



**Forschungszentrum Karlsruhe**  
in der Helmholtz-Gemeinschaft

# NACHRICHTEN



Jahrgang 35 • 1-2/2003

Atmosphären- und Klimaforschung

**Im Inhaltsverzeichnis verwendete  
Abkürzungen:**

ATMO	Programm Atmosphäre und Klima
IMK	Institut für Meteorologie und Klimaforschung

**Herausgeber:**

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640 · D-76021 Karlsruhe  
Telefon-Nr. (07247) 82-0

**Redaktion:**

Dr. Klaus Körting

**Redaktionsbeirat:**

Prof. Dr. J. Blümer, IK-IEKP  
Dr. W. Breitung, IKET  
Prof. Dr. E. Dinjus, ITC-CPV  
Dr. J. Gspann, IMT  
Dr. J. Hoffmann, ÖA  
Dr. R. Krieg, IRS  
Dr. W. Pfleging, IMF-I  
Prof. Dr. U. Schurath, IMK (Vorsitzender)  
Dr. K.-F. Weibezahn, IMB

**Grafik und Satz:**

Stolz Grafisches Atelier · Karlsruhe

**Layout:**

Tassilo Schnitzer

**Druck:**

Wilhelm Stober GmbH · Eggenstein

Nachdruck mit Genehmigung des  
Forschungszentrums Karlsruhe GmbH  
unter Nennung der Gesellschaft und  
des Autors gestattet. Beleg erbeten.

Die NACHRICHTEN  
können kostenlos über die  
Hauptabteilung Bibliothek und Medien  
des Forschungszentrums bezogen  
werden.

Printed in the Federal Republic of  
Germany

Gedruckt auf chlorfrei gebleichtem  
Papier



Der Umweltsatellit ENVISAT der europäischen Raumfahrtagentur (ESA). Mit an Bord ist das im Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK) des Forschungszentrums Karlsruhe entwickelte Michelson-Interferometer MIPAS zur Sondierung von Spurengasen in der Atmosphäre (vgl. den Beitrag von T. v. Clarmann und G. Stiller auf Seite 41, Foto: ESA).

---

# Inhalt / Contents

- **Das Programm Atmosphäre und Klima im Forschungszentrum Karlsruhe** 7  
**The Atmosphere and Climate Program at the Forschungszentrum Karlsruhe**

F. Fiedler, ATMO

Under the Atmosphere and Climate Program, extensive field experiments and model simulations are performed to study basic processes in the atmosphere, which are of relevance to climate and the environment. Work concentrates on the areas atmospheric dynamics, thermodynamics, transport and chemistry in the troposphere, chemistry and physics of atmospheric aerosols, stratospheric research and remote sounding. The fundamental results thus obtained may serve as a solid basis of new standards to be imposed by the legislator or initiate the development of technical alternatives to methods used today.

- **Überprüfung der Genauigkeit von berechneten Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs: Konzept und Messergebnisse** 9

**Evaluation of the Accuracy of Calculated Road Traffic Emissions: Concept and Measuring Results**

U. Corsmeier, M. Kohler, B. Vogel, F. Fiedler, IMK

Road traffic is a major source of air pollution. The vehicle emissions are determined by emission calculation models. These emissions are input data for atmospheric dispersion models for the evaluation of the efficiency of exhaust gas reduction techniques. But the quality of the emission calculation models is widely unknown. For this reason real world traffic emissions have been measured and the quality of the calculation models were checked by comparing the results. For NO<sub>x</sub> the agreement between calculated and measured emission was mostly within 10 %, while for CO the calculated values were about 25% lower than the measured emissions.

- **Numerische Simulation der räumlichen und zeitlichen Verteilung gas- und partikelförmiger Luftbeimengungen im Nahbereich von Autobahnen** 15

**Numerical Simulations of Gaseous and Particulate Trace Substances in the Vicinity of Motorways**

D. Bäumer, B. Vogel, F. Fiedler, IMK

Vehicles generate wake eddies and therefore enhanced turbulent diffusion at and nearby a motorway can be expected. A new parameterization of traffic induced turbulence has been developed. This parameterization has been integrated into a numerical model. Model simulations with the improved model system were carried out and compared to observations. It shows that the concentration distributions of both gaseous and particulate matter downstream the motorway are significantly influenced by the traffic induced turbulence.

