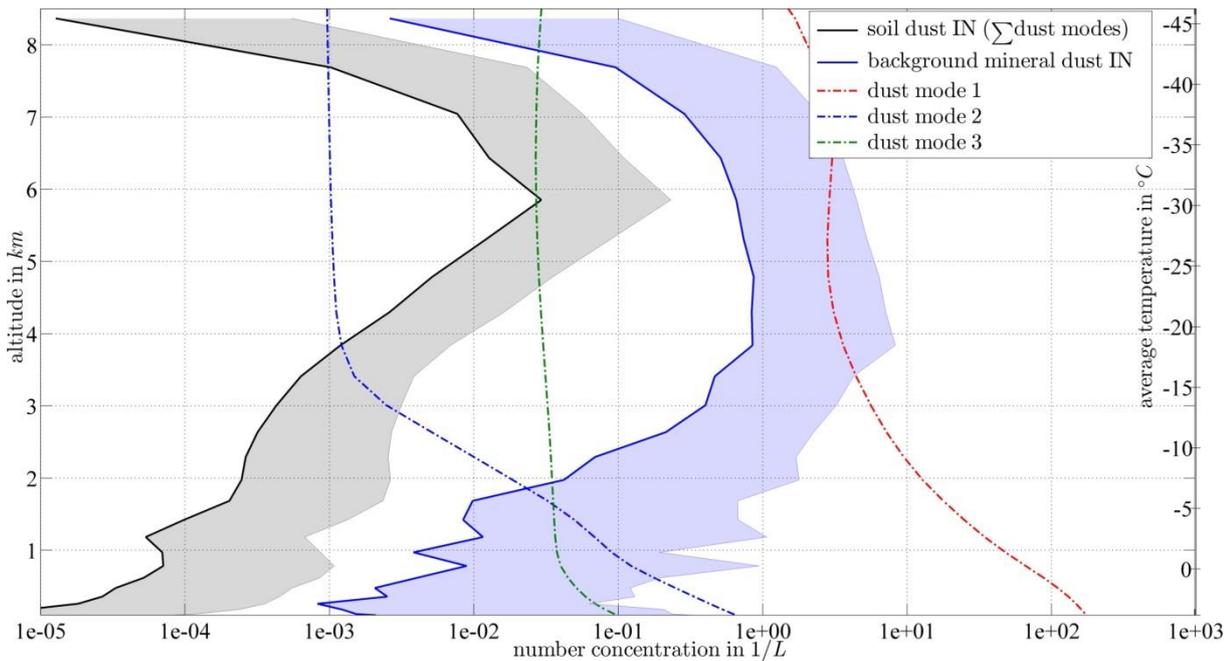


Abbildung 5-10: Vertikalprofil der horizontal und zeitlich mittleren IN-Anzahlkonzentration von Bodenstaub (inklusive positiver Standardabweichung) über die bewölkten und wolkenfreien Gebiete der kompletten Modelldomäne und mittlere Aerosolanzahlkonzentration der Bodenstaubpartikel für die drei Moden der Größenverteilung in L^{-1} .

Im Unterschied zu BIN ist die Konzentration der Bodenstaub-IN in den Schichten oberhalb des Maximums im Vertikalprofil nicht durch die Partikelkonzentration limitiert. Oberhalb von 7 km unterschreitet die mittlere Temperatur -38°C . Ab dort setzt im Modell die homogene anstelle der heterogenen Eisnukleation ein. Die mittlere Konzentration der Bodenstaub-IN fällt oberhalb von 7 km nicht direkt auf null, weil dort lediglich die mittlere Temperatur -38°C erreicht. In einigen Regionen des Simulationsgebietes wird diese Temperaturschwelle erst zwischen 8 km und 9 km Höhe erreicht.

Zusätzlich zum Vertikalprofil wird das Fehlen eines partikellimitierten Bereichs bei Bodenstaub-IN in einem 2D-Histogramm der IN-Konzentration gegenüber der Temperatur deutlich (Abbildung 5-11). Wie in Kapitel 5.2.2 erläutert ist die Eisnukleation durch die Partikelkonzentration limitiert, wenn die IN-Konzentration mit abnehmender Temperatur, und somit erhöhter Eiskeimaktivität, fällt. In dem 2D-Histogramm für Bodenstaub-IN nimmt die Konzentration linear mit abnehmender Temperatur zu. Die Steigung ist in etwa parallel zur aerosolunabhängigen Parametrisierung von Meyers et al. (1992). Die maximale Bodenstaub-IN-Konzentration pro Temperaturschritt liegt weniger als eine Größenordnung unterhalb der Parametrisierung von Meyers et al. (1992) und ist ähnlich zu Literaturangaben der durchschnittlichen Konzentrationen von Mineralstaub-IN (nach DeMott et al., 2010). Die Häufigkeitsverteilung der IN-Konzentration pro Temperaturabschnitt zeigt, besonders bei hohen Temperaturen, zwei Maxima. Diese Charakteristik wird durch die in drei Moden aufgeteilte Größenverteilung des Bodenstaubs hervorgerufen. Zwei Größenmoden sind dabei aufgrund ähnlicher Konzentrationen in einem Häufigkeitsbereich vereint.

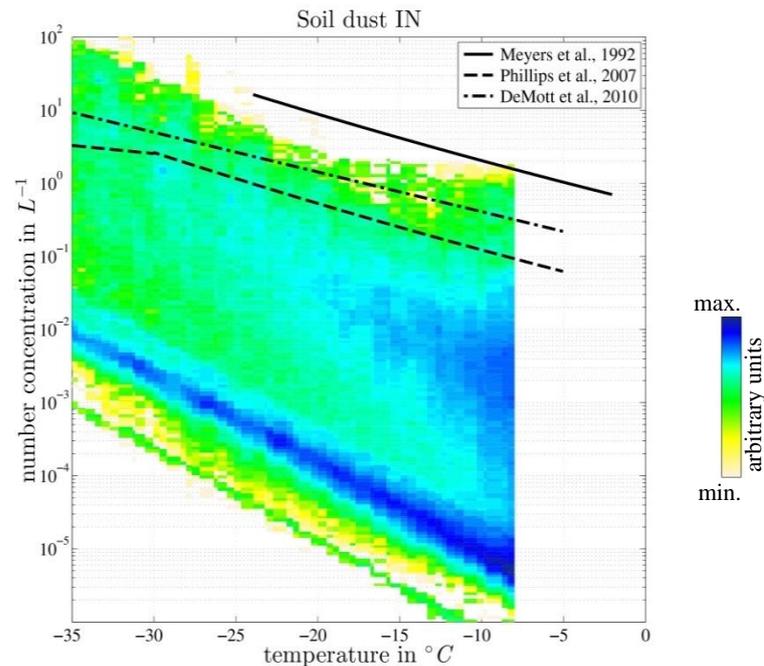


Abbildung 5-11: 2D-Histogramm von Temperatur in $^{\circ}\text{C}$ und IN-Konzentration in L^{-1} für Bodenstaub-IN.

Die temperaturabhängige Maximalkonzentration von Bodenstaub-IN ist im Vergleich zu BIN ($f_{INA,B} = 100\%$) stets höher. Bei -8°C treten vereinzelt Bodenstaub-IN-Konzentrationen von $1 L^{-1}$ auf, häufig sind Konzentrationen zwischen $0,01 L^{-1}$ und $0,1 L^{-1}$. Bei derselben Temperatur beträgt die maximale BIN-Konzentration $0,2 L^{-1}$, häufiger sind jedoch Werte von $0,01 L^{-1}$ (Abbildungen 5-3 und 5-11). Somit ist bei -8°C , bei maximaler BIN-Konzentration, die Konzentration der Bodenstaub-IN ähnlich hoch bzw. geringfügig höher. Unterhalb von -8°C nimmt die Konzentration der BIN ab und die der Bodenstaub-IN zu. Ursache ist eine unterschiedliche vertikale Verteilung der Aerosolkonzentration. Im Bereich $T > -15^{\circ}\text{C}$ ist die Eisnukleation von Partikeln mit organischen und primärbiologischen Komponenten vermutlich am einflussreichsten. Zwischen -15°C und -8°C ist, wie ein Vergleich der Abbildungen 5-3 und 5-11 zeigt, die Konzentration der Bodenstaub-IN etwas höher als die der BIN. Oberhalb von -8°C ist die in der vorliegenden Arbeit verwendete Parametrisierung zur Eisnukleation von Bodenstaub nicht definiert, weil keine Laboruntersuchungen oberhalb dieser Temperatur vorliegen. In diesem Bereich sind Bakterien in den gezeigten Simulationen die einzig aktiven IN.

Die horizontale Verteilung der Bodenstaub-IN entspricht in etwa der Verteilung der Bodenstaubpartikel. Abbildung 5-12 zeigt die horizontal verteilte, über die komplette Luftsäule vertikal integrierte Konzentration der Bodenstaub-IN. Ein weit ausgedehntes Gebiet mit hohen IN-Konzentrationen zwischen $10^4 m^{-2}$ und $>10^6 m^{-2}$ pro Luftsäule befindet sich im östlichen Teil der Modelldomäne. In weiten Teilen des Modellgebietes sind die Konzentrationen zwischen $10^2 m^{-2}$ und $10^4 m^{-2}$ und damit zwei Größenordnungen über den vertikal integrierten BIN-Konzentrationen. Da in dem verwendeten Setup für Bodenstaub die Eisnukleation ab -8°C einsetzt, existieren deren IN häufig schon in den unteren Modellschichten, unterhalb von $2 km$ Höhe. Ein Versatz im Einsetzen der Eisnukleation ab einer

bestimmten Modellschicht, wie zwischen BIN und Mineralstaub-IN (Kapitel 5.2.3), ist nicht vorhanden.

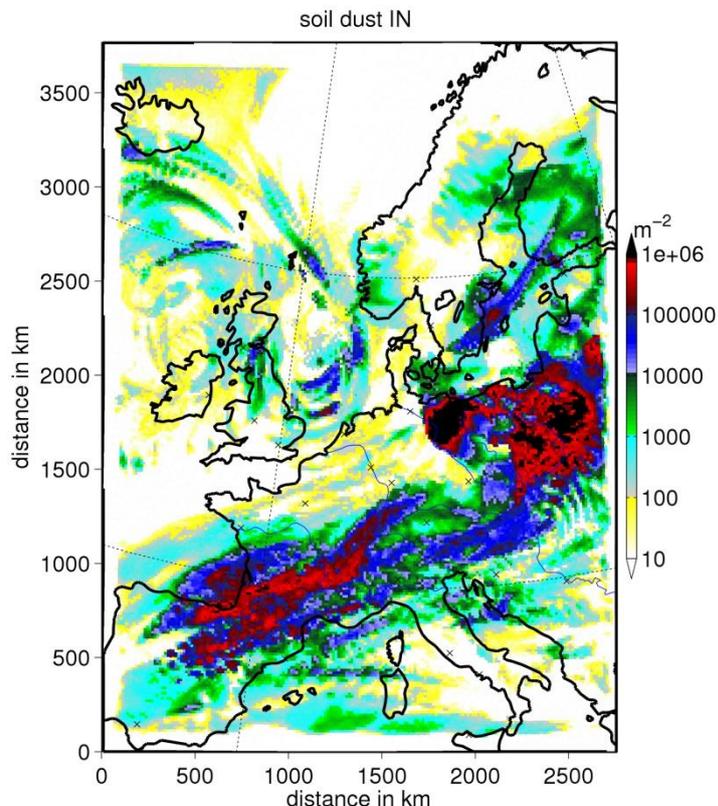


Abbildung 5-12: Vertikal integrierte Anzahlkonzentration von simulierten Bodenstaub-IN in m^{-2} als Mittelwert über den Zeitraum im April 2008.

5.5. Eispartikelkonzentration für verschiedene Szenarien

Anhand von zwei Szenarien (Abbildung 5-1) kann zwischen dem Einfluss von BIN und Mineralstaub-IN auf Mischphasenwolken differenziert werden. Zunächst ist die zeitliche Entwicklung der IN für die Szenarien mit und ohne prognostische BIN (Szenario 1 und 2) exemplarisch an einem Gitterpunkt einschließlich Lille, Frankreich ($50^{\circ} 37' N$; $2^{\circ} 16' E$), dargestellt (Abbildung 5-13). Anfang April 2008 ist dort die Lufttemperatur zwei Meter über dem Erdboden bei $\sim 0^{\circ}C$ und in einer Höhe von etwa $3 km$ bei $-15^{\circ}C$. Die vorhandenen flüssigen Wolkentropfen sind unterkühlt und könnten durch die Interaktion mit einem eisaktiven IN gefrieren. Die Zeitreihe der Anzahlkonzentration von BIN (Szenario 2) zeigt, dass diese hauptsächlich bis in eine Höhe von $2,5 km$ vorkommen. An dem gezeigten Gitterpunkt erreichen die BIN eine Konzentration von maximal $0,01 L^{-1}$. Die Anzahl an BIN ist maßgeblich durch die Partikelkonzentration limitiert und tritt aufgrund der angewandten

Parametrisierung der heterogenen Eisnukleation im Immersionsmode ausschließlich zusammen mit flüssigen Wolken auf.

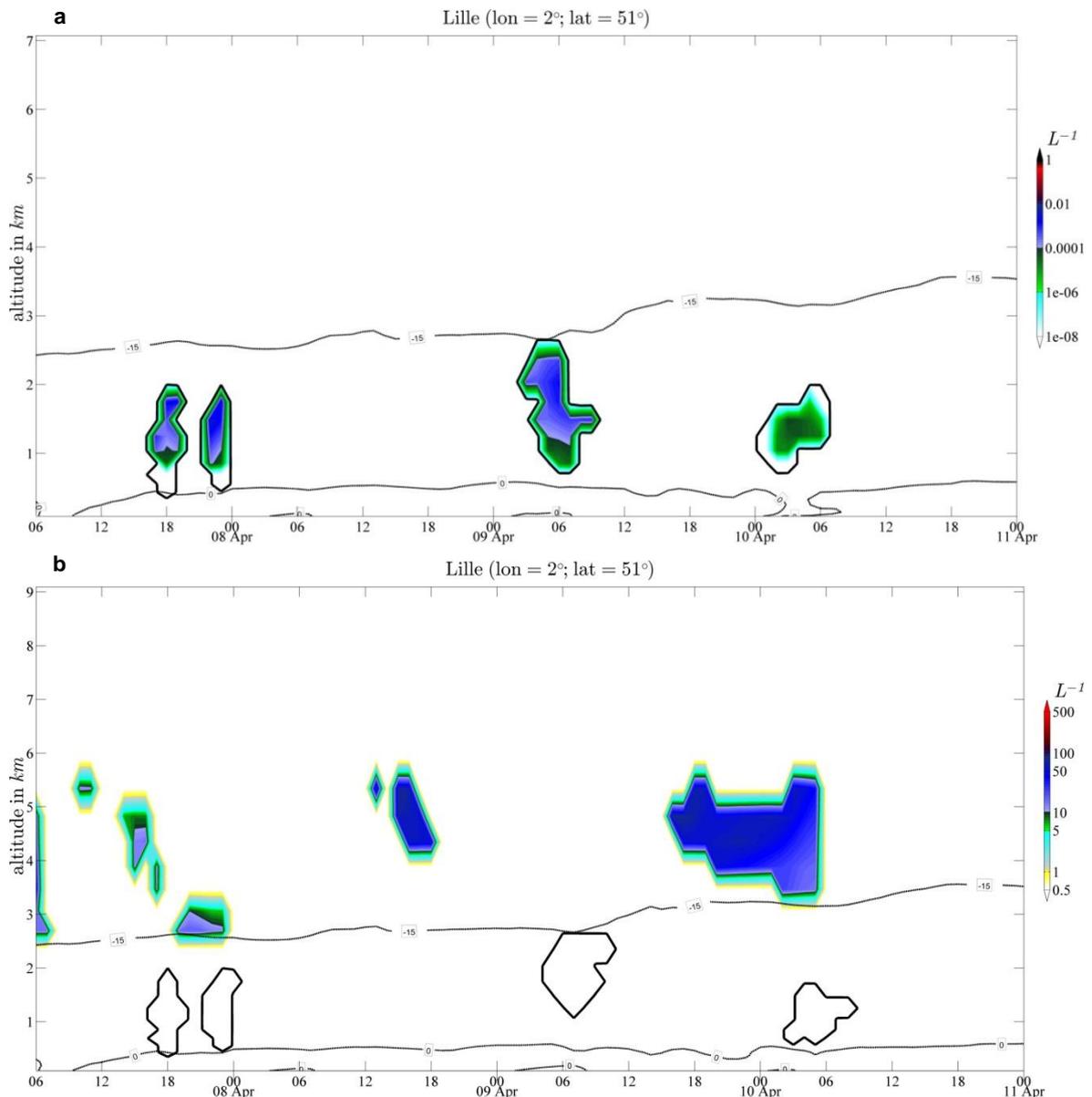


Abbildung 5-13: Anzahlkonzentration von (a) BIN (berechnet nach Szenario 2) und (b) Mineralstaub-IN (berechnet nach Szenario 1), farblich dargestellt in L^{-1} , als Zeitreihe über den Simulationszeitraum für den Gitterpunkt Lille, Frankreich ($50^{\circ} 37' N$; $2^{\circ} 16' E$). Die schwarzen Umrandungen maskieren flüssige Wolken anhand der Tropfenkonzentration N_c . Die Linien geben die Isothermen von $-15^{\circ}C$ und $0^{\circ}C$ an.

Alternativ zeigt die Entwicklung der Anzahlkonzentration von Mineralstaub-IN anhand von Szenario 1 (Abbildung 5-13b), dass diese ausschließlich ab einer Höhe oberhalb von $2,5 km$ vorkommen, bei $T < -15^{\circ}C$. Die Anzahlkonzentration der Mineralstaub-IN ist dabei stets höher als die von BIN in niedrigeren Modellschichten. Eine geringfügige Variation der Mineralstaub-IN zu der $-15^{\circ}C$ -Linie resultiert aus der zeitlichen Auflösung der Variablen, die einen stündlichen Mittelwert darstellen. Die IN sind hier nicht zusammen mit flüssigen Wolken dargestellt, weil die Depositionsnukleation meist gegenüber dem Immersions-

gefrieren flüssiger Tropfen dominiert. Der Flüssigwassergehalt unterhalb von 2,5 km variiert geringfügig zwischen beiden Szenarien.

Zusätzlich zu der beschriebenen Zeitreihe zeigt Abbildung 5-14 die IN-Konzentration über einen latitudinalen Querschnitt durch den gewählten Gitterpunkt am 9. April um 4 Uhr morgens. Ausschließlich BIN treten bis in eine Höhe von 3 km in dem gezeigten Abschnitt auf (Abbildung 5-14b ist absichtlich leer). Zusätzlich zu den BIN bei 2° geografischer Länge (Gitterpunkt bei Lille) treten BIN mit ähnlicher Konzentration ($10^{-3} L^{-1}$) etwa 220 km westlich davon auf. Erneut ist in dem Querschnitt ein geringfügiger Unterschied in der Konzentration von flüssigen Wolkentropfen zwischen den Szenarien vorhanden.

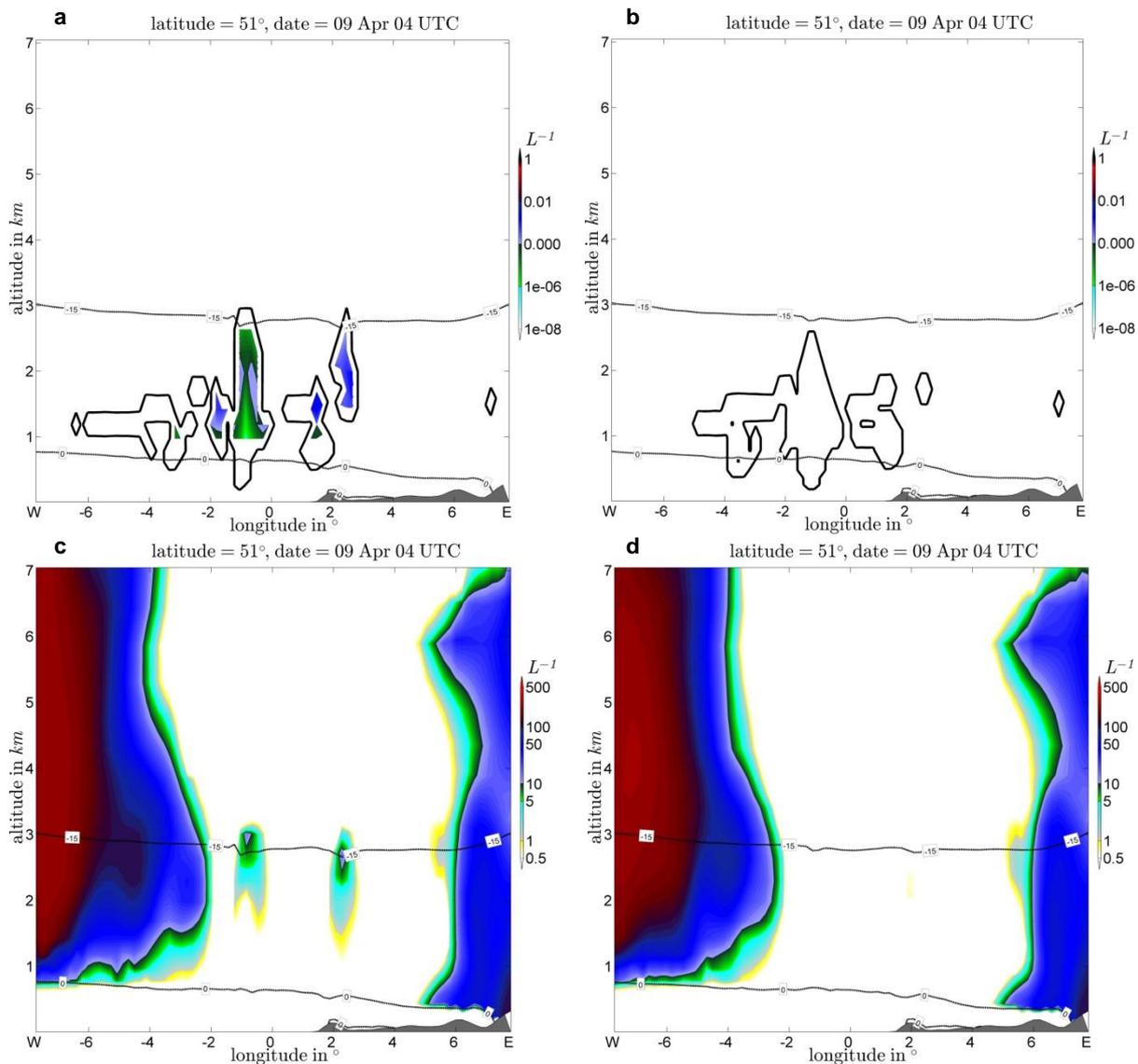


Abbildung 5-14: Anzahlkonzentration der (a) BIN, (b) Mineralstaub-IN, Eiskristalle nach (c) Szenario 2 und (d) Szenario 1 in L^{-1} entlang eines Querschnitts durch den Gitterpunkt Lille für den 9. April 4 Uhr UTC. Die Linien geben die Isotherme bei 0°C und -15°C an und die schwarzen Umrandungen in (a) und (b) maskieren flüssige Wolken anhand der Tropfenkonzentration N_c . Die grauen Flächen bilden die Orografie ab.

Eine Analyse der Eiskristallkonzentration am Gitterpunkt Lille (Abbildung 5-15) zeigt, dass, bedingt durch Sedimentation, Turbulenz und Diffusion, die vertikale Verteilung der Eiskristallanzahl in beiden Szenarien häufig bis zur 0°C -Grenze oder bis zum Erdboden herunterreicht. Die Eisnukleation, als zeitlich sehr schnell ablaufender Prozess, wird in der vorliegenden Arbeit als zeitunabhängig betrachtet. Allerdings können im verwendeten Modellsetup ohne Rückkopplung der heterogenen Eisnukleation auf die Aerosolanzahlkonzentration Partikel wiederholt als IN fungieren. Innerhalb eines einstündigen Zeitintervalls kann die heterogene Eisnukleation demnach häufiger stattfinden und so im Mittel $N_i > N_{IN}$ liefern, wenn die Senken durch Schmelzen oder Nassdeposition geringer als die Eisnukleation sind. Weitere Prozesse, die die Eiskristallanzahl erhöhen könnten, wie die Eismultiplikation nach Hallett und Mossop (1974), wurden in der hier gezeigten Simulation nicht berücksichtigt. Des Weiteren wird N_i im Bereich $T > -15^{\circ}\text{C}$ erhöht, indem Eiskristalle sedimentieren, die durch homogene und heterogene Eisnukleation in höheren Schichten entstanden sind. Ein Unterschied zwischen den beiden Szenarien ist anhand der absoluten Eiskristallkonzentrationen nur an einzelnen, besonders auffälligen Stellen auszumachen. In der Mitte der in Abbildung 5-15 gezeigten Zeitreihe, am Morgen des 9. April 2008, treten in Szenario 2 zusätzliche Eiskristalle auf, zeitgleich zu den BIN. Ein höherer, nach oben gerichteter Vertikalwind bestätigt, dass dort durch den einsetzenden Gefrierprozess latente Wärme freigesetzt und aufgrund der Temperaturdifferenz zur Umgebung angehoben wird. Im darauf folgenden Zeitschritt wird in diesem Szenario die Eiskristallkonzentration durch Sublimation reduziert. Diese Entwicklung von N_i wird durch die Analyse des Querschnitts durch die Wolke deutlich, bei dem kein Transport für das absinkende N_i der Zeitreihe gezeigt wird (Abbildung 5-14c und 5-14d). Das gezeigte Fallbeispiel zeigt somit auch, dass die meteorologischen Eigenschaften durch die heterogene Eisnukleation von BIN im Vergleich zum Hintergrundscenario geringfügig verändert werden können.

Die Anzahl- und Massenkonzentration der unterkühlten Wolkentropfen ist in Regionen mit $T > -15^{\circ}\text{C}$ meist mehrere Größenordnungen höher als die der Eispartikel. Aufgrund einer relativ geringen Konzentration von BIN können flüssige Tropfen und Eiskristalle über einen längeren Zeitraum parallel existieren. Wenige Eiskristalle nehmen lediglich einen Teil des Flüssigwasseranteils pro Simulationszeitschritt auf. Niederschlag tritt in dem Beispiel eines Gitterpunkts Lille als Regen zeitgleich mit flüssigen Wolken auf. Die abweichende Simulation von Eiskristallen und Wolkentropfen am 9. April resultiert in einem geringfügig zeitlich verschobenen Einsetzen des Niederschlags (Abbildung 5-15).

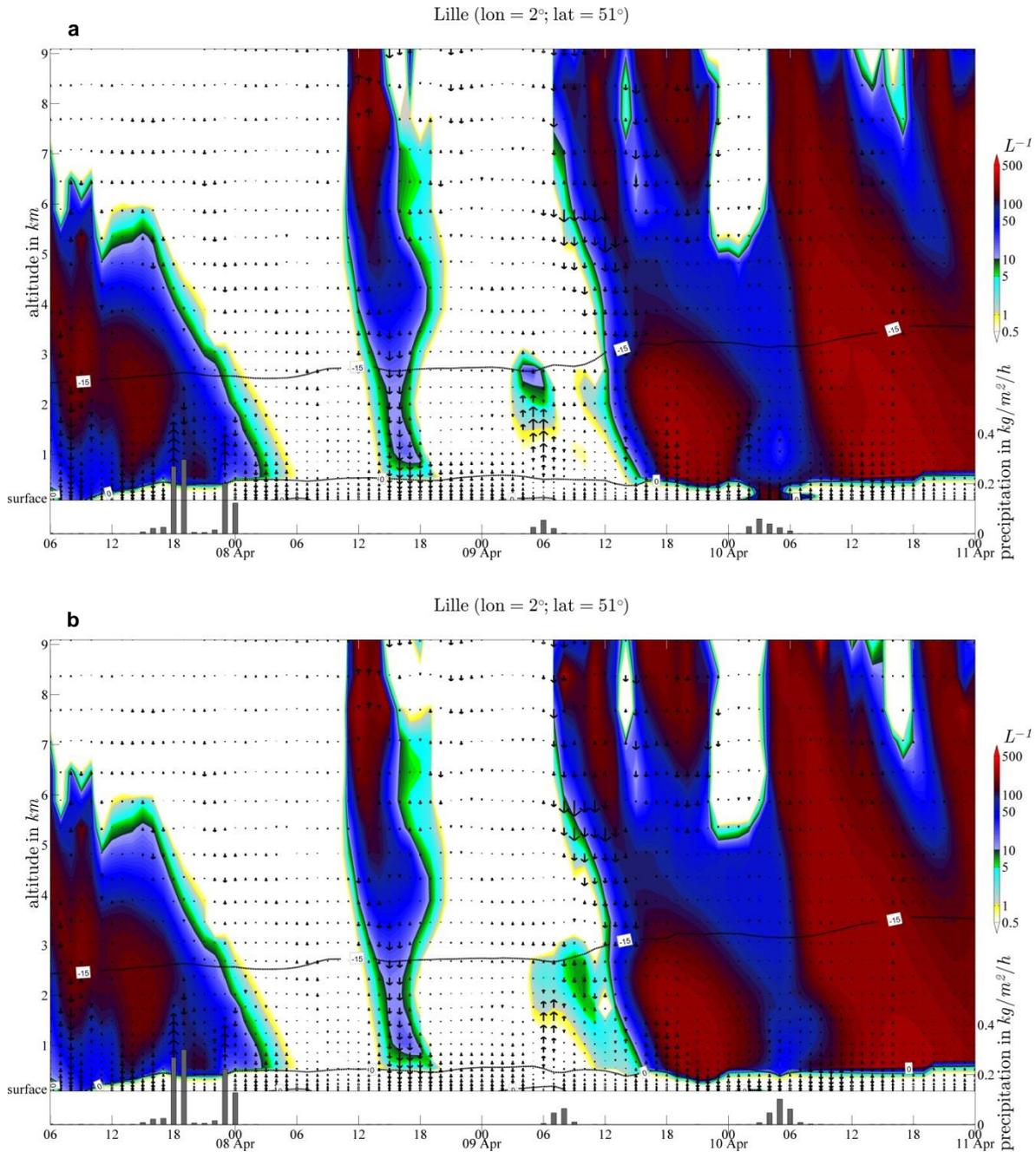


Abbildung 5-15: Eiskristallanzahl in L^{-1} nach (a) Szenario 2 und (b) Szenario 1 als Zeitreihe für einen Gitterpunkt Lille, Frankreich ($50^{\circ} 37' N$; $2^{\circ} 16' E$). Die Linien geben die Isotherme bei $0^{\circ}C$ und $-15^{\circ}C$ an. Die Balken geben den Niederschlag innerhalb von einer Stunde an, mit der Ordinate auf der rechten Seite. Die Pfeile stellen die vertikale Windrichtung und Windgeschwindigkeit dar.

Ein weiteres Beispiel für den Unterschied zwischen Szenario 1 und 2 ist in den Abbildungen 5-16 und 5-17 als Querschnitt entlang 46° geografischer Breite für den Morgen des 8. April 2008 gezeigt. Dieser Querschnitt verläuft im Schweizer Kanton Wallis durch die Alpen und zeichnet sich durch hohe Windgeschwindigkeiten aufgrund von orografischer Hebung aus. Die Verteilung der BIN (Abbildung 5-16) zeigt eine Maximalkonzentration von $1 L^{-1}$ auf der windabgewandten Seite eines Gipfels. Zudem werden häufig BIN in den hochreichenden Mischphasenwolken aktiviert, die aufgrund des Strömungsprofils am Westrand der Berge

entstehen. Die zusätzlichen BIN bewirken, dass im zentralen Bergmassiv die Gesamtkonzentration der Eiskristalle in Szenario 2 gegenüber Szenario 1 verändert ist (Abbildungen 5-17a und 5-17b). Über dem Westgipfel bei 7° geografischer Länge sind in Szenario 2 wesentlich weniger Eiskristalle vorhanden, über dem Ostgipfel bei 10° geografische Länge hingegen wesentlich mehr als in Szenario 1. Die Ausbreitung der PBAP, die zwischen den Gipfeln zu IN aktiviert werden, geschieht Richtung Osten und bewirkt dort eine verstärkte Eisbildung. Anhand des Beispiels wird verdeutlicht, dass mehrere Rückkopplungen und komplexe Abläufe zu veränderten meteorologischen und mikrophysikalischen Unterschieden zwischen beiden Szenarien führen. Diese Veränderungen können nicht immer eindeutig auf die heterogene Eisnukleation von BIN zurückgeführt werden.

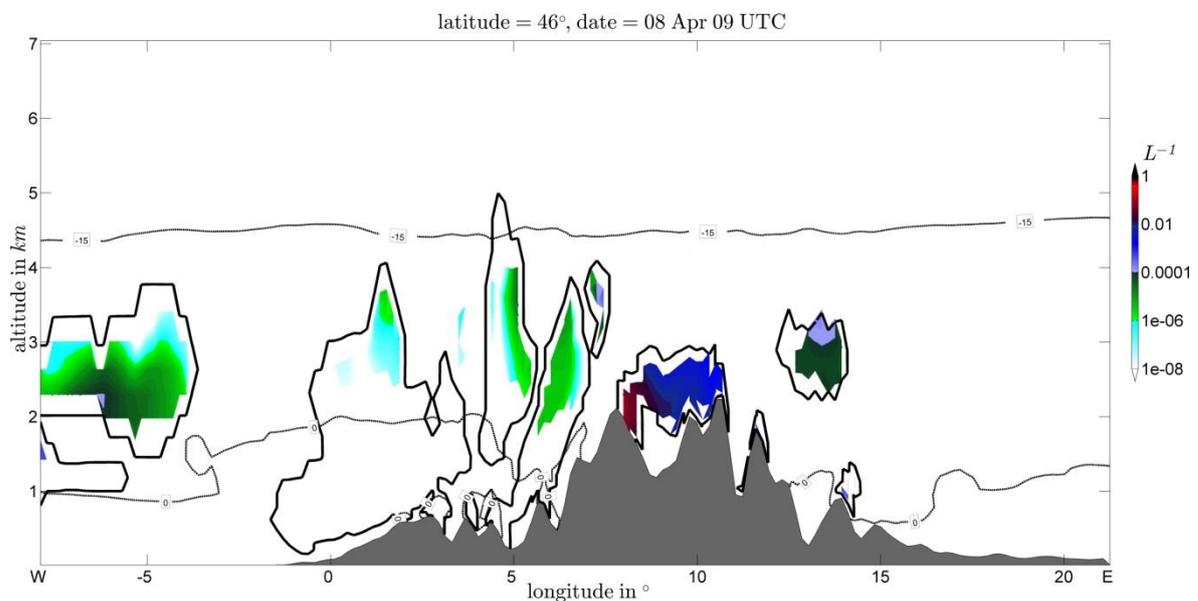


Abbildung 5-16: Anzahlkonzentration der BIN in L^{-1} für einen Querschnitt entlang 46° geografischer Breite am 8. April 9 Uhr UTC. Die schwarzen Umrandungen maskieren flüssige Wolken anhand der Tropfenkonzentration. Die Linien geben die Isotherme bei 0°C und -15°C an. Die grauen Flächen bilden die Orografie ab.

Die gezeigten Beispiele stellen auffällige Veränderungen zwischen den Szenarien mit und ohne BIN dar. Die Unterschiede der absoluten Eiskristallkonzentration werden nur bei Abweichungen um eine oder mehrere Größenordnungen deutlich. Daher gibt die in Abbildung 5-17c dargestellte Differenz der Eiskristallkonzentration ΔN_i zwischen den Szenarien eine geeignetere Aussage über die Veränderung der Wolkencharakteristik aufgrund von BIN wieder. Die beiden Wolkenformationen über den Berggipfeln (bei 7° und 10° geografischer Länge) zeigen große relative Konzentrationsunterschiede der Eiskristallkonzentration von bis zu $100 L^{-1}$. Der deutlichste Unterschied tritt jeweils unterhalb von $4,5 \text{ km}$ Höhe bei $T > -15^\circ\text{C}$ ein. Dies ist ein Indiz dafür, dass BIN ein früheres Gefrieren von Wolkentropfen in einem aufsteigenden, sich abkühlenden Luftpaket bewirken können.