---

---

■ **Prozessstudien zur Bildung von salpetriger Säure in der Troposphäre mittels numerischer Simulationen**

20

**Process Studies on the Formation of Nitrous Acid in the Troposphere by Numerical Simulations**

B. Vogel, H. Vogel, IMK

Gaseous nitrous acid (HONO) is a photochemical source of HO radicals. This ultra-reactive species is the most important cleansing agent in the atmosphere. Simulated daily cycles of nitrous acid were compared with measurements made at the 200 m research tower of Forschungszentrum Karlsruhe, Germany. While the nocturnal HONO concentrations are reproduced by the simulations the concentrations at daytime are underestimated by 30-50%. Better agreement is obtained when a hypothetical HONO source which is proportional to the light intensity is included in the model.

■ **Forschungsflugzeug DO128 – ein fliegendes Labor für die Umwelt- und Klimaforschung am Forschungszentrum**

25

**Research Aircraft DO128 – a Flying Laboratory for Use in Environmental and Climate Research at the Forschungszentrum**

Ch. Kottmeier, U. Corsmeier, F. Fiedler, IMK; R. Hankers, Universität Braunschweig, IFF

The research aircraft Dornier 128, operated by the Institut für Flugführung (IFF) of the University of Braunschweig, is used by the Institut für Meteorologie und Klimaforschung (Bereich Troposphäre), to determine the distribution of chemical constituents of the air, to measure the meteorological parameters of the atmosphere with high resolution in time and space and to record close meshed the properties of the earth's surface. The endurance of the aircraft of about 1500 km together with the time of operation of up to 4 hours gives the opportunity to investigate various atmospheric processes all over Europe.

■ **Windsysteme und Transport von Luftverunreinigungen im Großraum Marseille: ESCOMPTE**

31

**Wind Systems and Transport of Air Pollutants in the Region of Marseille: ESCOMPTE**

Ch. Kottmeier, N. Kalthoff, U. Corsmeier, F. Fiedler, IMK

The research project ESCOMPTE (Expérience sur site pour contraindre les modèles de pollution atmosphérique et de transport d'émissions, Cros et al. [1]) was performed to collect an appropriate airchemical and meteorological data set which will be used to improve models for chemical transformation and transport of air pollutants. The measurement program was carried out with participation of the Institute of Meteorology and Climate Research in June and July 2001 in the area of Marseille. Now a comprehensive data set is available for the IMK to apply the model systems KAMM 1 and KAMM 2 to areas with complex orographic structures.

---

---

■ **Die Stratosphäre im globalen Wandel** 37  
**The Stratosphere in a Changing Environment**

H. Fischer, IMK

Over more than two decades the depletion of the stratospheric ozone layer is persisting. More recently an international intercomparison of model calculations has clearly revealed that we are not able to forecast the arctic ozone layer in forth-coming decades. Besides field measurements of stratospheric state parameters and constituents, instruments aboard ENVISAT are providing new comprehensive data sets which are used for studying various stratospheric processes in order to improve the capabilities of ozone forecast.

■ **Das Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung (MIPAS) auf dem Umweltforschungssatelliten ENVISAT** 41

**The Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) onboard the Environmental Research Satellite ENVISAT**

T. v. Clarmann, G. Stiller, IMK

The Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) is a Fourier transform spectrometer for measurement of the thermal emission of the Earth's atmosphere in a limb sounding mode. Measured spectra are used for retrieval of abundances of many stratospheric species, which are relevant to stratospheric ozone destruction and global change. Limb sounding geometry provides good altitude resolution and sensitivity. Emission measurements are, contrary to occultation measurements, independent of the position of the sun. Operation onboard a polar orbiter allow global measurements. For scientific data analysis, a sophisticated data processing system has been installed at IMK.

■ **MIPAS-STR: ein Fernerkundungsinstrument für Stratosphärenflugzeuge** 46  
**MIPAS-STR: a Remote Sensor for Stratospheric Aircraft**

C. E. Blom, T. Gulde, M. Höpfner, C. Keim, W. Kimmig, G.Y. Liu, C. Piesch, C. Sartorius, IMK

The IMK has developed a new instrument, MIPAS-STR (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding – STRatospheric aircraft), for remote sensing of atmospheric trace constituents from stratospheric aircraft. It has been operated on board the Russian high-altitude platform Geophysica in several scientific missions over Europe and Antarctica. This contribution gives an overview on the aircraft and the payload for measurement of chemical species built by several European institutions. It gives a short description of the optics and the electronics of MIPAS-STR and examples of measurements made.

---

---

■ **Messung stratosphärischer Spurengase für die Ozonforschung mit bodengebundener Millimeterwellenradiometrie und Infrarotspektroskopie**  
**Measurements of Stratospheric Trace Gases for Ozone Research Using Ground-based Millimeter Wave Radiometry and Infrared Spectroscopy**

51

G. Kopp, Th. Blumenstock, A. Griesfeller, F. Hase, G. Hochschild, M. Schneider, IMK

Ground-based millimeter wave radiometry and infrared spectroscopy are efficient methods for continuous measurements of ozone and ozone-related stratospheric trace gases. From the measured spectra vertical profiles of the constituents can be retrieved which enables the investigation of the temporal evolution of these stratospheric trace gases. This is of special interest for long-term observations within the Network for the Detection of Stratospheric Change (NDSC). The measured profiles will also be used for the validation of satellite instruments aboard ENVISAT.

■ **Bestimmung und Analyse der Temperatur von Landoberflächen aus Satellitendaten**  
**Determination and Analysis of Land Surface Temperatures from Satellite Data**

57

F.-S. Olesen, F.-M. Göttsche, IMK

The temperature of land surfaces is a central component of the energy balance of the system Earth-atmosphere. Long time records over large areas can only be measured with radiometers onboard satellites. The exact determination of surface temperature requires correction of the influence of the atmosphere between surface and satellite. In order to accelerate time consuming calculations, neural networks are used. A long-term evaluation of thermal surface quantities and plant density allows conclusions about climate changes and human influence.

■ **Simulation konvektiver Mischwolken**  
**Modelling of Convective Mixed Clouds**

62

A. Seifert, K. D. Beheng, IMK

A forecast how very many tiny cloud droplets and ice crystals finally build up large raindrops or snow flakes requires a detailed description of a multitude of microphysical mechanisms and processes. An atmospheric meteorological model shows the complexity of the interactions and reveals those processes dominating precipitation formation. It turns out that the life cycle of single thunderstorms as well as of convective complexes is strongly determined, on the one hand, by the assumed atmospheric flow field and, on the other hand, by the supply of cloud-generating aerosol particles.

## ■ Aerosole und Wolken

68

### Aerosols and Clouds

O. Möhler, K. D. Beheng, IMK

Tropospheric clouds obviously have a significant influence on weather, the water cycle, and the global climate. Their occurrence and physical properties are determined by atmospheric dynamics, but also crucially depend on the hygroscopic and ice nucleating properties of aerosol particles of natural and anthropogenic origin. Comprehensive microphysical and optical data sets of experiments performed in the AIDA facility at atmospheric cloud conditions are compared to numerical models in order to address open questions of cloud formation, precipitation, and cloud-climate interactions.

## ■ Nanopartikel mit großer Wirkung – Spurensuche auf dem Weg zur stratosphärischen Ozonzerstörung

73

### From Micro to Macro Scale: How Nanoparticles Trigger Polar Stratospheric Ozone Depletion

O. Möhler, H. Oelhaf, IMK

The formation of the springtime ozone hole over Antarctica showed that human activities can have a substantial and unpredicted impact on the atmosphere. It is known that sub-micrometer sized particles in polar stratospheric clouds (PSCs) set the scene for chemical ozone depletion both in the antarctic and arctic stratosphere. MIPAS-B field measurements and AIDA laboratory studies contribute to fill the gaps in understanding important PSC processes which is necessary to get more reliable predictions of future ozone depletion and to assess the links to global climate change.