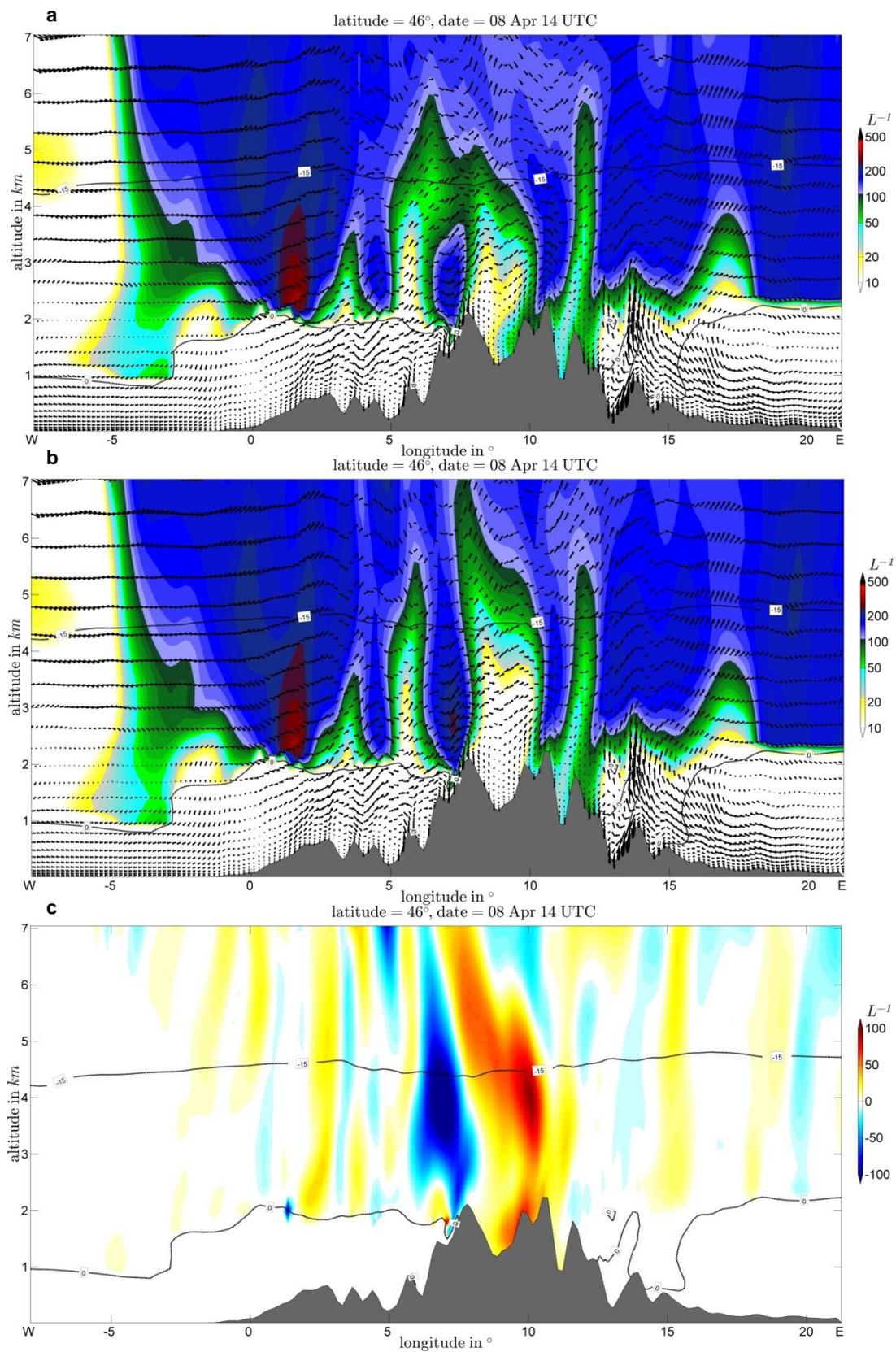


Abbildung 5-17: Eiskristallanzahlkonzentration N_i nach (a) Szenario 2 und (b) Szenario 1 sowie (c) die Differenz der Eiskristallanzahl ΔN_i zwischen beiden Szenarien in L^{-1} für einen Querschnitt entlang 46° geografischer Breite am 8. April 14 Uhr UTC. Die Linien geben die Isotherme bei 0°C und -15°C an und die Pfeile stellen die u - und w -Komponente des Windvektors (w mit 100 skaliert) dar. Die grauen Flächen bilden die Orographie ab.

Um den Einfluss der BIN auf den Niederschlag zu verdeutlichen, ist die Differenz der Anzahlkonzentration von Schneekristallen zwischen beiden Szenarien berechnet (Abbildung 5-18). Die unterschiedliche Verteilung der IN zwischen den Szenarien bewirkt eine Abweichung in der Verteilung der Niederschlagspartikel, insbesondere der Schneepartikel. Unterhalb der Isothermen bei -15°C (bei etwa $4,3\text{ km}$ Höhe) kommen ausschließlich BIN in Szenario 2 vor. Im Bereich einer deutlichen Zunahme von Schneepartikeln sind selbst oberhalb von -15°C keine Mineralstaub-IN vorhanden. Hier begünstigen die BIN die Entstehung von Schneefall. Dieses Verhalten deutet darauf hin, dass BIN zu einer effektiveren Vereisung der Wolke beitragen und so die Niederschlagseffizienz erhöhen (glaciation indirect aerosol effect, Lohmann und Feichter, 2005). Der Effekt tritt nur vereinzelt in den Modellsimulationen auf.

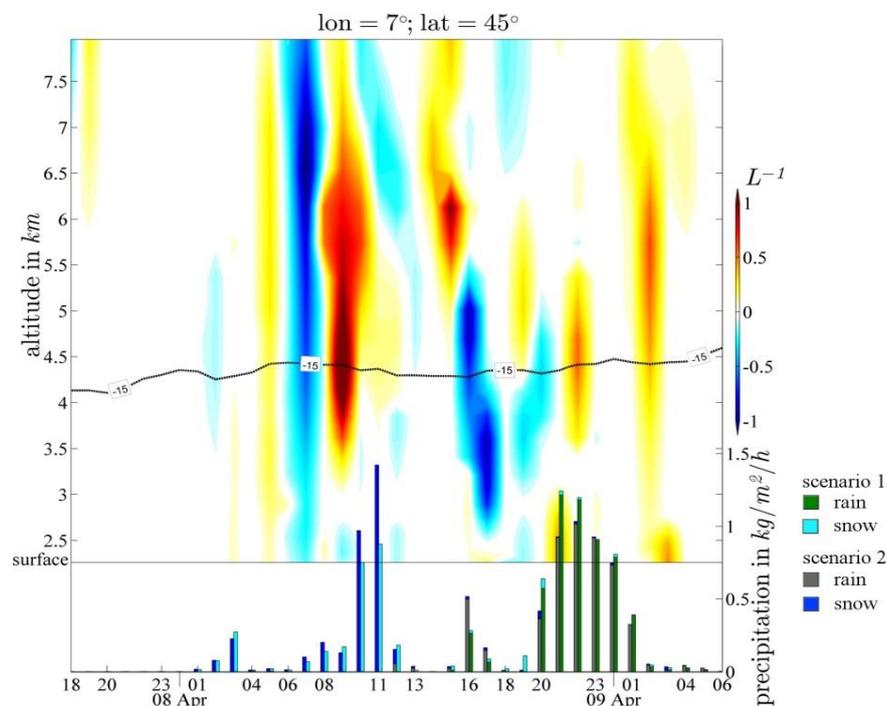


Abbildung 5-18: Differenz der Anzahlkonzentration von Schneekristallen zwischen beiden Szenarien in L^{-1} für eine Zeitreihe an einem Gitterpunkt in den französischen Alpen. Die Linie gibt die Isotherme bei -15°C an. Die Balken geben den Niederschlag für beide Szenarien innerhalb von einer Stunde an, mit der Ordinate auf der rechten Seite.

Anhand von Abbildung 5-17c kann verdeutlicht werden, dass die Veränderungen der Eiskristallkonzentration N_i , und damit der Wolkencharakteristik, mit einer Differenz der Konzentration zwischen beiden Szenarien, aufgrund der geringen Unterschiede von N_i , für eine Analyse geeigneter ist. Die ausgewählten Abschnitte zeigen keinen eindeutigen Trend, weshalb keine Beeinflussung durch die BIN in eine bestimmte Richtung festzustellen ist. Daher zeigt Abbildung 5-19 die mittleren Veränderungen von N_i aufgrund von zusätzlichen BIN. Dazu wird pro Gitterpunkt und Zeitschritt des Modells die Differenz zwischen N_i beider Szenarien (2 minus 1) gebildet und als Vertikalprofil dargestellt. Allerdings bewirkt die Stauchung der Modelllevel durch die Orografie, dass einem Level verschiedene Höhen über NN zugewiesen werden und diese somit unterschiedliche Temperaturen besitzen. Merkliche

Abweichungen von der mittleren Höhe eines Levels treten insbesondere in den unteren Levels auf (Kapitel 2.1.2). Daher bezieht sich der folgende Vergleich inklusive der darin berechneten Differenz lediglich auf einen ausgewählten horizontalen Abschnitt. Dieser befindet sich in der Mitte der Domäne und umschließt einen hinreichen großen Bereich ohne merkliche Beeinträchtigung durch Orografie (Abbildung 2-2). Als zeitliche Begrenzung wurden die ersten vier Tage der Simulation verwendet, nach einem Spin-off von sechs Stunden.

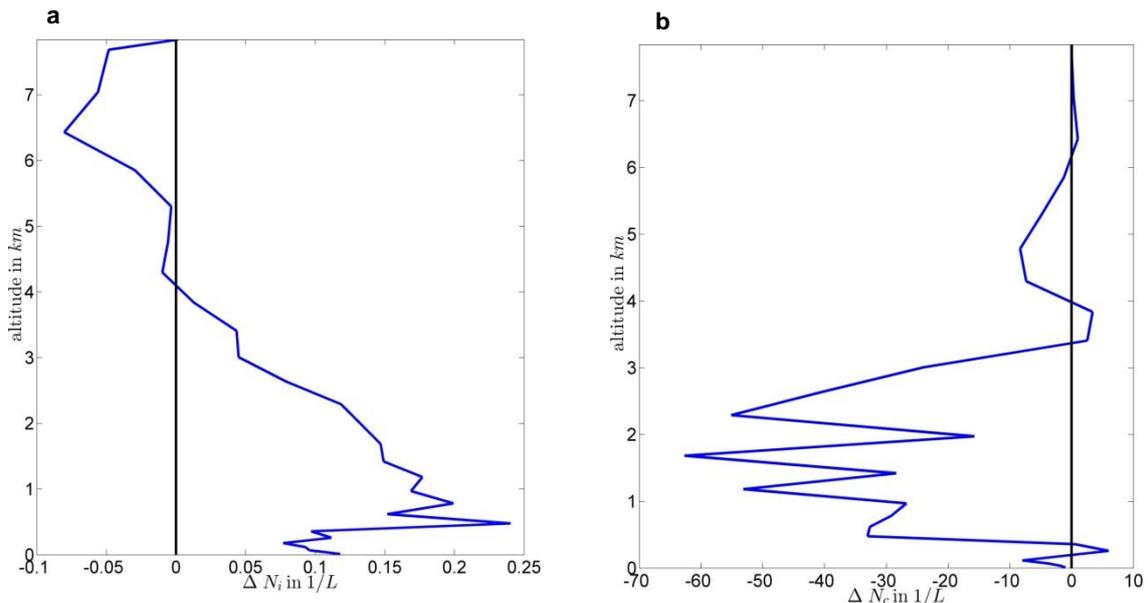


Abbildung 5-19: Vertikalprofil der (a) Eiskristall- (ΔN_i) und (b) Tropfenanzahldifferenzen ΔN_c in L^{-1} zwischen den Szenarien 2 und 1 als Mittelwert über einen Ausschnitt der Modelldomäne und über die ersten vier Tage der Simulation.

Eine Vielzahl von Rückkopplungsmechanismen und indirekten, nichtlinearen Effekten tritt durch die Veränderung aufgrund von zusätzlichen IN ein. Entgegen einem linearen System kann gemäß Nicolis und Prigogine (1989) die kombinierte Veränderung durch zwei unterschiedlichen Ursachen in einem komplexen, nichtlinearen System nicht durch die Überlagerung der einzelnen Ursachen wiedergegeben werden. So zeigt das Vertikalprofil der Differenzen aus beiden Szenarien (2 minus 1) keine additive Zunahme von N_i in demselben Umfang wie die Konzentration der hinzugefügten BIN (mittlere Konzentration von $10^{-4} L^{-1}$) (Abbildungen 5-2 und 5-19a). Vielmehr formieren sich zwei Höhenbereiche mit (i) einer deutlichen Zunahme der mittleren N_i zwischen der untersten Modellschicht und 4 km Höhe und (ii) einer weniger ausgeprägten aber eindeutigen Abnahme der mittleren N_i oberhalb davon, zwischen 4 km und 8 km. Die maximale Differenz in einer Höhe von 0,5 km liegt bei $0,24 L^{-1}$ und übersteigt die mittlere Konzentration von BIN ($10^{-4} L^{-1}$) in dieser Höhe. Hier kommt zusammen, dass sowohl zusätzliche Eiskristalle aufgrund eines erhöhten effektiven Durchmessers D_i (Abbildung 5-20b) in diese Modellschichten sedimentieren als auch zusätzlich in Szenario 2 einige Gitterpunkte unterhalb von 4 km Höhe Eiskristalle aufgrund der heterogenen Eisnukleation von BIN enthalten, die in Szenario 1 eisfrei ($N_i = 0$) sind. Dem

gegenüberstehend hat die N_i -Differenz zwischen den Szenarien ein Minimum von $-0,08 L^{-1}$ bei $6,4 km$ Höhe. In dieser Schicht machen BIN in einer Mischphasenwolke meist nur einen sehr geringen Teil der Gesamt-IN aus. Dort tritt ein indirekter Einfluss ein, indem zusätzliche Eiskristalle durch die Eisnukleation der BIN im unteren Teil einer Wolke mehr Wasserdampf binden, die weiter oben nicht mehr für die heterogene Eisnukleation von Mineralstaub-IN oder für die homogene Eisnukleation zur Verfügung stehen. Dieser indirekte Effekt wird anhand der Konzentrationsänderung von Wolkentropfen N_c deutlich. Die Differenz des mittleren N_c zwischen beiden Szenarien, nach denselben Kriterien wie für die Differenz von N_i , ist in Abbildung 5-19b dargestellt. Hier tritt eine deutliche Verringerung des mittleren N_c durch zusätzliche BIN zwischen der untersten Modellschicht und $3,5 km$ Höhe ein. Der Höhenbereich der N_c -Abnahme deckt sich somit sehr gut mit der N_i -Zunahme durch BIN in Szenario 2.

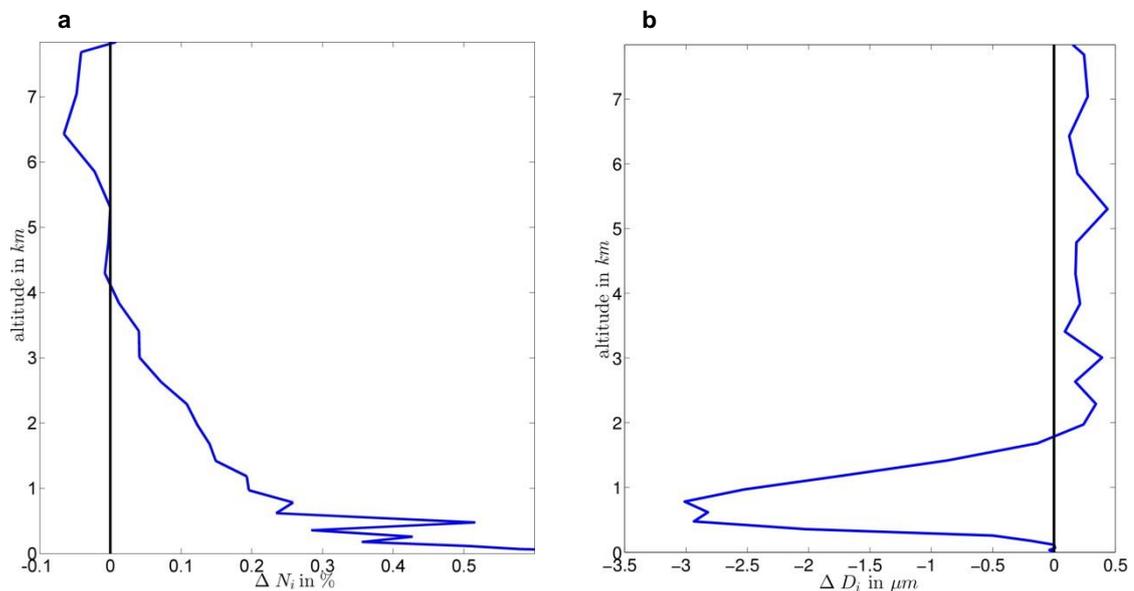


Abbildung 5-20: Vertikalprofil der (a) relativen Eiskristalldifferenz $\Delta N_i/N_i$ und (b) Differenz des effektiven Eiskristalldurchmessers ΔD_i als Mittelwert über einen Ausschnitt der Modelldomäne und über die ersten vier Tage der Simulation.

Wird die ΔN_i in Bezug zu der absoluten Eiskristallkonzentration (von Szenario 1) gesetzt, kann eine relative Änderung der mittleren N_i berechnet werden (Abbildung 5-20a). Die Kriterien für die relative Differenz beziehen sich erneut auf einen Ausschnitt der Modelldomäne, um Stauchungen durch die Orografie zu vermeiden. Das Vertikalprofil der mittleren, relativen N_i -Differenz unterscheidet sich geringfügig von dem Vertikalprofil der absoluten N_i -Differenz. Der Bereich der N_i -Zunahme von Szenario 1 zu Szenario 2 bis in $4 km$ Höhe ist im Vergleich zur Abnahme wesentlich stärker ausgeprägt. Die größte Zunahme der relativen N_i -Differenz tritt in der untersten Modellschicht ein, wo das mittlere N_i im Allgemeinen am geringsten ist. Das Maximum in der N_i -Differenz beträgt dort lediglich 0,6%. Im oberen Bereich, über $4 km$ Höhe, ist der relative Unterschied aufgrund der höheren Eiskristallkonzentration geringer als -0,1%.

Die Veränderung der Eiskristallkonzentration zwischen beiden Szenarien bewirkt, dass der vorhandene Eiswasseranteil L_i auf eine unterschiedlich hohe Anzahl an Eiskristallen N_i verteilt wird. Dadurch haben die Eiskristalle in den Szenarien einen anderen effektiven Durchmesser D_i . Die Differenz des mittleren D_i zwischen beiden Szenarien ist in einem Vertikalprofil in Abbildung 5-20b gezeigt. Ähnlich der Änderung des relativen, mittleren N_i in Abbildung 5-20a besteht ein Unterschied zwischen den Szenarien hauptsächlich unterhalb von 4 km Höhe. In dem kombinierten Szenario 2 ist der mittlere D_i in der Modellschicht, die bei ebener Orografie 1 km Höhe zugewiesen werden kann, 3 μm geringer als im Szenario 1 ohne BIN.

Die Unterschiede zwischen beiden Szenarien können nur teilweise auf einen direkten Einfluss der BIN durch die heterogene Eisnukleation zurückgeführt werden. Vielmehr wird deutlich, dass meteorologische und mikrophysikalische Zustände, wie Temperatur, Vertikalwind, Eisübersättigung oder Wolkentropfenkonzentration, leicht variieren, wenn zusätzlich zur Eisnukleation in Szenario 1 weitere Wolkentropfen durch BIN in Szenario 2 gefrieren. Mit einem einzigen Vergleich zweier Modellszenarien kann allerdings nicht eindeutig begründet werden, ob BIN stets dieselbe Veränderung auslösen oder die hier zugrundeliegende meteorologische Situation nur eine bestimmte Beeinflussung durch BIN ermöglicht.