## ■ Klimawirksamkeit und Chemie atmosphärischer Rußaerosole – Untersuchungen in der AIDA-Anlage

79

### Climate Effects and Chemistry of Atmospheric Soot Aerosols – Investigations in the AIDA Facility

K.-H. Naumann, H. Saathoff, M. Schnaiter, R. Wagner, IMK

Recent large scale field experiments indicated a strong impact of soot containing aerosols on local and global climate, which is not adequately accounted for in current climate models. The results of two comprehensive AIDA campaigns investigating the structural, dynamical, and optical properties of pure, mixed, and coated soot aerosols, conducted in cooperation with national and international partners, as well as the conclusions drawn from extensive AIDA investigations on the effect of soot induced heterogeneous trace gas reactions on atmospheric chemistry are highlighted within this context.

# Das Programm Atmosphäre und Klima im Forschungszentrum Karlsruhe

F. Fiedler, ATMO

Die Forschung, die sich mit der Atmosphäre und ihrem langzeitigen Klimaverhalten befasst, folgt im Wesentlichen seit ihren Anfängen relativ einfachen, dennoch unumgänglich notwendigen Vorgaben:

- Sie will erarbeiten, wie die physikalischen Größen, beispielsweise Temperatur, Feuchte, Niederschlag, Wind, Energie und Strahlung sowie die chemischen Größen, wie beispielsweise die Konzentration von Aerosolen, und Ozon zusammen mit einer fast nicht endenden Liste von Spurenstoffen, in regionalen Bereichen und im globalen Maßstab in der Atmosphäre verteilt sind.
- Sie will aufdecken und verstehen lernen, wie die Atmosphäre funktioniert, um die Frage beantworten zu können, wann und wo sich ein Tiefdruckgebiet eventuell sogar mit verheerenden Auswirkungen infolge von Sturm und Starkniederschlägen ausbildet. Sie will die Gesetzmäßigkeiten turbulenter Strömung, von hochreichender Konvektion, der Wolkenbildung, der Absorption von Strahlung an Aerosolen, Tröpfchen und Gasen erarbeiten.
- Sie will in quantitativer Weise mit Hilfe der physikalischen und chemischen Gesetze erklären, wie die beobachteten Verteilungen zustande kommen und welche der in großer Zahl gleichzeitig nebeneinander ablaufenden Prozesse unter stetig variablen Bedingungen dafür verantwortlich sind.
- Bei hinreichendem Verständnis über das natürlich ablaufende System ist die dringende Frage zu beantworten, wo und auf welche Weise die rasch anwachsende Weltbevölkerung bei der

Schaffung der Nahrungsgrundlagen und infolge der Inanspruchnahme von Ressourcen für Wohlstand und Mobilität bereits so stark in das System eingreift, dass Veränderungen lokal, regional und sogar global daraus resultieren. Diese Veränderungen wirken wiederum in besorgniserregender Weise auf die Bedingungen zur Schaffung der Nahrungsgrundlagen und auf die soziologischen Bereiche zurück.

Trotz aller enormen Erfolge, auf die die Atmosphärenforschung der letzten 50 Jahre mit Stolz zurückschauen kann, bestehen nach wie vor auf allen Feldern noch große Defizite. Es ist zu wenig und zu ungenau bekannt, wie die einzelnen Variablen in der Atmosphäre von bodennahen Schichten bis in die Stratosphäre hinein verteilt sind. Hierfür liegen weder für alle Substanzen hinreichend genaue und hinreichend die Vorgänge in Raum und Zeit auflösende Messgeräte vor, noch stehen Messungen von den gewünschten Größen über einen längeren Zeitraum zur Verfügung, anhand derer eine verlässliche Beurteilung des Geschehens in der Atmosphäre möglich wird. Die bisherigen Erkenntnisse stellen in weiten Bereichen nur einen groben Abklatsch des tatsächlichen Geschehens dar. Das bisherige Verständnis und damit vor allem die mathematisch-physikalische Beschreibung von zahlreichen Prozessen wie beispielsweise das Zusammenspiel von Aerosolen, Feuchte und chemischen gasförmigen Stoffen oder die Tröpfchenbildung in Wolken bis hin zur Entstehung von Niederschlägen, die Entstehung von hochreichender Konvektion über bergiger Landschaft und die Dynamik der

Atmosphäre im globalen Maßstab reicht nicht aus, um Antworten auf alle wichtigen Fragen mit der erforderlichen Verlässlichkeit zu geben.

Dies ist umso schwieriger zu erreichen, als die Atmosphäre eine extrem hohe Variabilität sowohl zeitlich wie auch räumlich besitzt. Daher sind Messungen nur an einem Ort oder nur in einem relativ kurzen Zeitintervall bei weitem nicht ausreichend, um allgemein gültige Zusammenhänge daraus ableiten zu können. Viele typische Strukturen, wie beispielsweise ein Tiefdruckgebiet, besitzen eine horizontale Ausdehnung von rund 1000 km. Um es in seinem Grundmuster und in seiner Wirkung für Energie-, Feuchte- und Stofftransporte erfassen zu können, sind weit ausgedehnte Messungen erforderlich. Zusätzlich gleichen sich kaum zwei aufeinanderfolgende Tiefdruckgebiete. Daher ergibt die Analyse über ein ganzes Ensemble von Tiefdruckgebieten erst ein deutliches Bild der mit ihnen verbundenen Energie- und Feuchtetransporte innerhalb des gesamten atmosphärischen Systems.

Innerhalb des Programms Atmosphäre und Klima (ATMO) werden große Anstrengungen unternommen, um die noch bestehenden Lücken im Verständnis der Prozesse und in der Kenntnis der globalen und regionalen Verteilung von Feldgrößen zu verkleinern. Hierzu gehören Geräteentwicklungen, um die Güte und Vollständigkeit der Messungen in Bezug auf Anzahl der bisher verfügbaren Variablen zu erhöhen und auch in Bezug auf die räumliche und zeitliche Verfügbarkeit zu verbessern.

Wegen der großen Spannweite der auftretenden Prozesse, die vom kleinsten Tropfenwachstum bis zur

erdumspannenden Zirkulation reicht, sind Messplattformen aller Art notwendig, um ein hinreichend genaues und ein hinreichend vollständiges Bild von den Vorgängen zu erhalten.

Herausragend für die Schaffung eines klareren Bildes der globalen Verteilungen von solchen Substanzen, die mit dem schützenden Ozonschild der Atmosphäre im starken Zusammenhang stehen, sind die mit dem Michelson-Interferometer (MIPAS) von Flugzeugen, von hochfliegenden Ballons und vom Satelliten aus erfassten Verteilungen einer größeren Zahl von Substanzen. So ist MIPAS eines der zentralen Instrumente auf dem europäischen Umweltsatelliten ENVISAT. Der besondere Vorteil dieser Messungen vom Satelliten aus besteht darin, dass sie gleichzeitig und weltumspannend über eine längere Zeit durchgeführt werden können, um neben der räumlichen Variabilität auch Trends aufdecken zu können.

Neben den Langzeitbeobachtungen vom Satelliten aus sind Messungen in allen Höhenbereichen der Atmosphäre erforderlich, die den zeitlichen Ablauf von Prozessen, von ihrer Entstehung bis zu ihrer Dissipation, in den entsprechenden Zeitspannen auflösen. Hierzu werden aufwendige Geräteentwicklungen vorangetrieben, um Turbulenz, das Strömungsfeld innerhalb der einzelnen Strukturen, die damit verbundene Energie-, Feuchte- und Stofftransporte unter schwierigen Messbedingungen zu quantifizieren. Einen hohen Stellenwert besitzen indirekte Messverfahren wie Radarmessgeräte zur Erfassung wolkenphysikalischer Parameter und des Niederschlags und andere sehr aufwendige Fernerkundungsverfahren,

bei denen die Ausbreitung von Schallwellen und elektromagnetischen Wellen als Messsignal verwendet werden. Diese Messgeräte werden in Flugzeugen mit dem entsprechenden Flugpotential in verschiedenen Höhenschichten der Atmosphäre, von der atmosphärischen Grenzschicht bis in die untere Stratosphäre eingesetzt.

Die mit diesen Geräten, unter Ausnutzung relativ komplizierter Zusammenhänge zwischen dem gewünschten Parameter und der vom Gerät erfassten Größen, gewonnenen Messdaten erfordern die Erarbeitung angepasster Auswertelgorithmen, die von relativ einfachen Eichungen bis zu aufwendigen Computerberechnungen reichen.