5.6. Zusammenführung der Ergebnisse

In Kapitel 5 wird der Einfluss von BIN auf Mischphasenwolken betrachtet. Ausgehend von den zeitlich und räumlich verteilten PBAP-Konzentrationen aus Kapitel 4 und den temperaturabhängigen Parametrisierungen zur Eisnukleation einzelner PBAP aus Kapitel 3 wird die Anzahlkonzentration der BIN abgeleitet. Die verschiedenen Charakteristika der heterogenen Eisnukleation einzelner PBAP werden an einem Vertikalprofil der mittleren diagnostischen IN-Konzentration und an einem 2D-Histogramm der Häufigkeitsverteilung von Konzentration gegenüber Temperatur gezeigt. Anhand des Vertikalprofils wird deutlich, dass Bakterien-IN und Pollen-IN innerhalb der untersten 4 km ihre höchsten Konzentrationen aufweisen. Die Konzentrationen von Bakterien-IN sind im Mittel in jeder Modellschicht höher als die von Pollen-IN. Mit der verwendeten Parametrisierung für die heterogene Eisnukleation von Pilzsporen-IN treten diese lediglich oberhalb von 4 km Höhe auf und stellen bei etwa 7 km Höhe den höchsten Anteil der BIN dar. Die Analyse der 2D-Histogramme zeigt, dass Bakterien-IN und Pilzsporen-IN ein deutliches Konzentrationsmaximum bei einer bestimmten Temperatur haben, wohingegen Pollen-IN über den gesamten Temperaturbereich vergleichsweise konstante Konzentrationen haben. Über den Temperaturbereich von -2°C bis -35°C teilen sich die dominanten BIN in unterschiedliche Bereiche auf. Zwischen -2°C und -13°C sind meist ausschließlich Bakterien-IN aktiv und erreichen bei -9°C eine maximale Konzentration von $10^{-2} L^{-1}$ ($0,1 L^{-1}$ bei $f_{INA,B} = 100\%$). Ab etwa -10°C bis -20°C ist der Anteil der Bakterien-IN rückläufig und Pollen-IN haben teilweise

den höchsten Anteil an der Gesamtkonzentration der BIN. Unter -28°C nimmt der Anteil an Pilzsporen-IN deutlich zu und dominiert ab -30°C gegenüber anderen BIN. Zusammenfassend deutet diese Aufteilung an, dass in nahezu dem gesamten Temperaturbereich verschiedene BIN ihren Beitrag zu der Gesamtkonzentration der BIN beitragen. Durchgängig ist deren Konzentration allerdings vergleichsweise niedrig im Bezug zu Werten von aerosolunabhängigen Parametrisierungen oder simulierten Mineralstaub-IN unter Hintergrundbedingungen. Mineralstaub-IN sind allerdings erst ab etwa -15°C eisaktiv ist, wodurch BIN in dem Bereich mit $T > -15^{\circ}\text{C}$ selbst bei vergleichsweise niedrigen Konzentrationen einen relevanten Beitrag zur Eisnukleation in Mischphasenwolken liefern können.

Die vertikal integrierte Konzentration der diagnostischen IN weist für den betrachteten Zeitraum horizontal verteilt die höchsten Werte über Zentraleuropa und im Bereich des Tiefdruckgebietes über der Nordsee auf. Diese Verteilung ist stark durch das Vorkommen von Mischphasenwolken in dem verwendeten Zeitraum bestimmt. Ein Großteil der diagnostischen, in Wolken enthaltenen BIN konzentriert sich in der gezeigten Modellsimulation in den untersten Modellschichten bis zu einer mittleren Höhe von 2 km . In diesem Höhenbereich treten diagnostische Mineralstaub-IN nur vereinzelt auf, wenn die Orografie die geländefolgenden Höhenkoordinaten verschiebt und die unteren Modellschichten kälter als -15°C sind.

Im Vergleich zu Messungen der Bakterienkonzentration in Wolkenwasser (Joly et al., 2013) deckt die anhand der simulierten Bakterienkonzentration berechneten IN-Konzentration bezogen auf L_c für den Standort PdD den aus Messungen abgeleiteten Größenbereich ab. Allerdings zeigen die simulierten IN-Konzentrationen einen weniger steilen Anstieg zwischen -3°C und -10°C als die Messwerte.

In Analysen einzelner Regionen von in Wolken enthaltenen BIN und Mineralstaub-IN wird verdeutlicht, dass die höchsten vertikal verteilten BIN-Konzentrationen in unteren Modellschichten und damit im unteren Teil von Mischphasenwolken. Mineralstaub-IN treten hingegen, bedingt durch ein Temperaturlimit der Parametrisierung, lediglich in Wolkenteilen mit $T < -15^{\circ}\text{C}$ auf. In der gezeigten Zeitreihe entspricht diese Temperaturgrenze einer Höhe von 3 km .

Wirken PBAP als prognostische IN, muss zwischen unterschiedlichen Szenarien differenziert werden. In Szenario 1 stellen ausschließlich Mineralstaub-IN, mit einer konstanten Hintergrundkonzentration von Mineralstaub von 100 L^{-1} , mögliche heterogene IN dar und in Szenario 2 sind zusätzlich BIN vorhanden. Aufgrund des komplexen, nicht-linearen Verhaltens des Modells kann die Wolkeneiskonzentration von Szenario 1 nicht mit der Konzentration aus einem Szenario mit ausschließlich BIN addiert werden, um Szenario 2 zu entsprechen.

Im Vergleich beider Szenarien sind die absoluten Eiskristallkonzentrationen nahezu identisch und weichen nur vereinzelt voneinander ab. Eine hohe Konzentration von Mineral-

staub-IN im oberen Teil der Mischphasenwolken bewirken zusammen mit der homogenen Eisnukleation, dass dort Eiskristallkonzentrationen von $\sim 100 L^{-1}$ vorkommen. Diese Eiskristalle werden häufig durch Sedimentation und turbulente Diffusion in die unteren, unterkühlten Wolkenteile transportiert. Dort verhindern hohe Eiskristallkonzentrationen teilweise, dass BIN in geringer Konzentration zusätzliche Eiskristalle durch das Immersionsgefrieren bilden. In einem Querschnitt zeigt die Differenz der Eiskristallkonzentration beider Szenarien (2 minus 1) in Einzelfällen ausgeprägte Abweichungen in beide Richtungen. Damit kleinräumige Schwankungen der Differenzen nicht miteinbezogen werden, wurden räumliche und zeitliche Mittelwerte der Differenzen zwischen beiden Szenarien gebildet. Ein Vertikalprofil der Eiskristalldifferenz zeigt dabei die direkten und indirekten Einflüsse zusätzlicher BIN in unterschiedlichen Höhenbereichen. Unterhalb von 4 km bewirkt der direkte Einfluss, dass in Szenario 2 eine im Mittel höhere Eiskristallkonzentration vorhanden ist. In dem gleichen Höhenbereich ist die Anzahlkonzentration von Wolkentropfen in Szenario 2 wesentlich geringer als in Szenario 1. Oberhalb von 4 km ist die Differenz der Eiskristallkonzentration entgegengesetzt zu dem unteren Bereich. Der indirekte Einfluss von BIN bewirkt, dass weniger Flüssigwasser in den oberen Bereich transportiert wird und so die Eisnukleation dort in geringerem Umfang stattfinden kann.

Der hier gewählte Ausschnitt stellt lediglich eine bestimmte meteorologische Ausgangslage dar, der nur eine bestimmte Beeinflussung der Wolkencharakteristik wiedergibt. Daher ist das gezeigte Ergebnis nicht allgemeingültig. Ohne den Einfluss von BIN auf Wolken und Klima allerdings eindeutig zu klassifizieren lässt sich ein möglicher Feedback auf die PBAP-Emission nicht benennen. In einem möglichen Kreislauf, postuliert in Morris et al. (2008; 2014), können Organismen am Erdboden u.a. über veränderte Umgebungsbedingungen, beispielsweise aufgrund von zusätzlichem Niederschlag oder verändertem Wärmetransfer zwischen Erdboden und planetarer Grenzschicht, die Bioaktivität einiger Organismen antreiben und so die PBAP-Emission verstärken. Bei dem postulierten Kreislauf kommt hinzu, dass BPAP über den Niederschlag in andere Regionen transportiert werden können um dort mit der Biosphäre zu interagieren (Riffaud und Morris, 2002; Morris et al., 2007). Dieser Effekt wird in der vorliegenden Arbeit nicht betrachtet. Dennoch zeigt die vorliegende Arbeit, dass zwischen zwei Szenarien abweichende Wolkencharakteristika wiederum die PBAP-Emission beeinflussen können. Allerdings haben weder meteorologische Parameter noch PBAP-Emissionsraten eine gerichtete Veränderung zwischen beiden Szenarien, sondern variieren innerhalb des verwendeten Ausschnitts in beide Richtungen ohne einen eindeutigen Trend aufzuweisen.

6 Diskussion und Ausblick

Die vorliegenden Modellergebnisse basieren auf spezifischen Laborergebnissen zur Parametrisierung der Eisaktivität einzelner PBAP. Mithilfe von zwei Szenarien wird gezeigt, dass BIN lediglich einen geringen direkten Effekt über zusätzlich entstehende Eiskristalle auf Wolken haben. Darüber hinaus lässt sich in dem untersuchten Zeitraum ein indirekter Effekt beobachten, bei dem die heterogene Eisnukleation der BIN leicht veränderte meteorologische und mikrophysikalische Bedingungen liefert. Dadurch wird die Eiskristallkonzentration im oberen Teil der Wolke verringert.

Abweichungen der gezeigten PBAP-Konzentration zu Messungen und bisherigen Modellsimulationen

Generell sind die mittleren, bodennahen PBAP-Konzentrationen der vorliegenden Arbeit in guter Übereinstimmung zu bisherigen gemessenen und simulierten Ergebnissen. Bei Untersuchungen zum Einfluss von PBAP auf Wolken über die heterogene Eisnukleation unter realitätsnahen atmosphärischen Bedingungen stellen etwaig ungenau wiedergegebene atmosphärische PBAP-Konzentrationen eine mögliche Unsicherheit dar. Die hier gezeigten Simulationsergebnisse geben daher eine gute Beschreibung der PBAP-Konzentration für Europa wieder. Im Einzelnen konnte die simulierte Pollenkonzentration mit Stationsmessungen in der Schweiz überprüft werden. Die teilweise gute, andernfalls deutlich abweichende zeitliche Entwicklung der Tagesmittelwerte drückt aus, dass die Konzentrationen lokal sehr stark schwanken können und regional höchst variabel sind. Die detaillierte Emissionsparametrisierung bezogen auf die Landfraktion einzelner Baumarten pro Oberfläche muss für jede Art einzeln angepasst werden. Einen deutlichen Einfluss auf die Emission von Birkenpollen hat die verwendete Birkenverteilung, in der weder Aufforstung bzw. Abholzung noch andere, indirekte anthropogene Einflüsse berücksichtigt sind. Die Gesamtpollenkonzentration kann durch die Simulation einzelner Pollenarten lokal deutlich unterschätzt werden, obwohl die Simulation von Birkenpollen die Art mit den im Mittel höchsten Konzentrationen während des betrachteten Simulationszeitraums abdeckt. Mit Hinblick auf den Einfluss von Pollen auf die heterogene Eisnukleation in Mischphasenwolken ist die Betrachtung anderer, wenig eisaktiver Pollenarten nicht relevant.

Die für Europa simulierten Bakterienkonzentrationen der vorliegenden Arbeit decken den Größenbereich der auf globaler Skala simulierten Bakterienkonzentrationen (Burrows et al., 2009a; Hoose et al., 2010a; Sesartic et al., 2012) ab. Allerdings liegt die mittlere, bodennahe Bakterienkonzentration der Simulationen der vorliegenden Arbeit am unteren Rand des für Europa gegebenen Konzentrationsbereichs, so dass die Bakterienkonzentrationen der vorliegenden Arbeit die Angaben der GCM eher unterschätzen. Die Annahme, dass die

Konzentrationen von Bakterien im Mittel höher sind als die von Pilzsporen (Bauer et al., 2002; Després et al., 2012), konnte in den vorliegenden Modellanalysen nicht bestätigt werden. Die Konzentration von Pilzsporen ist direkt mit dem Verlauf von FBAP-Messungen verglichen und daran angepasst worden. Somit besteht die Vermutung, dass einer der beiden verwendeten Vergleiche – Bakterienkonzentrationen mit globalen Modellergebnissen oder Pilzsporenkonzentrationen mit lokal gemessenen FBAP-Konzentrationen – für die Simulationsergebnisse der vorliegenden Arbeit nicht geeignet ist. Ein möglicher Grund für eine Unterschätzung der Bakterienkonzentration in der COSMO-ART Simulation ist, dass die Emission über dem Meer nicht berücksichtigt ist, obwohl dieser Beitrag als Quelle für eisaktive Bakterien in Burrows et al. (2013) vermutet wurde.

Unsicherheiten von Literaturangaben zur Eisaktivität von PBAP

Unter Laborbedingungen ist die Gefriertemperatur von Tropfen mit BIN teilweise höher als die Temperatur, bei der üblicherweise die heterogene Eisnukleation von atmosphärisch häufig vorkommenden Partikeln einsetzt (Després et al., 2012; Hoose und Möhler, 2012; Murray et al., 2012). Der singuläre Ansatz für die heterogene Eisnukleation von unterkühlten Tropfen dient dabei als geeignete Beschreibung für die Nukleationseigenschaften der in der vorliegenden Arbeit verwendeten BIN. Unabhängig davon, ob der Gefrierprozess zeitabhängig auch bei konstanter Temperatur abläuft oder spontan beim Erreichen einer bestimmten Temperatur einsetzt (Niedermeier et al., 2010), zeigen die hier ermittelten Parametrisierungen für PBAP einen sehr ähnlichen Verlauf von f_{IN} gegenüber T zu Analysen mit stochastischem Ansatz unter Annahme einer üblichen Aufenthaltsdauer in dem LACIS Durchflussrohr von $t = 30$ s (Augustin et al., 2013; Hartmann et al., 2013).

Zahlreiche Analysen mit BIN bestätigen zwar die hohe Gefriertemperatur, zeigen zudem aber einen weiten Temperaturbereich zwischen unterschiedlichen PBAP oder verschiedenen Arten derselben PBAP (Tabelle 3-1). Unterschiede in den Ergebnissen resultieren zum einen aus einer variierenden, teilweise unbekanntem Anzahl an Partikeln pro Tropfen. Dadurch setzt der Gefriervorgang im Tropfen jedes Mal ein, sobald das eisaktivste PBAP innerhalb der Probe aktiviert wird. Zum anderen können sich Bakterien zu Agglomeraten verbinden und dadurch möglicherweise die Eisnukleation verändern. Zusätzlich zu den methodischen Unterschieden weisen selbst PBAP derselben Spezies, beispielsweise durch eine andere Art der Kultivierung, eine teilweise erheblich veränderte Eisaktivität auf (Després et al., 2012). Die Unterteilung in verschiedene Bakterienstämme ermöglicht eine genauere Unterscheidung, bedarf allerdings wesentlich mehr Messreihen um eine Aussage über eine Spezies oder eine Gattung zu treffen. Um den Effekt eines atmosphärischen Transports für Bakterien nachzustellen, können sie künstlich gealtert werden, indem sie bestimmten atmosphärischen Bedingungen ausgesetzt werden. Für verschiedene Bakterien der Spezies *Pseudomonas* hat der Alterungsprozess nur einen geringen Einfluss auf deren Eisaktivität (Schaupp, 2013).

Die Detektion von Bakterien-IN kann selektiv erfolgen, wenn einige Messmethoden die Luft- oder Wolkenproben zunächst sammeln und die enthaltenen Bakterien anschließend im Labor kultivieren. Die sich daraus entwickelnden Bakterienkolonien werden in CFU pro Luftvolumen oder Wolkenwassergehalt angegeben und können nicht zwangsläufig mit Gesamtbakterien in dieser Probe gleichgesetzt werden (Amato et al., 2007). Einige Bakterien, eventuell bestimmte Arten, überleben den Vorgang bis zur Offlineanalyse eher als andere.

Mögliche Ursachen für eine unterschiedliche Eisaktivität von PBAP

Eine hohe Eisaktivität kann einzelnen PBAP verschiedene Vorteile bringen. Im Allgemeinen wirkt die Eisnukleation an der äußeren Zellmembran als Zytoprotektion, weil das Kristallwachstum zunächst außerhalb der Zelle stattfindet. Hierbei lösen, beispielsweise bei Bakterien, Proteine in der Zellmembran die Eisnukleation aus (Jia und Davies, 2002; Garnham et al., 2011). Ähnlich aufgebaute Proteine dienen auch Insekten als Gefrierschutz (Graether et al., 2000). Zusätzlich bewirkt das Kristallwachstum an der Außenseite von Bakterien, die auf einer Blattoberfläche sitzen, dass die Zellwand der Blätter durch Frost beschädigt wird (Lindow et al., 1982). Die parasitären Bakterien erlangen dadurch Zugang zu den Nährstoffen der Blätter (Szyrmer und Zawadzki, 1997). In der vorliegenden Arbeit nicht berücksichtigt und für die atmosphärische Eisnukleation von PBAP relevant könnte das Auftreffen von Regentropfen auf der Blattoberfläche sein, wenn die darauf feststehenden PBAP abplatzen und daraufhin in Wolken als IN fungieren. Während und nach Regen kann durch diesen Effekt eine erhöhte FBAP-Konzentration in Bodennähe auftreten (Huffman et al., 2013), die mit der parallel dazu gemessenen IN-Konzentration korreliert (Tobo et al., 2013). Ein spontaner und rapider Anstieg der BIN-Konzentration durch das Abplatzen von Blattoberflächen ist bisher auch in keiner anderen Modellsimulation miteinbezogen worden, könnte allerdings einen erheblichen Effekt auf die Eisnukleation innerhalb der Wolke haben.

Für einige Pollen konnte gezeigt werden, dass einzelne Makromoleküle der äußeren Zellmembran die Eisnukleation auslösen (Pummer et al., 2012; Hartmann et al., 2013). Daher stimmt die Mediantemperatur, bei der 50% der Tropfen eines Sets gefroren sind, teilweise zwischen Suspensionen mit herausgefilterten und enthaltenen Pollen (u.a. Birkenpollen) überein. Durch Zersetzen einzelner Typen von Makromolekülen durch Enzyme konnten Polysaccharide als IN identifiziert werden (Pummer et al., 2012). Die Makromoleküle könnten ohne das komplette Pollenkorn in die Höhenschicht von Mischphasenwolken gelangen und dort als IN fungieren. Polysaccharide sind, verglichen mit den ganzen Pollenkörnern, wesentlich kleiner und einige Verbindungen sind stabil genug, um eine lange atmosphärische Verweildauer zu ermöglichen. So können spezifische Polysaccharide als Spurenstoffe für bestimmte Pollen dienen und selbst in Regionen auftreten, die zu dem Messzeitpunkt außerhalb der Pollensaison sind (Yttri et al., 2007). Suspendiert in Tropfen oder bei hoher relativer Feuchte zerplatzen Pollenkörner häufig und setzen so ihr Zytoplasma frei (Miguel et al., 2006). So können Makromoleküle in dem warmen, bodennahen Teil

einer Mischphasenwolke durch Kondensation in Wolkenröpfchen gelangen, wenn die Pollen als CCN fungieren (Pope, 2010).

Bodenstaub als zusätzlicher Beitrag unbekannter BIN

Mit der Simulation von Bodenstaub wird in der vorliegenden Arbeit der Beitrag von nicht spezifizierten Bakterien oder einzelnen Makromolekülen berücksichtigt, die angelagert an Staubpartikel von fruchtbaren, brachliegenden Erdböden in die Atmosphäre emittiert werden können. Als weiterer, noch nicht berücksichtigter Zusatzbeitrag zu den Bodenstaubkonzentrationen könnte, neben der Winderosion, die Emission mittels Bodenbestellung miteinbezogen werden. Im Vergleich zu Bakterien-IN ist die Anzahlkonzentration der diagnostischen, in Wolken enthaltenen Bodenstaub-IN im Mittel über den Simulationszeitraum und die Domäne zwei Größenordnungen höher. Die maximale Bodenstaub-IN-Konzentration befindet sich in einer Höhe von 6 km . Unterhalb von 2 km Höhe, wo BIN aufgrund der effektiveren Eisnukleation bei hohen Temperaturen den unmittelbarsten Einfluss auf Mischphasenwolken haben könnten, liegt die Anzahlkonzentration von Bodenstaub-IN und BIN im Mittel in derselben Größenordnung. Daher ist nicht eindeutig zu beurteilen, welche IN mit organischen oder biologischen Bestandteilen einflussreicher auf Mischphasenwolken wirken.