Die umfassendste und konzentrierteste Integration des gesamten Wissens stellen Simulationsmodelle für die Atmosphäre dar. Hierbei ist es erforderlich wegen des großen Aufwands und der Vielzahl von Prozessen und Wechselwirkungen zwischen den Prozessen zunächst Module für Teilbereiche aufzubauen, die beispielsweise das physikalische und chemische Verhalten von Aerosolen, die chemischen Reaktionen zwischen einer großen Zahl von lediglich in Spuren in der Atmosphäre auftretenden Substanzen, das Tropfenwachstum und die Wolkenbildung, die turbulente Grenzschichtentwicklung bis hin zu den globalen Transporten in der Stratosphäre beschreiben können.

In ATMO werden nicht nur die mathematisch-physikalischen Beschreibungen für solche Modelle erweitert, sondern auch an zahlreichen Problemen der numerischen Verfahren zur Lösung dieser Gleichungen

gearbeitet. Schließlich wird nach dem jeweiligen Entwicklungsstand der Modelle, angepasst an die Situationen, die den großen Feldmessprogrammen zugrunde liegen, eine Gesamtschau in Form von Energie- Wasser- und Stoffhaushalten berechnet. Aus dem Wechselspiel zwischen Feldmessungen und zugehörigen Modellrechnungen wird der Wissensstand sukzessive erweitert. In dieser Richtung stehen die am Erdboden ablaufenden Prozesse wie die Speicherung von Wasser im Boden, die Energie-, Wasserdampf- (Verdunstung) und Stofftransporte zwischen Boden und Atmosphäre, die Ausbildung von hochreichender Konvektion, die Erfassung der Vertikalverteilung von Substanzen vom Boden bis in die Stratosphäre hinein, die Austauschvorgänge im Bereich zwischen Troposphäre und Stratosphäre sowie die Beobachtung von langzeitigen Trends im Vordergrund.

Somit dienen die Forschungsarbeiten der heute besonders wichtigen Aufgabe des nachhaltigen Klimaschutzes. Dringend geforderte Entscheidungen auf der politischen Ebene setzen eine sichere Basis der Kenntnisse über die Zusammenhänge im globalen Klimasystem wie auch im regionalen Bereich, besonders in den bevölkerungsdichten „Megacities“ voraus. Eine besondere Herausforderung stellt die Trennung zwischen den natürlichen Fluktuationen auf langzeitigen wie auch kurzzeitigen Zeitskalen von den vom Menschen verursachten Veränderungen dar. Hier steht die Forschung aufgrund der immensen inhärenten Variabilität der Atmosphäre und des gesamten Klimasystems großen Herausforderungen gegenüber.

# Überprüfung der Genauigkeit von berechneten Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs: Konzept und Messergebnisse

U. Corsmeier, M. Kohler, B. Vogel, F. Fiedler, IMK

## Einleitung

Die Verringerung der Belastung der Atmosphäre mit Emissionen aus Verkehr, Heizung und Industrie ist ein anerkanntes politisches Ziel. Zum Nachweis des Erfolges verschiedener Minderungsstrategien, müssen die Emissionen einzelner Emittenten bzw. Emittentengruppen gemessen werden.

Kraftfahrzeuge geben Stickstoffmonoxid, Kohlenmonoxid, Kohlenwasserstoffe und partikelförmige Luftbeimengungen, wie Dieselruß ab. Folge dieser Emissionen sind z.B. hohe Ozonkonzentrationen während der Sommermonate. Kleinstpartikel, zu denen der Dieselruß gehört, stehen im Verdacht gesundheitsschädlich zu sein. Daneben sind sie klimawirksam und tragen zum Treibhauseffekt bei.

Mit Modellrechnungen werden Prognosen und Bewertungen der zukünftigen Belastung der Atmosphäre mit Schadstoffen vorgenommen. Da die Modellergebnisse Grundlage für weitreichende

umweltpolitische Entscheidungen sind, gewinnt die Frage nach der Genauigkeit berechneter Emissionsdaten an Bedeutung. Sie kann z.Z. nur äußerst unzureichend beantwortet werden. Für die wichtigen Emissionen des Straßenverkehrs wird deshalb mit Hilfe des Feldmessprogramms BAB II die Güte statistisch-numerischer Emissionsberechnungsmodelle überprüft.

Das Feldmessprogramm BAB II wird vom Umweltbundesamt teilfinanziert. Zu den Arbeiten tragen neben dem Institut für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums Karlsruhe die folgenden Institutionen bei:

Department of Chemistry der Universität Kopenhagen, Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart, Institut für Physikalische Chemie der GH Wuppertal, Institut für Umweltphysik der Universität Heidelberg, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfesselwesen der Universität Stutt-

gart, Paul Scherrer Institut, Villigen (Schweiz); Umweltbundesamt, Berlin; Zentrum für Umweltforschung der Universität Frankfurt, BASF AG und Ford Forschungszentrum sowie das Institut für Instrumentelle Analytik des Forschungszentrums Karlsruhe.

## Konzept zur Ermittlung von Verkehrsemissionen

Der Berechnungsansatz für die Emission  $Q_i$  der Substanz  $i$ , die auf einem Straßenabschnitt freigesetzt wird, lautet:

$$Q_i = \int_0^h v(x_2, z) \cdot c_i(x_2, z) dz - \int_0^h v(x_1, z) \cdot c_i(x_1, z) dz$$

$C_i$  ist die Konzentration der Substanz  $i$  und  $v$  ist die Windgeschwindigkeit jeweils am Ort  $x_1$  im Luv der Straße, also der dem Wind zugewandten Seite, bzw. am Ort  $x_2$  im Lee der Straße, der dem Wind abgewandten Seite;  $z$  beschreibt die vertikale Erstreckung der Abluffahne, sie reicht von  $z=0$  bis  $z=h$ . Vorausgesetzt wird, dass keine Deposition und keine chemischen Umwandlungen der Emissionen stattfinden, dass die turbulenten Flüsse in Strömungsrichtung gegenüber dem mittleren horizontalen Transport vernachlässigbar sind und dass entlang des Straßenabschnittes homogene und stationäre Verhältnisse aller benötigten Größen vorliegen.



Abb. 1: Übersicht über das Messfeld an der Autobahn 656 bei Heidelberg-Wieblingen. Zur Erfassung der Vertikalprofile sind rechts und links 52 m hohe Krantürme aufgestellt worden.