Einfluss von PBAP auf die mikrophysikalischen Eigenschaften von Wolken

Die PBAP-Konzentrationen, die in der vorliegenden Arbeit simuliert wurden, können über die heterogene Eisnukleation vereinzelt eine erhebliche Beeinflussung der Entwicklung von Mischphasenwolken auslösen. Über den Wegener-Bergeron-Findeisen-Prozess kann das Wachstum von Eiskristallen bevorzugt gegenüber Wolkentropfen ablaufen. BIN werden in einem aufsteigenden, sich abkühlenden Luftpaket früher aktiviert als beispielsweise Mineralstaub-IN. Dadurch kann das Wachstum von Eiskristallen durch BIN eher einsetzen. Der Unterschied im Sättigungsdampfdruck bezüglich einer Wasser- und Eisoberfläche ist bei $-11,8^\circ\text{C}$ am größten. Bei dieser Temperatur ist Mineralstaub nur wenig eisaktiv. Bakterien-IN, die bei dieser Temperatur die Anzahl der BIN dominieren, könnten somit die Entwicklung einer Mischphasenwolke effektiv beeinflussen. Allerdings sind die BIN-Konzentrationen etwa ein bis zwei Größenordnungen niedriger als Berechnungen von aerosolunabhängigen Parametrisierungen (nach Meyers et al., 1992; Phillips et al., 2007).

Die durch BIN zusätzlich gebildeten Eiskristalle können schnell zu Niederschlagspartikeln anwachsen und so die Niederschlagsmenge erhöhen und die Lebensdauer der Wolke verringern (glaciation indirekt aerosol effect; Lohmann und Feichter, 2005). Die N_i -Konzentrationsdifferenz zwischen zwei Szenarien, mit und ohne BIN, ist allerdings in Bezug auf die absolute N_i -Konzentration sehr niedrig, womit der Effekt auf die Niederschlagsmenge meist gering ist. Der größte Unterschied der N_i -Differenz zwischen den Szenarien tritt in einer Höhe bis 2 km über dem Erdboden ein, wo die Konzentrationen der BIN maximal sind. Neben der Eisnukleation von BIN bewirkt eine erhöhte Sedimentation der Eiskristalle, dass

ΔN_i zwischen den beiden Szenarien größer als die mittlere BIN-Konzentration ist. Parallel zu einer höheren N_i zeigt der Vergleich zwischen den Szenarien, dass die mittlere Konzentration von Wolkentropfen im selben Höhenbereich reduziert wird. Vielmehr als der direkte Einfluss der BIN auf den Niederschlag bewirken leicht veränderte meteorologische Bedingungen (T und S_i) sowie weniger verfügbares Flüssigwolkenwasser (N_c und L_c), dass die heterogene Eisnukleation von Mineralstaub-IN und die homogene Eisnukleation teilweise reduziert oder verzögert stattfinden. Daher zeigen die unterschiedlichen Szenarien eine Abnahme der mittleren N_i bei etwa 6 km Höhe.

Besonders bei geringen PBAP-Konzentrationen wirkt sich die Eisnukleation, durch die Partikel in Eiskristallen gebunden werden, erheblich negativ auf die Partikelkonzentration aus. Dieser Partikelabbau durch die Eisnukleation ist in der Simulation der vorliegenden Arbeit bei keinem Aerosoltyp berücksichtigt. Hingegen könnte der Einfluss geringer BIN-Konzentrationen verstärkt werden, indem die entstandenen Eiskristalle über den Hallett-Mossop-Prozess (Hallett und Mossop, 1974) multipliziert werden. Der Vorgang der sekundären Eisbildung findet hauptsächlich bei Temperaturen wärmer als -10°C statt und könnte der wichtigste Wolkenprozess zum Erreichen einer hohen Eispartikelanzahl, wie sie typischerweise in Wolken detektiert wird, sein (Morris et al., 2014).

Ausblick

Für zukünftige Analysen mit COSMO-ART oder anderen, vergleichbaren Modellen zum Einfluss der heterogenen Eisnukleation von PBAP auf Mischphasenwolken wären verschiedene Anpassungen denkbar. Zunächst könnte die Emission von Pollen mit einer detaillierteren und realistischeren Baumverteilung verbessert berechnet werden, wie sie für ein kleineres Modellgebiet zur Verfügung steht (Pauling et al., 2012). Die simulierte Pollenkonzentration könnte, abseits von der Fragestellung der vorliegenden Arbeit, anhand von Pollenzählungen an anderen Orten der Modelldomäne überprüft werden. Dadurch würde die Quellstärke der Emissionsparametrisierung nach dem hier gezeigten Ansatz besser eingeschätzt. Die Auswahl der Pollenart sowie des damit einhergehenden Simulationszeitraums könnte überprüft und angepasst werden. Eine Simulation zu einem anderen Zeitpunkt (innerhalb der Pollensaison) könnte aufgrund einer grundlegend anderen meteorologischen Gegebenheit zu anderen Pollenkonzentrationen gelangen und so die Ergebnisse dieser Arbeit ergänzen. Zudem wären Simulationen zu einem Zeitpunkt maximaler Bakterien- oder Pilzsporenkonzentrationen außerhalb der Pollensaison sinnvoll, da diese selbst zu dem gewählten Zeitpunkt die Eisnukleation von PBAP dominieren. Für Bakterien wäre daher ein detaillierter Vergleich zu Messungen sinnvoll, ähnlich wie er im Rahmen dieser Arbeit für Pilzsporen mit dem Vergleich zu FBAP-Messungen durchgeführt ist. Zudem könnte der Vergleich zu FBAP-Messungen einen entscheidenden Beitrag zum Verständnis von PBAP in der Atmosphäre leisten, wenn Informationen zur vertikalen Ausbreitung der FBAP vorlägen.

Die PBAP-Multiplikation durch Aufplatzen der Partikel und Freisetzen des Zytoplasmas oder Abwaschen von Polysacchariden von der Partikeloberfläche sollte in künftigen Studien zur Eisnukleation berücksichtigt werden. Bestimmte PBAP könnten dadurch einen deutlich höheren Einfluss haben, als bei Betrachtung der ganzen, wesentlich größeren Partikel.

In einer weiteren Analyse zum Einfluss von PBAP auf die Wolkeneigenschaften müsste die Aktivierung der PBAP als CCN berücksichtigt werden. Viele PBAP sind wegen ihrer Größe oder den Oberflächeneigenschaften vermutlich effektive CCN (Ariya et al., 2009; Pope, 2010).

Für Bakterien und Pilzsporen sind die verwendeten Eisnukleationsparametrisierungen lediglich für einzelne Arten spezifiziert. Der Anteil dieser Art an der Gesamtkonzentration von Bakterien oder Pilzsporen bewirkt in der Modellstudie der vorliegenden Arbeit die deutlichsten Veränderungen der IN-Konzentrationen. Für Bakterien der Art *Pseudomonas syringae* konnte kürzlich ein INA Anteil an der Gesamtbakterienanzahl zwischen 1,3% und 5,9% ermittelt werden (Joly et al., 2013), der in etwa mit dem Wert, der in den COSMO-ART Simulationen angewendet wurde, übereinstimmt. Weitere Studien zum räumlich und zeitlich variierenden Anteil der INA Arten an der gesamten PBAP-Konzentration würden die Simulationsgrundlagen erheblich verbessern.

In konvektiven Wolken könnten PBAP in hoher Konzentration durch hohe Vertikalgeschwindigkeiten in unterkühlte Wolkenschichten gelangen. Ein Modellsetup mit geringerer horizontaler Auflösung, beispielsweise mit 2,8 km oder weniger, würde die Simulation dieses Effektes ermöglichen. Höher aufgelöste Simulationen könnten daher die Aussagen der vorliegenden Arbeit deutlicher herausstellen oder verstärken. Unter Verwendung einer variablen Mineralstaubkonzentration könnte der Einfluss von BIN bei geringer oder hoher Staubkonzentration diagnostiziert werden. Hierzu wäre ein Modellgebiet mit Wüstenfläche oder Eingangs- und Randdaten mit Mineralstaubkonzentrationen nötig.

Der Klimaeinfluss von BIN beinhaltet die Rückkopplung auf die PBAP-Emission anhand von veränderter Niederschlagsmenge, Windgeschwindigkeit oder Temperatur. Das Ziel einer weiteren Analyse könnte klären, ob PBAP möglicherweise Niederschlag als Grundlage für eine Erhöhung der Bioaktivität auslösen.

Trotz der möglichen Erweiterungen und Ergänzungen zu den gezeigten Simulationen verdeutlichen die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit bereits, dass BIN auf regionaler Skala einen Einfluss auf Mischphasenwolken haben und deren Eigenschaften in geringem Umfang beeinflussen können.

A Literaturverzeichnis

- Ahern, H. E., K. A. Walsh, T. C. J. Hill und B. F. Moffett (2007): *Fluorescent pseudomonads isolated from Hebridean cloud and rain water produce biosurfactants but do not cause ice nucleation*, Biogeosciences **4**(1): 115-124.
- Alfaro, S. C. und L. Gomes (2001): *Modeling mineral aerosol production by wind erosion: Emission intensities and aerosol size distributions in source areas*, J. Geophys. Res. **106**(D16): 18075-18084.
- Amato, P., M. Parazols, M. Sancelme, P. Laj, G. Mailhot und A.-M. Delort (2007): *Microorganisms isolated from the water phase of tropospheric clouds at the Puy de Dôme: major groups and growth abilities at low temperatures*, FEMS Microbiology Ecology **59**(2): 242-254.
- Ariya, P. A., J. Sun, N. A. Eltouny, E. D. Hudson, C. T. Hayes und G. Kos (2009): *Physical and chemical characterization of bioaerosols – Implications for nucleation processes*, International Reviews in Physical Chemistry **28**(1): 1-32.
- Attard, E., H. Yang, A. M. Delort, P. Amato, U. Pöschl, C. Glaux, T. Koop und C. E. Morris (2012): *Effects of atmospheric conditions on ice nucleation activity of Pseudomonas*, Atmos. Chem. Phys. **12**(22): 10667-10677.
- Augustin, S., H. Wex, D. Niedermeier, B. Pummer, H. Grothe, S. Hartmann, L. Tomsche, T. Clauss, J. Voigtländer, K. Ignatius und F. Stratmann (2013): *Immersion freezing of birch pollen washing water*, Atmos. Chem. Phys. **13**(21): 10989-11003.
- Aylor, D. E. (2002): *Settling speed of corn (Zea mays) pollen*, Journal of Aerosol Science **33**(11): 1601-1607.
- Bagnold, R. A. (1941): *The physics of blown sand and desert dunes*, Methuen & Co. Ltd., London.
- Bauer, H., A. Kasper-Giebl, M. Löflund, H. Giebl, R. Hitzenberger, F. Zibuschka und H. Puxbaum (2002): *The contribution of bacteria and fungal spores to the organic carbon content of cloud water, precipitation and aerosols*, Atmospheric Research **64**(1-4): 109-119.
- Bauer, H., E. Schueller, G. Weinke, A. Berger, R. Hitzenberger, I. L. Marr und H. Puxbaum (2008): *Significant contributions of fungal spores to the organic carbon and to the aerosol mass balance of the urban atmospheric aerosol*, Atmospheric Environment **42**(22): 5542-5549.
- Benz, S., K. Megahed, O. Möhler, H. Saathoff, R. Wagner und U. Schurath (2005): *T-dependent rate measurements of homogeneous ice nucleation in cloud droplets using a large atmospheric simulation chamber*, Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry **176**(1-3): 208-217.
- Bonan, G. B., S. Levis, L. Kergoat und K. W. Oleson (2002): *Landscapes as patches of plant functional types: An integrating concept for climate and ecosystem models*, Global Biogeochem. Cycles **16**(2): 1021.
- Bones, D. L., D. K. Henricksen, S. A. Mang, M. Gonsior, A. P. Bateman, T. B. Nguyen, W. J. Cooper und S. A. Nizkorodov (2010): *Appearance of strong absorbers and fluorophores in limonene-O₃ secondary organic aerosol due to NH₄⁺-mediated chemical aging over long time scales*, Journal of Geophysical Research: Atmospheres **115**(D5): D05203.
- Bovallius, A., B. Bucht, R. Roffey und P. Anäs (1978): *Long-range air transmission of bacteria*, Applied and environmental microbiology **35**(6): 1231-1232.
- Bowers, R. M., I. B. McCubbin, A. G. Hallar und N. Fierer (2012): *Seasonal variability in airborne bacterial communities at a high-elevation site*, Atmospheric Environment **50**(0): 41-49.

- Bowers, R. M., S. McLetchie, R. Knight und N. Fierer (2010): *Spatial variability in airborne bacterial communities across land-use types and their relationship to the bacterial communities of potential source environments*, ISME J. **5**(4): 601-612.
- Brosseau, L. M., D. Vesley, N. Rice, K. Goodell, M. Nellis und P. Hairston (2000): *Differences in Detected Fluorescence Among Several Bacterial Species Measured with a Direct-Reading Particle Sizer and Fluorescence Detector*, Aerosol Science and Technology **32**(6): 545-558.
- Burrows, S. M., T. Butler, P. Jöckel, H. Tost, A. Kerkweg, U. Pöschl und M. G. Lawrence (2009a): *Bacteria in the global atmosphere – Part 2: Modeling of emissions and transport between different ecosystems*, Atmos. Chem. Phys. **9**(23): 9281-9297.
- Burrows, S. M., W. Elbert, M. G. Lawrence und U. Pöschl (2009b): *Bacteria in the global atmosphere – Part 1: Review and synthesis of literature data for different ecosystems*, Atmos. Chem. Phys. **9**(23): 9263-9280.
- Burrows, S. M., C. Hoose, U. Pöschl und M. G. Lawrence (2013): *Ice nuclei in marine air: biogenic particles or dust?*, Atmos. Chem. Phys. **13**(1): 245-267.
- CEC (1985): *Soil map of the European Communities 1: 1.000.000*, Directorate-General for Agriculture, Luxembourg.
- Champeaux, J. L., C. A. Mucher, K. Steinnocher, S. Griguolo, K. Wester, J. P. Goutorbe, F. Kressler, C. Heunks und V. F. Van Katwijk (2000). The PELCOM project: A 1-km pan-European land cover database for environmental monitoring and use in meteorological models. Geoscience and Remote Sensing Symposium, 2000. Proceedings. IGARSS 2000. IEEE 2000 International.
- Chen, J. P., A. Hazra und Z. Levin (2008): *Parameterizing ice nucleation rates using contact angle and activation energy derived from laboratory data*, Atmos. Chem. Phys. **8**(24): 7431-7449.
- Chen, W., D. Zhibao, L. Zhenshan und Y. Zuotao (1996): *Wind tunnel test of the influence of moisture on the erodibility of loessial sandy loam soils by wind*, Journal of Arid Environments **34**(4): 391-402.
- Chernoff, D. I. und A. K. Bertram (2010): *Effects of sulfate coatings on the ice nucleation properties of a biological ice nucleus and several types of minerals*, Journal of Geophysical Research: Atmospheres **115**(D20): D20205.
- Christner, B. C., R. Cai, C. E. Morris, K. S. McCarter, C. M. Foreman, M. L. Skidmore, S. N. Montross und D. C. Sands (2008): *Geographic, seasonal, and precipitation chemistry influence on the abundance and activity of biological ice nucleators in rain and snow*, Proceedings of the National Academy of Sciences **105**(48): 18854-18859.
- Conen, F., S. Henne, C. E. Morris und C. Alewell (2012): *Atmospheric ice nucleators active > -12°C can be quantified on PM10 filters*, Atmos. Meas. Tech. **5**(2): 321-327.
- Conen, F., C. E. Morris, J. Leifeld, M. V. Yakutin und C. Alewell (2011): *Biological residues define the ice nucleation properties of soil dust*, Atmos. Chem. Phys. **11**(18): 9643-9648.
- Connolly, P. J., O. Möhler, P. R. Field, H. Saathoff, R. Burgess, T. Choularton und M. Gallagher (2009): *Studies of heterogeneous freezing by three different desert dust samples*, Atmos. Chem. Phys. **9**(8): 2805-2824.
- Constantinidou, H. A., S. S. Hirano, L. S. Baker und C. D. Upper (1990): *Atmospheric dispersal of ice nucleation-active bacteria: the role of rain*, Phytopathology **80**: 934-937.
- Creamean, J. M., K. J. Suski, D. Rosenfeld, A. Cazorla, P. J. DeMott, R. C. Sullivan, A. B. White, F. M. Ralph, P. Minnis, J. M. Comstock, J. M. Tomlinson und K. A. Prather (2013): *Dust and Biological Aerosols from the Sahara and Asia Influence Precipitation in the Western U.S.*, Science **339**(6127): 1572-1578.
- Cziczo, D. J., K. D. Froyd, C. Hoose, E. J. Jensen, M. Diao, M. A. Zondlo, J. B. Smith, C. H. Twohy und D. M. Murphy (2013): *Clarifying the Dominant Sources and Mechanisms of Cirrus Cloud Formation*, Science **340**(6138): 1320-1324.
- DeMott, P. J., D. J. Cziczo, A. J. Prenni, D. M. Murphy, S. M. Kreidenweis, D. S. Thomson, R. Borys und D. C. Rogers (2003): *Measurements of the concentration and composition of nuclei for cirrus formation*, Proceedings of the National Academy of Sciences **100**(25): 14655-14660.

- DeMott, P. J. und A. J. Prenni (2010): *New Directions: Need for defining the numbers and sources of biological aerosols acting as ice nuclei*, Atmospheric Environment **44**: 1944-1945.
- DeMott, P. J., A. J. Prenni, X. Liu, S. M. Kreidenweis, M. D. Petters, C. H. Twohy, M. S. Richardson, T. Eidhammer und D. C. Rogers (2010): *Predicting global atmospheric ice nuclei distributions and their impacts on climate*, Proceedings of the National Academy of Sciences **107**(25): 11217-11222.
- Després, V. R., J. A. Huffman, S. M. Burrows, C. Hoose, A. S. Safatov, G. Buryak, J. Fröhlich-Nowoisky, W. Elbert, M. O. Andreae, U. Pöschl und R. Jaenicke (2012): *Primary biological aerosol particles in the atmosphere: a review*, Tellus B **64**: 15598.
- Diehl, K., S. Matthias-Maser, R. Jaenicke und S. K. Mitra (2002): *The ice nucleating ability of pollen: Part II. Laboratory studies in immersion and contact freezing modes*, Atmospheric Research **61**(2): 125-133.
- Diehl, K., C. Quick, S. Matthias-Maser, S. K. Mitra und R. Jaenicke (2001): *The ice nucleating ability of pollen: Part I: Laboratory studies in deposition and condensation freezing modes*, Atmospheric Research **58**(2): 75-87.
- Diehl, K., M. Simmel und S. Wurzler (2006): *Numerical sensitivity studies on the impact of aerosol properties and drop freezing modes on the glaciation, microphysics, and dynamics of clouds*, J. Geophys. Res. **111**(D7): D07202.
- Diehl, K. und S. Wurzler (2004): *Heterogeneous Drop Freezing in the Immersion Mode: Model Calculations Considering Soluble and Insoluble Particles in the Drops*, Journal of the Atmospheric Sciences **61**(16): 2063-2072.
- Doms, G. und U. Schättler (2002): *A Description of the Nonhydrostatic Regional COSMO-Model*, Deutscher Wetterdienst, Offenbach, Germany.
- Duce, R. A. (1995), *Sources, distributions, and fluxes of mineral aerosols and their relationship to climate*, Aerosol Forcing of Climate, R. Charlson and J. Heintzenberg, New York, Wiley: pp. 43-72.
- Elbert, W., P. E. Taylor, M. O. Andreae und U. Pöschl (2007): *Contribution of fungi to primary biogenic aerosols in the atmosphere: wet and dry discharged spores, carbohydrates, and inorganic ions*, Atmos. Chem. Phys. **7**(17): 4569-4588.
- Fang, Z. G., Z. Y. Ouyang, H. Zheng und X. K. Wang (2008): *Concentration and size distribution of culturable airborne microorganisms in outdoor environments in Beijing, China*, Aerosol Science and Technology **42**(5): 325-334.
- Fécan, F., B. Marticorena und G. Bergametti (1998): *Parametrization of the increase of the aeolian erosion threshold wind friction velocity due to soil moisture for arid and semi-arid areas*, Annales Geophysicae **17**(1): 149-157.
- Fischer, A. (2011): *Wide variations in the allergen content of birch pollen*. In: Geschäftsbericht der Hermholz-Gemeinschaft Deutscher Forschungszentren.
- Fletcher, N., P. Squires und E. G. Bowen (1962): *The physics of rainclouds*, University press Cambridge, London.
- Foot, V. E., P. H. Kaye, W. R. Stanley, S. J. Barrington, M. Gallagher und A. Gabey (2008): *Low-cost real-time multiparameter bio-aerosol sensors*, Proc. SPIE **7116**: 71160I-71112.
- Fountoukis, C. und A. Nenes (2007): *ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K^+ - Ca^{2+} - Mg^{2+} - NH_4^+ - Na^+ - SO_4^{2-} - NO_3^- - Cl^- - H_2O aerosols*, Atmos. Chem. Phys. **7**(17): 4639-4659.
- Fröhlich-Nowoisky, J., S. M. Burrows, Z. Xie, G. Engling, P. A. Solomon, M. P. Fraser, O. L. Mayol-Bracero, P. Artaxo, D. Begerow, R. Conrad, M. O. Andreae, V. R. Després und U. Pöschl (2012): *Biogeography in the air: fungal diversity over land and oceans*, Biogeosciences **9**(3): 1125-1136.
- Funk, R., H. I. Reuter, C. Hoffmann, W. Engel und D. Öttl (2008): *Effect of moisture on fine dust emission from tillage operations on agricultural soils*, Earth Surface Processes and Landforms **33**(12): 1851-1863.

- Gabey, A. M., M. W. Gallagher, J. Whitehead, J. R. Dorsey, P. H. Kaye und W. R. Stanley (2010): *Measurements and comparison of primary biological aerosol above and below a tropical forest canopy using a dual channel fluorescence spectrometer*, Atmospheric Chemistry and Physics **10**(10): 4453-4466.
- Gabey, A. M., W. R. Stanley, M. W. Gallagher und P. H. Kaye (2011): *The fluorescence properties of aerosol larger than 0.8 μm in urban and tropical rainforest locations*, Atmos. Chem. Phys. **11**(11): 5491-5504.
- Gabey, A. M., M. Vaitilingom, E. Freney, J. Boulon, K. Sellegri, M. W. Gallagher, I. P. Crawford, N. H. Robinson, W. R. Stanley und P. H. Kaye (2013): *Observations of fluorescent and biological aerosol at a high-altitude site in central France*, Atmos. Chem. Phys. **13**(15): 7415-7428.
- Garcia, E., T. C. J. Hill, A. J. Prenni, P. J. DeMott, G. D. Franc und S. M. Kreidenweis (2012): *Biogenic ice nuclei in boundary layer air over two U.S. High Plains agricultural regions*, Journal of Geophysical Research: Atmospheres **117**(D18): D18209.
- Garnham, C., R. Campbell, V. Walker und P. Davies (2011): *Novel dimeric beta-helical model of an ice nucleation protein with bridged active sites*, BMC Structural Biology **11**(1): 36.
- Georgakopoulos, D. G., V. Despres, J. Fröhlich-Nowoisky, R. Psenner, P. A. Ariya, M. Posfai, H. E. Ahern, B. F. Moffett und T. C. J. Hill (2009): *Microbiology and atmospheric processes: biological, physical and chemical characterization of aerosol particles*, Biogeosciences **6**: 721-737.
- Gomes, L., J. L. Rajot, S. C. Alfaro und A. Gaudichet (2003): *Validation of a dust production model from measurements performed in semi-arid agricultural areas of Spain and Niger*, CATENA **52**(3-4): 257-271.
- Graether, S. P., M. J. Kuiper, S. M. Gagne, V. K. Walker, Z. Jia, B. D. Sykes und P. L. Davies (2000): *Beta-helix structure and ice-binding properties of a hyperactive antifreeze protein from an insect*, Nature **406**(6793): 325-328.
- Gregory, P. H. (1961): *The microbiology of the atmosphere*, Leonard Hill, London.
- Gross, D. C., Y. S. Cody, E. L. Proebsting, G. K. Rademaker und R. A. Spotts (1983): *Distribution, population dynamics, and characteristics of ice nucleation-active bacteria in deciduous fruit tree orchards*, Appl Environ Microbiol. **46**(6): 1370-1379.
- Grützun, V., O. Knöth und M. Simmel (2008): *Simulation of the influence of aerosol particle characteristics on clouds and precipitation with LM-SPECS: Model description and first results*, Atmospheric Research **90**(2-4): 233-242.
- Haga, D. I., R. Iannone, M. J. Wheeler, R. Mason, E. A. Polishchuk, T. Fetch, B. J. van der Kamp, I. G. McKendry und A. K. Bertram (2013): *Ice nucleation properties of rust and bunt fungal spores and their transport to high altitudes where they can cause heterogeneous freezing*, Journal of Geophysical Research: Atmospheres.
- Hairston, P. P., J. Ho und F. R. Quant (1997): *Design of an instrument for real-time detection of bioaerosols using simultaneous measurement of particle aerodynamic size and intrinsic fluorescence*, J Aerosol Sci **28**(3): 471-482.
- Hallett, J. und S. C. Mossop (1974): *Production of secondary ice particles during the riming process*, Nature **249**(5452): 26-28.
- Hameed, A. A. A. und M. I. Khodr (2001): *Suspended particulates and bioaerosols emitted from an agricultural non-point source*, Journal of Environmental Monitoring **3**(2): 206-209.
- Hara, K. und D. Zhang (2012): *Bacterial abundance and viability in long-range transported dust*, Atmospheric Environment **47**: 20-25.
- Hartmann, S., S. Augustin, T. Clauss, H. Wex, T. Šantl-Temkiv, J. Voigtländer, D. Niedermeier und F. Stratmann (2013): *Immersion freezing of ice nucleation active protein complexes*, Atmos. Chem. Phys. **13**(11): 5751-5766.
- Hazra, A. (2013): *Role of mineral dust, soot, and bacteria in cloud and precipitation formation processes over Indian subcontinent using an atmospheric general circulation model*, Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics **98**: 74-85.

- Heald, C. L. und D. V. Spracklen (2009): *Atmospheric budget of primary biological aerosol particles from fungal spores*, *Geophys. Res. Lett.* **36**(9): L09806.
- Healy, D. A., D. J. O'Connor, A. M. Burke und J. R. Sodeau (2012): *A laboratory assessment of the Waveband Integrated Bioaerosol Sensor (WIBS-4) using individual samples of pollen and fungal spore material*, *Atmospheric Environment* **60**: 534-543.
- Helbig, N., B. Vogel, H. Vogel und F. Fiedler (2004): *Numerical modelling of pollen dispersion on the regional scale*, *Aerobiologia* **20**(1): 3-19.
- Heymsfield, A. J. und M. Kajikawa (1987): *An Improved Approach to Calculating Terminal Velocities of Plate-like Crystals and Graupel*, *Journal of the Atmospheric Sciences* **44**(7): 1088-1099.
- Hirano, S. S., L. S. Baker und C. D. Upper (1985): *Ice Nucleation Temperature of Individual Leaves in Relation to Population Sizes of Ice Nucleation Active Bacteria and Frost Injury*, *Plant Physiology* **77**(2): 259-265.
- Hoose, C., J. E. Kristjánsson und S. M. Burrows (2010a): *How important is biological ice nucleation in clouds on a global scale?*, *Environmental Research Letters* **5**(2): 024009.
- Hoose, C., J. E. Kristjánsson, J.-P. Chen und A. Hazra (2010b): *A Classical-Theory-Based Parameterization of Heterogeneous Ice Nucleation by Mineral Dust, Soot, and Biological Particles in a Global Climate Model*, *Journal of the Atmospheric Sciences* **67**(8): 2483-2503.
- Hoose, C., U. Lohmann, R. Erdin und I. Tegen (2008): *The global influence of dust mineralogical composition on heterogeneous ice nucleation in mixed-phase clouds*, *Environmental Research Letters* **3**(2): 025003.
- Hoose, C. und O. Möhler (2012): *Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols: a review of results from laboratory experiments*, *Atmos. Chem. Phys.* **12**(20): 9817-9854.
- Huffman, J. A., A. J. Prenni, P. J. DeMott, C. Pöhlker, R. H. Mason, N. H. Robinson, J. Fröhlich-Nowoisky, Y. Tobo, V. R. Després, E. Garcia, D. J. Gochis, E. Harris, I. Müller-Germann, C. Ruzene, B. Schmer, B. Sinha, D. A. Day, M. O. Andreae, J. L. Jimenez, M. Gallagher, S. M. Kreidenweis, A. K. Bertram und U. Pöschl (2013): *High concentrations of biological aerosol particles and ice nuclei during and after rain*, *Atmos. Chem. Phys.* **13**(13): 6151-6164.
- Huffman, J. A., B. Sinha, R. M. Garland, A. Snee-Pollmann, S. S. Gunthe, P. Artaxo, S. T. Martin, M. O. Andreae und U. Pöschl (2012): *Size distributions and temporal variations of biological aerosol particles in the Amazon rainforest characterized by microscopy and real-time UV-APS fluorescence techniques during AMAZE-08*, *Atmos. Chem. Phys.* **12**(24): 11997-12019.
- Huffman, J. A., B. Treutlein und U. Pöschl (2010): *Fluorescent biological aerosol particle concentrations and size distributions measured with an Ultraviolet Aerodynamic Particle Sizer (UV-APS) in Central Europe*, *Atmospheric Chemistry and Physics* **10**(7): 3215-3233.
- Iannone, R., D. I. Chernoff, A. Pringle, S. T. Martin und A. K. Bertram (2011): *The ice nucleation ability of one of the most abundant types of fungal spores found in the atmosphere*, *Atmos. Chem. Phys.* **11**(3): 1191-1201.
- Jacobson, M. Z. und D. G. Streets (2009): *Influence of future anthropogenic emissions on climate, natural emissions, and air quality*, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* **114**(D8): D08118.
- Jaenicke, R. (1978), *Über die Dynamik atmosphärischer Aitkenteilchen*, *Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie*, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, **82**: pp. 1198-1202.
- Jaenicke, R., S. Matthias-Maser und S. Gruber (2007): *Omnipresence of biological material in the atmosphere*, *Environmental Chemistry* **4**(4): 217-220.
- Jayaweera, K. und P. Flanagan (1982): *Investigations on biogenic ice nuclei in the Arctic atmosphere*, *Geophys. Res. Lett.* **9**(1): 94-97.
- Jia, Z. und P. L. Davies (2002): *Antifreeze proteins: an unusual receptor–ligand interaction*, *Trends in Biochemical Sciences* **27**(2): 101-106.
- John, W. (2011), *Size Distribution Characteristics of Aerosols*, *Aerosol Measurement*, John Wiley & Sons, Inc.: pp. 41-54.

- Joly, M., E. Attard, M. Sancelme, L. Deguillaume, C. Guilbaud, C. E. Morris, P. Amato und A.-M. Delort (2013): *Ice nucleation activity of bacteria isolated from cloud water*, Atmospheric Environment.
- Jones, A. M. und R. M. Harrison (2004): *The effects of meteorological factors on atmospheric bioaerosol concentrations--a review*, Science of The Total Environment **326**(1-3): 151-180.
- Jones, H. M., M. J. Flynn, P. J. DeMott und O. Möhler (2011): *Manchester Ice Nucleus Counter (MINC) measurements from the 2007 International workshop on Comparing Ice nucleation Measuring Systems (ICIS-2007)*, Atmos. Chem. Phys. **11**(1): 53-65.
- Kanakidou, M., J. H. Seinfeld, S. N. Pandis, I. Barnes, F. J. Dentener, M. C. Facchini, R. Van Dingenen, B. Ervens, A. Nenes, C. J. Nielsen, E. Swietlicki, J. P. Putaud, Y. Balkanski, S. Fuzzi, J. Horth, G. K. Moortgat, R. Winterhalter, C. E. L. Myhre, K. Tsigaridis, E. Vignati, E. G. Stephanou und J. Wilson (2005): *Organic aerosol and global climate modelling: a review*, Atmos. Chem. Phys. **5**(4): 1053-1123.
- Kaye, P., W. R. Stanley, E. Hirst, E. V. Foot, K. L. Baxter und S. J. Barrington (2005): *Single particle multichannel bio-aerosol fluorescence sensor*, Optics Express **13**(10): 3583-3593.
- Klein, H., S. Nickovic, W. Haunold, U. Bundke, B. Nillius, M. Ebert, S. Weinbruch, L. Schuetz, Z. Levin, L. A. Barrie und H. Bingemer (2010): *Saharan dust and ice nuclei over Central Europe*, Atmos. Chem. Phys. **10**(21): 10211-10221.
- Koop, T., B. Luo, A. Tsias und T. Peter (2000): *Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions*, Nature **406**(6796): 611-614.
- Koop, T. und B. Zobrist (2009): *Parameterizations for ice nucleation in biological and atmospheric systems*, Physical Chemistry Chemical Physics **11**(46): 10839-10850.
- Kourtev, P. S., K. A. Hill, P. B. Shepson und A. Konopka (2011): *Atmospheric cloud water contains a diverse bacterial community*, Atmospheric Environment **45**(30): 5399-5405.
- Lang-Yona, N., K. Dannemiller, N. Yamamoto, N. Burshtein, J. Peccia, O. Yarden und Y. Rudich (2012): *Annual distribution of allergenic fungal spores in atmospheric particulate matter in the Eastern Mediterranean; a comparative study between ergosterol and quantitative PCR analysis*, Atmos. Chem. Phys. **12**(5): 2681-2690.
- Lee, H. J., A. Laskin, J. Laskin und S. A. Nizkorodov (2013): *Excitation-Emission Spectra and Fluorescence Quantum Yields for Fresh and Aged Biogenic Secondary Organic Aerosols*, Environmental Science & Technology **47**(11): 5763-5770.
- Levin, Z. und S. A. Yankofsky (1983): *Contact versus immersion freezing of freely suspended droplets by bacteria ice nuclei*, Journal of Climate and Applied Meteorology **22**: 1964-1966.
- Levin, Z., S. A. Yankofsky, D. Pardes und N. Magal (1987): *Possible Application of Bacterial Condensation Freezing to Artificial Rainfall Enhancement*, Journal of Climate and Applied Meteorology **26**(9): 1188-1197.
- Lighthart, B. (1997): *The ecology of bacteria in the al fresco atmosphere*, FEMS Microbiology Ecology **23**(4): 263-274.
- Lindemann, J., H. A. Constantinidou, W. R. Barchet und C. D. Upper (1982): *Plants as sources of airborne bacteria, including ice nucleation-active bacteria*, Applied and environmental microbiology **44**(5): 1059-1063.
- Lindow, S. E., D. C. Arny und C. D. Upper (1982): *Bacterial Ice Nucleation: A Factor in Frost Injury to Plants*, Plant Physiology **70**(4): 1084-1089.
- Lindow, S. E., E. Lahue, A. G. Govindarajan, N. J. Panopoulos und D. Gies (1989): *Localization of ice nucleation activity and the iceC gene product in Pseudomonas syringae and Escherichia coli*, Mol Plant Microbe Interact. **2**(5): 262-272.
- Locatelli, J. D. und P. V. Hobbs (1974): *Fall speeds and masses of solid precipitation particles*, Journal of Geophysical Research **79**(15): 2185-2197.
- Lohmann, U. und J. Feichter (2005): *Global indirect aerosol effects: a review*, Atmos. Chem. Phys. **5**(3): 715-737.

- Lundgren, K., B. Vogel, H. Vogel und C. Kottmeier (2013): *Direct radiative effects of sea salt for the Mediterranean region under conditions of low to moderate wind speeds*, Journal of Geophysical Research: Atmospheres **118**(4): 1906-1923.
- Mahowald, N., T. D. Jickells, A. R. Baker, P. Artaxo, C. R. Benitez-Nelson, G. Bergametti, T. C. Bond, Y. Chen, D. D. Cohen, B. Herut, N. Kubilay, R. Losno, C. Luo, W. Maenhaut, K. A. McGee, G. S. Okin, R. L. Siefert und S. Tsukuda (2008): *Global distribution of atmospheric phosphorus sources, concentrations and deposition rates, and anthropogenic impacts*, Global Biogeochemical Cycles **22**(4): GB4026.
- Maki, L. R., E. L. Galyan, M.-M. Chang-Chien und D. R. Caldwell (1974): *Ice Nucleation Induced by Pseudomonas syringae*, American Society for Microbiology **28**(3): 456-459.
- Maki, L. R. und K. J. Willoughby (1978): *Bacteria as Biogenic Sources of Freezing Nuclei*, Journal of Applied Meteorology **17**(7): 1049-1053.
- Makra, L., T. Sánta, I. Matyasovszky, A. Damialis, K. Karatzas, K.-C. Bergmann und D. Vokou (2010): *Airborne pollen in three European cities: Detection of atmospheric circulation pathways by applying three-dimensional clustering of backward trajectories*, J. Geophys. Res. **115**(D24): D24220.
- Marticorena, B. und G. Bergametti (1995): *Modeling the atmospheric dust cycle: 1. Design of a soil-derived dust emission scheme*, J. Geophys. Res. **100**(D8): 16415-16430.
- Martin, S. T., M. O. Andreae, P. Artaxo, D. Baumgardner, Q. Chen, A. H. Goldstein, A. Guenther, C. L. Heald, O. L. Mayol-Bracero, P. H. McMurry, T. Pauliquevis, U. Pöschl, K. A. Prather, G. C. Roberts, S. R. Saleska, M. A. Silva Dias, D. V. Spracklen, E. Swietlicki und I. Trebs (2010): *Sources and properties of Amazonian aerosol particles*, Reviews of Geophysics **48**(2): RG2002.
- Matthias-Maser, S., V. Obolkin, T. Khodzer und R. Jaenicke (2000): *Seasonal variation of primary biological aerosol particles in the remote continental region of Lake Baikal/Siberia*, Atmospheric Environment **34**(22): 3805-3811.
- MeteoSchweiz (2013). "Pollenprognose mit dem Modell COSMO-ART." Retrieved 15.08.2013, from <http://www.meteoschweiz.admin.ch/web/de/wetter/gesundheit/pollenprognosen/cosmo-art-ausser-saison.html>.
- Meyers, M. P., P. J. DeMott und W. R. Cotton (1992): *New Primary Ice-Nucleation Parameterizations in an Explicit Cloud Model*, Journal of Applied Meteorology **31**(7): 708-721.
- Miguel, A. G., P. E. Taylor, J. House, M. M. Glovsky und R. C. Flagan (2006): *Meteorological Influences on Respirable Fragment Release from Chinese Elm Pollen*, Aerosol Science and Technology **40**(9): 690-696.
- Möhler, O., P. J. DeMott, G. Vali und Z. Levin (2007): *Microbiology and atmospheric processes: the role of biological particles in cloud physics*, Biogeosciences **4**(6): 1059-1071.
- Möhler, O., P. R. Field, P. Connolly, S. Benz, H. Saathoff, M. Schnaiter, R. Wagner, R. Cotton, M. Krämer, A. Mangold und A. J. Heymsfield (2006): *Efficiency of the deposition mode ice nucleation on mineral dust particles*, Atmos. Chem. Phys. **6**(10): 3007-3021.
- Möhler, O., D. G. Georgakopoulos, C. E. Morris, S. Benz, V. Ebert, S. Hunsmann, H. Saathoff, M. Schnaiter und R. Wagner (2008): *Heterogeneous ice nucleation activity of bacteria: new laboratory experiments at simulated cloud conditions*, Biogeosciences **5**(5): 1425-1435.
- Möhler, O., O. Stetzer, S. Schaefers, C. Linke, M. Schnaiter, R. Tiede, H. Saathoff, M. Krämer, A. Mangold, P. Budz, P. Zink, J. Schreiner, K. Mauersberger, W. Haag, B. Kärcher und U. Schurath (2003): *Experimental investigation of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA*, Atmos. Chem. Phys. **3**(1): 211-223.
- Morris, C. E., F. Conen, J. Alex Huffman, V. Phillips, U. Pöschl und D. C. Sands (2014): *Bioprecipitation: a feedback cycle linking Earth history, ecosystem dynamics and land use through biological ice nucleators in the atmosphere*, Global Change Biology **20**(2): 341-351.
- Morris, C. E., L. L. Kinkel, K. Xiao, P. Prior und D. C. Sands (2007): *Surprising niche for the plant pathogen Pseudomonas syringae*, Infection, Genetics and Evolution **7**(1): 84-92.

- Morris, C. E., D. C. Sands, M. Bardin, R. Jaenicke, B. Vogel, C. Leyronas, P. A. Ariya und R. Psenner (2011): *Microbiology and atmospheric processes: research challenges concerning the impact of airborne micro-organisms on the atmosphere and climate*, Biogeosciences **8**(1): 17-25.
- Morris, C. E., D. C. Sands, C. Glaux, J. Samsatly, S. Asaad, A. R. Moukahel, F. L. T. Gonçalves und E. K. Bigg (2013): *Urediospores of rust fungi are ice nucleation active at > -10 °C and harbor ice nucleation active bacteria*, Atmos. Chem. Phys. **13**(8): 4223-4233.
- Morris, C. E., D. C. Sands, B. A. Vinatzer, C. Glaux, C. Guilbaud, A. Buffiere, S. Yan, H. Dominguez und B. M. Thompson (2008): *The life history of the plant pathogen Pseudomonas syringae is linked to the water cycle*, ISME J **2**(3): 321-334.
- Mortazavi, R., C. T. Hayes und P. A. Ariya (2008): *Ice nucleation activity of bacteria isolated from snow compared with organic and inorganic substrates*, Environmental Chemistry **5**(6): 373-381.
- Murray, B. J., D. O'Sullivan, J. D. Atkinson und M. E. Webb (2012): *Ice nucleation by particles immersed in supercooled cloud droplets*, Chemical Society Reviews **41**(19): 6519-6554.
- Nicolis, G. und I. Prigogine (1989): *Exploring complexity. An introduction*, W. H. Freeman and company, New York, USA.
- Niedermeier, D., S. Hartmann, R. A. Shaw, D. Covert, T. F. Mentel, J. Schneider, L. Poulain, P. Reitz, C. Spindler, T. Clauss, A. Kiselev, E. Hallbauer, H. Wex, K. Mildenerger und F. Stratmann (2010): *Heterogeneous freezing of droplets with immersed mineral dust particles – measurements and parameterization*, Atmos. Chem. Phys. **10**(8): 3601-3614.
- Niemand, M., O. Möhler, B. Vogel, H. Vogel, C. Hoose, P. Connolly, H. Klein, H. Bingemer, P. DeMott, J. Skrotzki und T. Leisner (2012): *A particle-surface-area-based parameterization of immersion freezing on desert dust particles*, Journal of the Atmospheric Sciences **69**(10).
- Noh, Y. M., D. Müller, H. Lee und T. J. Choi (2013): *Influence of biogenic pollen on optical properties of atmospheric aerosols observed by lidar over Gwangju, South Korea*, Atmospheric Environment **69**: 139-147.
- O'Sullivan, D., B. J. Murray, T. L. Malkin, T. F. Whale, N. S. Umo, J. D. Atkinson, H. C. Price, K. J. Baustian, J. Browse und M. E. Webb (2014): *Ice nucleation by fertile soil dusts: relative importance of mineral and biogenic components*, Atmos. Chem. Phys. **14**(4): 1853-1867.
- Obata, H., N. Muryoi, H. Kawahara, K. Yamade und J. Nishikawa (1999): *Identification of a Novel Ice-Nucleating Bacterium of Antarctic Origin and its Ice Nucleation Properties*, Cryobiology **38**(2): 131-139.
- Olson, D. M., E. Dinerstein, E. D. Wikramanayake, N. D. Burgess, G. V. N. Powell, E. C. Underwood, J. A. D'Amico, I. Itoua, H. E. Strand, J. C. Morrison, C. J. Loucks, T. F. Allnutt, T. H. Ricketts, Y. Kura, J. F. Lamoreux, W. W. Wettengel, P. Hedao und K. R. Kassem (2001): *Terrestrial Ecoregions of the World: A New Map of Life on Earth*, BioScience **51**(11): 933-938.
- Pan, Y.-l., S. Holler, R. K. Chang, S. C. Hill, R. G. Pinnick, S. Niles und J. R. Bottiger (1999): *Single-shot fluorescence spectra of individual micrometer-sized bioaerosols illuminated by a 351- or a 266-nm ultraviolet laser*, Optics Letters **24**(2): 116-118.
- Pasken, R. und J. A. Pietrowicz (2005): *Using dispersion and mesoscale meteorological models to forecast pollen concentrations*, Atmospheric Environment **39**(40): 7689-7701.
- Pauling, A., M. W. Rotach, R. Gehrig und B. Clot (2012): *A method to derive vegetation distribution maps for pollen dispersion models using birch as an example*, International Journal of Biometeorology **56**(5): 949-958.
- Penner, J. E. (1995), *Carbonaceous aerosols influencing atmospheric radiation: black and organic carbon*, Aerosol Forcing of Climate, R. J. a. H. Charlson, J., Chichester, John Wiley and Sons: pp. 91 - 108.
- Penner, J. E., M. Andreae, H. Annegarn, L. Barrie, J. Feichter, D. Hegg, A. Jayaraman, R. Leitch, D. Murphy, J. Nganga und G. Pitari (2001), *Aerosols, their Direct and Indirect Effects*, The Scientific Basis. Contribution of Working Group I To The Third Assessment Report Of The Intergovernmental Panel On Climate Change, J. T. Houghton, Y. Dingis, D. J. Griggs, M. Nogueris, P. J. v. d. Linden, X. Daiis, K. Maskellis and C. A. Johnson, Cambridge, UK, New York, NY, USA, Cambridge University Press: pp. 289-348.

- Phelps, P., T. H. Giddings, M. Prochoda und R. Fall (1986): *Release of cell-free ice nuclei by Erwinia herbicola*, Journal of Bacteriology **167**(2): 496-502.
- Phillips, V. T. J., C. Andronache, B. Christner, C. E. Morris, D. C. Sands, A. Bansemmer, A. Lauer, C. McNaughton und C. Seman (2009): *Potential impacts from biological aerosols on ensembles of continental clouds simulated numerically*, Biogeosciences **6**(6): 987-1014.
- Phillips, V. T. J., P. J. DeMott und C. Andronache (2008): *An Empirical Parameterization of Heterogeneous Ice Nucleation for Multiple Chemical Species of Aerosol*, Journal of the Atmospheric Sciences **65**(9): 2757-2783.
- Phillips, V. T. J., P. J. Demott, C. Andronache, K. A. Pratt, K. A. Prather, R. Subramanian und C. Twohy (2012): *Improvements to an Empirical Parameterization of Heterogeneous Ice Nucleation and Its Comparison with Observations*, Journal of the Atmospheric Sciences **70**(2): 378-409.
- Phillips, V. T. J., L. J. Donner und S. T. Garner (2007): *Nucleation Processes in Deep Convection Simulated by a Cloud-System-Resolving Model with Double-Moment Bulk Microphysics*, Journal of the Atmospheric Sciences **64**(3): 738-761.
- Pöhlker, C., J. A. Huffman, J. D. Förster und U. Pöschl (2013): *Autofluorescence of atmospheric bioaerosols: spectral fingerprints and taxonomic trends of pollen*, Atmos. Meas. Tech. **6**(12): 3369-3392.
- Pöhlker, C., J. A. Huffman und U. Pöschl (2012): *Autofluorescence of atmospheric bioaerosols – fluorescent biomolecules and potential interferences*, Atmos. Meas. Tech. **5**(1): 37-71.
- Pope, F. D. (2010): *Pollen grains are efficient cloud condensation nuclei*, Environmental Research Letters **5**(4): 044015.
- Pöschl, U., S. T. Martin, B. Sinha, Q. Chen, S. S. Gunthe, J. A. Huffman, S. Borrmann, D. K. Farmer, R. M. Garland, G. Helas, J. L. Jimenez, S. M. King, A. Manzi, E. Mikhailov, T. Pauliquevis, M. D. Petters, A. J. Prenni, P. Roldin, D. Rose, J. Schneider, H. Su, S. R. Zorn, P. Artaxo und M. O. Andreae (2010): *Rainforest Aerosols as Biogenic Nuclei of Clouds and Precipitation in the Amazon*, Science **329**(5998): 1513-1516.
- Pouleur, S., C. Richard, J. G. Martin und H. Antoun (1992): *Ice Nucleation Activity in Fusarium acuminatum and Fusarium avenaceum*, Applied and environmental microbiology **58**(9): 2960-2964.
- Pratt, K. A., P. J. DeMott, J. R. French, Z. Wang, D. L. Westphal, A. J. Heymsfield, C. H. Twohy, A. J. Prenni und K. A. Prather (2009): *In situ detection of biological particles in cloud ice-crystals*, Nature Geosci **2**(6): 398-401.
- Prenni, A. J., M. D. Petters, S. M. Kreidenweis, C. L. Heald, S. T. Martin, P. Artaxo, R. M. Garland, A. G. Wollny und U. Pöschl (2009): *Relative roles of biogenic emissions and Saharan dust as ice nuclei in the Amazon basin*, Nature Geosci **2**(6): 402-405.
- Pruppacher, H. R. und J. D. Klett (1997): *Microphysics of clouds and precipitation*, D. Reidel Pub. Co, Dordrecht, Holland and Boston, USA.
- Pummer, B. G., L. Atanasova, H. Bauer, J. Bernardi, I. S. Druzhinina, J. Fröhlich-Nowoisky und H. Grothe (2013): *Spores of many common airborne fungi reveal no ice nucleation activity in oil immersion freezing experiments*, Biogeosciences **10**(12): 8083-8091.
- Pummer, B. G., H. Bauer, J. Bernardi, S. Bleicher und H. Grothe (2012): *Suspendable macromolecules are responsible for ice nucleation activity of birch and conifer pollen*, Atmos. Chem. Phys. **12**(5): 2541-2550.
- Ramankutty, N., A. T. Evan, C. Monfreda und J. A. Foley (2008): *Farming the planet: 1. Geographic distribution of global agricultural lands in the year 2000*, Global Biogeochem. Cycles **22**(1): GB1003.
- Rempe, H. (1937): *Untersuchungen über die Verbreitung des Blütenstaubes durch die Luftströmungen*, Planta **27**(1): 93-147.
- Reponen, T., S. A. Grinshpun, K. L. Conwell, J. Wiest und M. Anderson (2001): *Aerodynamic versus physical size of spores: Measurement and implication for respiratory deposition*, Grana **40**(3): 119-125.

- Richard, C., J.-G. Martin und S. Pouleur (1996): *Ice nucleation activity identified in some phytopathogenic Fusarium species*, *Phytoprotection* **77**: 83-92.
- Riffaud, C. M. H. und C. E. Morris (2002): *Detection of Pseudomonas syringae pv. aptata in Irrigation Water Retention Basins by Immunofluorescence Colony-staining*, *European Journal of Plant Pathology* **108**(6): 539-545.
- Rinke, R. (2008): *Parametrisierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln durch Niederschlag*, Ph.D. thesis, Inst. für Meteorol. und Klimaforsch., Univ. Karlsruhe (TH), Karlsruhe, Germany.
- Rizzi-Longo, L., M. Pizzulin-Sauli, F. Stravisi und P. Ganis (2007): *Airborne pollen calendar for Trieste (Italy), 1990–2004*, *Grana* **46**(2): 98-109.
- Robinson, N. H., J. D. Allan, J. A. Huffman, P. H. Kaye, V. E. Foot und M. Gallagher (2013): *Cluster analysis of WBS single-particle bioaerosol data*, *Atmos. Meas. Tech.* **6**(2): 337-347.
- Saari, S. E., M. J. Putkiranta und J. Keskinen (2013): *Fluorescence spectroscopy of atmospherically relevant bacterial and fungal spores and potential interferences*, *Atmospheric Environment* **71**: 202-209.
- Sands, D. C., V. E. Langhans, A. L. Scharen und G. d. Smet (1982): *The association between bacteria and rain and possible resultant meteorological implications*, *Journal of the Hungarian Meteorological Service* **86**(2): 148-152.
- Schaupp, C. (2013): *Untersuchungen zur Rolle von Bakterien und Pollen als Wolkenkondensations- und Eiskeime in troposphärischen Wolken*, Ph.D. thesis, Institute of Environmental Physics, Heidelberg University, Heidelberg, Germany.
- Schell, B., I. J. Ackermann, H. Hass, F. S. Binkowski und A. Ebel (2001): *Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system*, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* **106**(D22): 28275-28293.
- Schumacher, C. J., C. Pöhlker, P. Aalto, V. Hiltunen, T. Petäjä, M. Kulmala, U. Pöschl und J. A. Huffman (2013): *Seasonal cycles of fluorescent biological aerosol particles in boreal and semi-arid forests of Finland and Colorado*, *Atmos. Chem. Phys.* **13**(23): 11987-12001.
- Schurgers, G., T. Hickler, P. A. Miller und A. Arneeth (2009): *European emissions of isoprene and monoterpenes from the Last Glacial Maximum to present*, *Biogeosciences* **6**(12): 2779-2797.
- Seifert, A. und K. D. Beheng (2006): *A two-moment cloud microphysics parameterization for mixed-phase clouds. Part 1: Model description*, *Meteorology and Atmospheric Physics* **92**(1): 45-66.
- Seinfeld, J. H. und S. N. Pandis (2006): *Atmospheric Chemistry and Physics - From Air Pollution to Climate Change (2nd Edition)*, John Wiley & Sons, Hoboken, New Jersey, USA.
- Sesartic, A. und T. N. Dallafior (2011): *Global fungal spore emissions, review and synthesis of literature data*, *Biogeosciences* **8**(5): 1181-1192.
- Sesartic, A., U. Lohmann und T. Storelvmo (2012): *Bacteria in the ECHAM5-HAM global climate model*, *Atmos. Chem. Phys.* **12**(18): 8645-8661.
- Sesartic, A., U. Lohmann und T. Storelvmo (2013): *Modelling the impact of fungal spore ice nuclei on clouds and precipitation*, *Environmental Research Letters* **8**(1): 014029.
- Shao, Y. und H. Lu (2000): *A simple expression for wind erosion threshold friction velocity*, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* **105**(D17): 22437-22443.
- Shao, Y., M. R. Raupach und P. A. Findlater (1993): *Effect of saltation bombardment on the entrainment of dust by wind*, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* **98**(D7): 12719-12726.
- Smith, B., I. C. Prentice und M. T. Sykes (2001): *Representation of vegetation dynamics in the modelling of terrestrial ecosystems: comparing two contrasting approaches within European climate space*, *Global Ecology and Biogeography* **10**(6): 621-637.
- Sofiev, M., P. Siljamo, H. Ranta und A. Rantio-Lehtimäki (2006): *Towards numerical forecasting of long-range air transport of birch pollen: theoretical considerations and a feasibility study*, *International Journal of Biometeorology* **50**(6): 392-402.
- Stanelle, T., B. Vogel, H. Vogel, D. Bäumer und C. Kottmeier (2010): *Feedback between dust particles and atmospheric processes over West Africa during dust episodes in March 2006 and June 2007*, *Atmos. Chem. Phys.* **10**(22): 10771-10788.

- Steinke, I. (2013): *Ice Nucleation Properties of Mineral Dusts*, Ph.D. thesis, Institute of Environmental Physics, Heidelberg University, Heidelberg, Germany.
- Stockwell, W. R., P. Middleton, J. S. Chang und X. Tang (1990): *The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling*, Journal of Geophysical Research: Atmospheres **95**(D10): 16343-16367.
- Szyrmer, W. und I. Zawadzki (1997): *Biogenic and Anthropogenic Sources of Ice-Forming Nuclei: A Review*, Bulletin of the American Meteorological Society **78**(2): 209-228.
- Tao, W.-K., J.-P. Chen, Z. Li, C. Wang und C. Zhang (2012): *Impact of aerosols on convective clouds and precipitation*, Rev. Geophys. **50**(2): RG2001.
- Tobo, Y., A. J. Prenni, P. J. DeMott, J. A. Huffman, C. S. McCluskey, G. Tian, C. Pöhlker, U. Pöschl und S. M. Kreidenweis (2013): *Biological aerosol particles as a key determinant of ice nuclei populations in a forest ecosystem*, Journal of Geophysical Research: Atmospheres **118**(17): 100-110.
- Toprak, E. und M. Schnaiter (2013): *Fluorescent biological aerosol particles measured with the Waveband Integrated Bioaerosol Sensor WIBS-4: laboratory tests combined with a one year field study*, Atmos. Chem. Phys. **13**(1): 225-243.
- Tormo-Molina, R., M. Gonzalo-Garijo, I. Silva-Palacios und A. Muñoz-Rodríguez (2010): *General Trends in Airborne Pollen Production and Pollination Periods at a Mediterranean Site (Badajoz, Southwest Spain)*, J Investig Allergol Clin Immunol **20**(7): 567-574.
- Townshend, J. R. G. (1994): *Global data sets for land applications from the Advanced Very High Resolution Radiometer: an introduction*, International Journal of Remote Sensing **15**(17): 3319-3332.
- Tsumuki, H., H. Konno, T. Maeda und Y. Okamoto (1992): *An ice-nucleating active fungus isolated from the gut of the rice stem borer, Chilo suppressalis Walker (Lepidoptera, Pyralidae)*. Journal of insect physiology **38**(2): 119-125.
- Tzur, I. und Z. Levin (1981): *Ions and Precipitation Charging in Warm and Cold Clouds as Simulated in One-Dimensional Time-Dependent Models*, Journal of the Atmospheric Sciences **38**(11): 2444-2461.
- Väitilingom, M., E. Attard, N. Gaiani, M. Sancelme, L. Deguillaume, A. I. Flossmann, P. Amato und A.-M. Delort (2012): *Long-term features of cloud microbiology at the puy de Dôme (France)*, Atmospheric Environment **56**: 88-100.
- Vali, G. (1971): *Quantitative Evaluation of Experimental Results on the Heterogeneous Freezing Nucleation of Supercooled Liquids*, Journal of the Atmospheric Sciences **28**(3): 402-409.
- Vali, G., M. Christensen, R. W. Fresh, E. L. Galyan, L. R. Maki und R. C. Schnell (1976): *Biogenic Ice Nuclei. Part II: Bacterial Sources*, Journal of the Atmospheric Sciences **33**(8): 1565-1570.
- Vogel, B., C. Hoose, H. Vogel und C. Kottmeier (2006): *A model of dust transport applied to the Dead Sea Area*, Meteorologische Zeitschrift **15**(6): 611-624.
- Vogel, B., H. Vogel, D. Bäumer, M. Bangert, K. Lundgren, R. Rinke und T. Stanelle (2009): *The comprehensive model system COSMO-ART – radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale*, Atmos. Chem. Phys. **9**(4): 14483-14528.
- Vogel, H., A. Pauling und B. Vogel (2008): *Numerical simulation of birch pollen dispersion with an operational weather forecast system*, International Journal of Biometeorology **52**(8): 805-814.
- von Blohn, N., S. K. Mitra, K. Diehl und S. Borrmann (2005): *The ice nucleating ability of pollen: Part III: New laboratory studies in immersion and contact freezing modes including more pollen types*, Atmospheric Research **78**(3-4): 182-189.
- Wahl, P.-G. v. (1989). Einordnung der Pollenkonzentration in Klassen -Vorschlag zu einer neuen Klassifizierung. 2. Europäisches Pollenflug - Symposium 1989, Mönchengladbach, Stiftung Deutscher Polleninformationsdienst.
- Ward, P. J. und P. J. DeMott (1989): *Preliminary experimental evaluation of SnomaxTM, Pseudomonas syringae, as an artificial ice nucleus for weather modification*, J. Weather Mod. **21**: 9-13.

- Whitby, E. R. und P. H. McMurry (1997): *Modal Aerosol Dynamics Modeling*, *Aerosol Science and Technology* **27**(6): 673-688.
- White, B. R. (1979): *soil transport by winds on Mars*, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* **84**(B9): 4643-4651.
- Wicker, L. J. und W. C. Skamarock (2002): *Time-Splitting Methods for Elastic Models Using Forward Time Schemes*, *Monthly Weather Review* **130**(8): 2088-2097.
- Williams, C. G. (2013): *Forest tree pollen dispersal via the water*, *American Journal of Botany* **100**(6): 1184-1190.
- Winiwarter, W., H. Bauer, A. Caseiro und H. Puxbaum (2009): *Quantifying emissions of primary biological aerosol particle mass in Europe*, *Atmospheric Environment* **43**(7): 1403-1409.
- Wittmaack, K., H. Wehnes, U. Heinzmann und R. Agerer (2005): *An overview on bioaerosols viewed by scanning electron microscopy*, *Science of The Total Environment* **346**(1-3): 244-255.
- Wolber, P. K., C. A. Deininger, M. W. Southworth, J. Vandekerckhove, M. van Montagu und G. J. Warren (1986): *Identification and purification of a bacterial ice-nucleation protein*, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **83**(19): 7256-7260.
- Wood, S. E., M. B. Baker und B. D. Swanson (2002): *Instrument for studies of homogeneous and heterogeneous ice nucleation in free-falling supercooled water droplets*, *Review of Scientific Instruments* **73**(11): 3988-3996.
- Worland, M. R. und W. Block (1999): *Ice-Nucleating Bacteria from the Guts of Two Sub-Antarctic Beetles, *Hydromedion sparsutum* and *Perimylops antarcticus* (Perimylopidae)*, *Cryobiology* **38**(1): 60-67.
- Xia, Y., F. Conen und C. Alewell (2013): *Total bacterial number concentration in free tropospheric air above the Alps*, *Aerobiologia* **29**(1): 153-159.
- Yankofsky, S. A., Z. Levin, T. Bertold und N. Sandlerman (1981): *Some Basic Characteristics of Bacterial Freezing Nuclei*, *Journal of Applied Meteorology* **20**(9): 1013-1019.
- Young, K. C. (1974): *The Role of Contact Nucleation in Ice Phase Initiation in Clouds*, *Journal of the Atmospheric Sciences* **31**(3): 768-776.
- Yttri, K. E., C. Dye und G. Kiss (2007): *Ambient aerosol concentrations of sugars and sugar-alcohols at four different sites in Norway*, *Atmos. Chem. Phys.* **7**(16): 4267-4279.
- Zakey, A. S., F. Solmon und F. Giorgi (2006): *Implementation and testing of a desert dust module in a regional climate model*, *Atmos. Chem. Phys.* **6**(12): 4687-4704.
- Zwander, H., E. Fischer-Wellenborn und H. Koll (2005): *Der Pollenflug in Kärnten im Jahr 2004*, *Naturwissenschaftlicher Verein für Kärnten* **195./115.**: 203-214.
- Zwander, H. und H. Koll (2010): *Der Pollenflug in Kärnten im Jahr 2009*, *Naturwissenschaftlicher Verein für Kärnten* **200./120.**: 57-68.

B Symbolverzeichnis

Symbole

Allgemeine Indizes

$x = d$	trockene Luft
$x = v$	Wasserdampf
$x = l$	Flüssigwasser
$x = c$	Wolkentropfen
$x = r$	Regentropfen
$x = i$	Wasser in fester, gefrorener Phase, z.B. Eis
j	Partikelmode einer Größenverteilung

griechische Buchstaben

Symbol	Beschreibung	Einheit
$\alpha = \left(\frac{R_v}{R_d} - 1\right) q^v - q^l - q^i$	Feuchtigkeitsterm (in der Definition der virtuellen Temperatur)	
β	Proportionsfaktor für den horizontalen Saltationsfluss	163 m/s ²
ε	Koeffizient für das Auswaschen von PBAP	
ρ^x	partielle Dichte der Mischung mit $x = d, v, l, i$	kg/m ³
ρ_P	Partikeldichte	kg/m ³
$\rho = \sum_x \rho^x$	Gesamtdichte feuchter Luft	kg/m ³
σ	Standardabweichung	
λ	Wellenlänge	μm
$\vec{\Omega}$	konstante Winkelgeschwindigkeit der Erdrotation	

Kleinbuchstaben

Symbol	Beschreibung	Einheit
$c_{p,x}$	spezifische Wärme des Bestandteils x bei konstantem Druck	J/kg K
$c_{v,x}$	spezifische Wärme des Bestandteils x bei konstantem Volumen	J/kg K
c_d	Drag-Koeffizient	
e_l	Bindungsenergie	kg m ² /s ²
d_a	aerodynamische Partikeldurchmesser	μm
d_e	volumen-äquivalenter Partikeldurchmesser	μm
d_g	Mediandurchmesser der Größenverteilung der Anzahlkonzentration	μm
d_{g3}	Mediandurchmesser der Größenverteilung der Massendichte	μm
d_p	Partikeldurchmesser	μm

Symbol	Beschreibung	Einheit
f	Formfaktor abhängig vom Kontaktwinkel zwischen Obergrenze der Eismoleküle und Partikeloberfläche	
f_l	Größenverteilung der Anzahlkonzentration von flüssigen Tröpfchen	$1/kg\ m^3$
f_c	Größenverteilung der Anzahlkonzentration von Wolkentropfen	$1/kg\ m^3$
f_r	Größenverteilung der Anzahlkonzentration von Regentropfen	$1/kg\ m^3$
f_{kin}	kinetische Energie der Saltationspartikel	J
$f_h(d_s)$	horizontaler Saltationsfluss von Bodenstaubpartikels der Größe d_s	$kg/m\ s$
$f_v(d_s)$	vertikaler Flusses von Bodenstaubpartikels der Größe d_s	$kg/m^2\ s$
f_{IN}	Anzahl von IN	$1/L$
f_{max}	maximal erreichbare IN-Anzahl	$1/L$
f_r	Flächenanteil	
\vec{g}	Gravitationsbeschleunigung	m/s^2
h_c	Höhe der Pflanzendecke	m
h_{PBL}	planetare Grenzschichthöhe	m
m	Masse	g
$n(d_p)$	kontinuierliche Verteilungsfunktion der Anzahlkonzentration	$1/m^3$
n_s	Dichte eisaktiver Stellen pro Partikeloberfläche	$1/m^2$
p	Luftdruck	hPa
p_{soil}	Anteil brachliegender Ackerflächen	
q^p	charakteristische Pollenkonzentration	$1/m^2$
q_v	spezifische Feuchte	kg/kg
t	Zeit	s
$\vec{\tau}$	Spannungstensor bezüglich der Viskosität	
u_*	Schubspannungsgeschwindigkeit	m/s
u_{*te}	Grenzwert der Schubspannungsgeschwindigkeit	m/s
\vec{v}	baryzentrische Windgeschwindigkeit	m/s
v	Geschwindigkeit	m/s
v_{sed}	Sedimentationsgeschwindigkeit	m/s
z	Höhe der Modellschicht	m
z_s	Höhe der untersten Modellschicht	m
z_0	Rauhigkeitslänge	m

Großbuchstaben

Symbol	Beschreibung	Einheit
A_p	Aerosoloberfläche	m^2
D	Durchmesser (Hydrometeore)	μm
E	Kollisionseffizienz	
$\vec{F}^x = \overline{\rho \vec{v}'' L_x}$	turbulenter Fluss des Bestandteils x	
$\vec{F}_h = \overline{\rho \vec{v}'' h}$	turbulenter Fluss der Enthalpie	
F_v	vertikale Gesamtmassenfluss von Bodenstaubpartikeln	$kg/m^2\ s$
$F_{H\&S}$	Emissionsfluss nach Heald und Spracklen (2009)	$1/m^2\ s$
$F_{S\&D}$	Emissionsfluss nach Sesartic und Dallafior (2011)	$1/m^2\ s$

Symbol	Beschreibung	Einheit
F_{FBAP}	Emissionsfluss für FBAP	$1/m^2 s$
F_P	Emissionsfluss für Pollen	$1/m^2 s$
F_B	Emissionsfluss für Bakterien	$1/m^2 s$
F_{kin}	Fluss kinetischer Energie von Saltationspartikeln	kg/s^3
F_S	Sedimentationsfluss	$kg/m^2 s$
G^\ddagger	Energiebarriere	
$\vec{H} = \hat{c}_p \overline{\rho \vec{v}'' T}$	Fluss fühlbarer Wärme	$J/m^2 s$
\vec{j}^x	Diffusionsfluss von Bestandteil x	
J	Koeffizient der Nukleationsrate	$1/cm^3 s$
K_h	turbulente Diffusivität von Wärme	m^2/s
LAI	Blattflächenindex (leaf area index)	m^2/m^2
L_G	latent Schmelzwärme	$0,33 \cdot 10^6 J/kg$
L_S	latente Wärme der Sublimation	$2,83 \cdot 10^6 J/kg$
L_V	latente Wärme der Verdunstung	$2,50 \cdot 10^6 J/kg$
$L_x = \rho_x/\rho$	Massenmischungsverhältnis bzw. Massendichte von x	$\mu g/m^3$
L_j	Massendichte von Aerosolen der Größenmode j	$\mu g/m^3$
L_l	Massendichte von Tröpfchen (Flüssigwassergehalt)	$\mu g/m^3$
L_c	Massendichte von Wolkentropfen (Wolkenwassergehalt)	$\mu g/m^3$
L_r	Massendichte von Regentropfen (Regenwassergehalt)	$\mu g/m^3$
M_k	k -te Moment einer Aerosolgrößenverteilung	m^k/m^3
M_l^k	k -te Potenzmoment von $f_l(\chi)$ (flüssige Tröpfchen)	kg^k/m^3
M_c^k	k -te Potenzmoment von $f_c(\chi)$ (Wolkentropfen)	kg^k/m^3
M_r^k	k -te Potenzmoment von $f_r(\chi)$ (Regentropfen)	kg^k/m^3
N	Gesamtaerosolanzahlkonzentration	$1/L$
N_j	Anzahlkonzentration von Aerosolen der Größenmode j	$1/L$
N_c	Anzahlkonzentration von Wolkentropfen	$1/L$
N_r	Anzahlkonzentration von Regentropfen	$1/L$
N_{IN}	Anzahlkonzentration von IN	$1/L$
N_F	Anzahlkonzentration von Partikeln detektiert mit der UV-LIF Messtechnik	$1/L$
N_i	Anzahlkonzentration von Eiskristallen	$1/L$
N_f	PBAP Anzahlkonzentration	$1/L$
N_0	Gesamtanzahl von Tropfen	
N_f	Anzahl an gefrorenen Tropfen	
N_u	Anzahl an ungefrorenen Tropfen	
\vec{P}^x	Niederschlagsfluss von Bestandteil x	$kg/m^2 h$
Q_h	diabatische Wärmeentwicklung	
Q_m	Einfluss der Konzentrationsänderung von Feuchtigkeitskomponenten auf die Drucktendenz	
\vec{R}	Flussdichte der solaren und thermischen Strahlung	
R_v	Gaskonstante des Wasserdampfs	$462 J / kg K$
R_d	Gaskonstante trockener Luft	$287 J / kg K$
S	Oberflächengrößenverteilung	$\mu m^2/m^3$
S_x	Quellterm	
S_i	Sättigungsverhältnis über einer Eisoberfläche	
S_d	Länge der Pollensaison	$d \triangleq 24 h$
T	Temperatur	K

Symbol	Beschreibung	Einheit
$\bar{\vec{T}} = \overline{\rho \vec{v}' \vec{v}'}$	Reynolds Spannungstensor	
V	Volumen	m^3

Abkürzungen

AIDA	Aerosol Interaction and Dynamics in the Atmosphere
aPA	Anthropogene primäre Aerosole ($d_p < 10 \mu m$)
ART	Aerosols and Reactive Trace Gases (Aerosole und reaktive Spurengase)
ATD	Arizona Test Dust
AVHRR	Advanced Very High Resolution Radiometer
BIN	biologischer Eiskeim
CAM	Community Atmosphere Model
CCN	Cloud Condensation Nuclei (Wolkenkondensationskeim)
CEC	Commission of the European Communities
CFSR	Climate Forecast System Reanalysis
CFU	Colony Forming Unit
COSMO	Consortium for Small scale Modeling
DNS	Desoxyribonukleinsäure
ECHAM	[GCM des Max Planck Institutes für Meteorologie]
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
ESBN	European Soil Bureau Network
EMAC	ECHAM5 MESSy1.5 Atmospheric Chemistry
FBAP	Fluoreszierende biologische Aerosolpartikel
GCM	globales Zirkulationsmodell (global circulation model)
GLC2000	Global LandCover 2000
IN	Ice Nuclei (Eiskeim)
INA	ice nucleating active (eisnukleationsaktiv)
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
ISORROPIA	griech. „Gleichgewicht“ (thermodynamisches Aerosolgleichgewichtsmodell)
JFJ	Jungfrauoch
LACIS	Leipzig Aerosol Cloud Interaction Simulator
LAI	Leaf Area Index (Blattflächenindex)
LIDAR	Laser Imaging, Detection and Ranging
LM	Lokal Modell
LPJ-GUESS	(Lund-Potsdam-Jena) dynamic global vegetation model – General Ecosystem Simulator
MACC	Monitoring Atmospheric Composition and Climate
MODIS	Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer
MESSy	Modular Earth Submodel System
NAD(P)H	reduziertes Nicotinsäureamid-Adenin-Dinukleotid-(Phosphat)
NAPOL	Nationales Pollenmesswerk von MeteoSwiss
NDVI	Normalized Difference Vegetation Index
Nd:YAG	Neodym-dotierter Yttrium-Aluminium-Granat-Laser
NN	Normal Null

NOAA	National Oceanographic and Atmospheric Administration
TNO	Toegepast-Natuurwetenschappelijk Onderzoek (applied scientific research)
PBAP	Primäre biologische Aerosolpartikel
PELCOM	Pan-European Land Cover Monitoring
PM10	Partikelmasse mit $d < 10 \mu m$
SEM	Scanning Electron Microscope (Elektronenmikroskop)
SOA	Sekundäre organische Aerosole
USDA	United States Department of Agriculture
UTC	Coordinated Universal Time
UV-APS	ultraviolet aerodynamic particle sizer (ultravioletter aerodynamischer Partikelgrößenselektierer)
UV-LIF	Ultraviolet Light-induced Fluorescence (ultraviolettes Licht induzierte Fluoreszenz)
WIBS	Waveband Integrated Bioaerosol Sensor (Wellenlängenband integrierter Bioaerosolsensor)

Danksagung

Zunächst möchte ich Prof. Dr. Corinna Hoose dafür danken, dass ich die Möglichkeit erhalten habe, in einer wunderbaren Arbeitsgruppe an diesem spannenden und aktuellen Thema zu forschen. Vielen Dank für eine hervorragende Betreuung meiner Arbeit sowie viele sehr inspirierende Diskussionen. Zudem möchte ich mich herzlich bei Prof. Dr. Thomas Leisner bedanken, dass er die Arbeit als Korreferent übernommen hat.

Insbesondere danke ich Dr. Ottmar Möhler für die gute wissenschaftliche Zusammenarbeit in Rahmen der AIDA-Experimente. Die Kooperation mit aktuellen Projekten, die an der AIDA Wolkenkammer durchgeführt wurden, stellt eine Besonderheit dieser Arbeit dar. In diesem Zusammenhang möchte ich mich bei Dr. Caroline Schaupp und Dr. Isabelle Steinke für die vertrauensvolle Zusammenarbeit und die gehaltvollen Diskussionen rund um ihre AIDA-Ergebnisse bedanken.

Ein spezieller Dank gilt meinen Unterstützern seitens der Modellierung, ohne die die Arbeit in der dargelegten Form nicht möglich wäre. Dr. Bernhard Vogel und Dr. Heike Vogel haben mir ein inhaltsstarkes Modellierungswerkzeug zur Verfügung gestellt und waren stets für Fragen zu COSMO-ART offen. Zudem möchte ich Dr. Max Bangert danken, der mir bei Fragen zum Wolkenmodell zur Seite stand, sowie Marco Paukert, mit dem ich sehr konstruktiv über kleinere und größere Herausforderungen bei der Modellierung mit COSMO-ART diskutiert habe.

Ein sehr herzliches Dankeschön gilt meiner Familie, die mir während der ganzen Promotionsdauer zur Seite stand und mich stets unterstützt hat. Ganz besonders möchte ich hier meine Ehefrau Eva Hummel hervorheben, mit der ich jederzeit über Schwierigkeiten sowie inhaltliche und strukturelle Fragestellungen der Arbeit sehr erfolgreich diskutieren konnte.