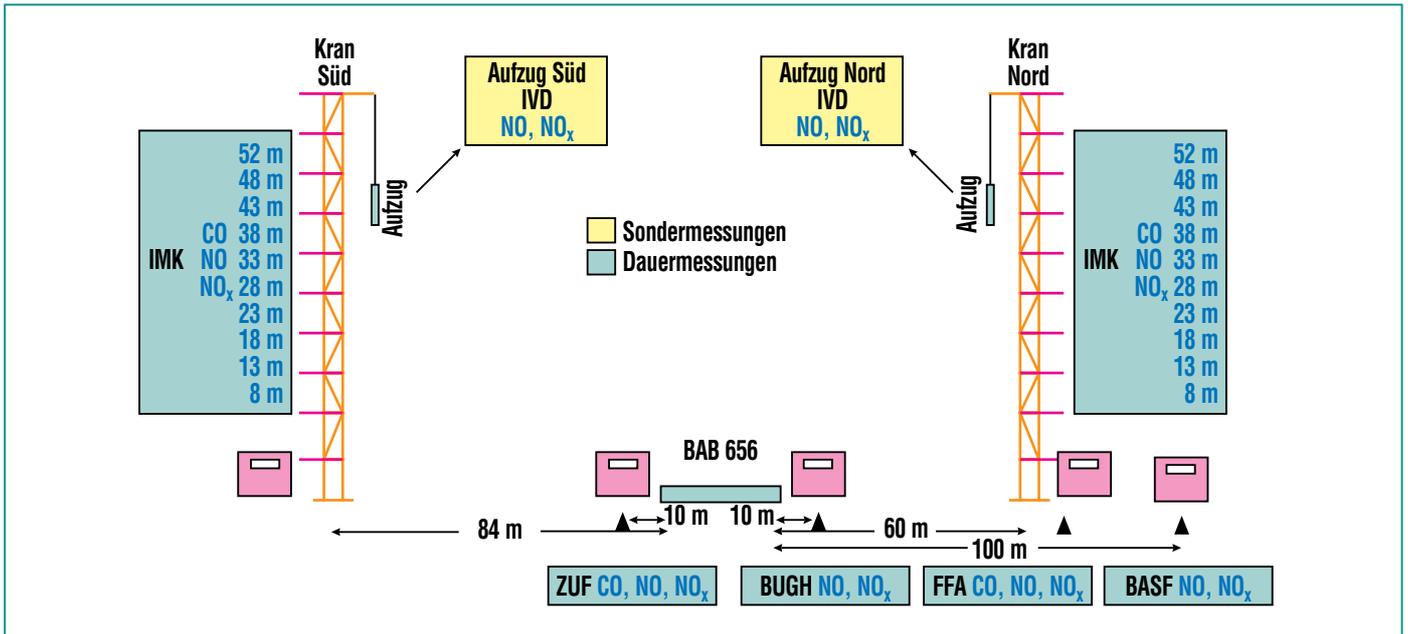


Abb. 2: Messaufbau während BAB II senkrecht zur Autobahn 656 am Beispiel der Größen NO, NO<sub>x</sub> and CO. Die roten Container markieren die Positionen der Messungen am Boden.



Abb. 3: Messturm mit Instrumentierung und Aufzug.

### Das Messprogramm BAB II

Die Messungen im Rahmen von BAB II fanden vom 1. bis 25. Mai 2001 auf einem landwirtschaftlich genutzten Gelände beiderseits der Autobahn 656 bei Heidelberg-Wieblingen statt (Abb. 1). Eingebettet in diesen Zeitraum für kontinuierliche Messungen waren 8 Intensivmessphasen von jeweils 24 h Dauer. Auf der Südseite der Autobahn wurden an zwei Punkten, auf der Nordseite an drei Punkten die Konzentrationen für die Substanzen NO, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, CO, CO<sub>2</sub> und für bis zu 26 Kohlenwasserstoffe (VOC) gemessen (Abb. 2).

Zur Erfassung der Vertikalprofile ist auf jeder Seite der Autobahn ein 52 m hoher Kranturm aufgestellt worden (Abb. 3). Die Konzentrationen von NO, NO<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub> wurden in 10 Höhen, die von Ozon in

3 Höhen kontinuierlich über den gesamten Untersuchungszeitraum gemessen. Während der Intensivmessphasen wurden auch die Kohlenwasserstoffe im Luv in 3 Höhen und im Lee in 6 Höhen registriert. Partikelmessungen wurden nördlich der Autobahn in 3 Höhen und südlich davon in 2 Höhen durchgeführt. Zusätzliche Informationen über die vertikale Verteilung von NO, NO<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> lieferten Profildfahrten mit Aufzügen während der Intensivmessphasen. An der Basis der Türme wurden Partikelmessungen (Größenverteilung, Massenkonzentration) im Dauerbetrieb durchgeführt.

Zur Verkehrserfassung wurden vom Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung (IER) der Universität Stuttgart Geschwindigkeitsmessungen auf allen 4 Fahrspuren durchgeführt [1]. Ferner wurden die Fahrzeugkennzeichen mit Video-

kameras aufgezeichnet. Dies erlaubt eine Einordnung der Fahrzeuge in die Klassen Motorräder, Pkw/Kombi, leichte Nutzfahrzeuge, Lkw, Sattelzüge und Busse. Über die aufgezeichneten Kennzeichen werden beim Kraftfahrtbundesamt die emissionsrelevanten Daten der Fahrzeuge abgerufen. Dies sind: Fahrzeugart, Antriebsart (Otto-/Dieselmotor), Hubraum, Schadstoffminderungsstechnik, Einstufung in Schadstoffklassen, zulässige Gesamtmasse und Datum der Erstzulassung.

Die Einhaltung vorgegebener maximaler Messfehler wurde durch ein Qualitätssicherungsprogramm für NO, NO<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> (Stoffgruppe A), Kohlenwasserstoffe (Stoffgruppe B) und Partikel (Stoffgruppe C) gewährleistet: Die Analytoren für die Stoffgruppen A und B wurden vor und nach dem Messprogramm sowohl mit zertifizierten Prüfgasen beaufschlagt als auch zu einer mehrtägigen Außenluftparallelmessung zusammengezogen. Die Durchführung und Überwachung der Qualitätssicherung oblag dem Institut für Verfahrenstechnik und Dampfesselwesen der Universität Stuttgart. Das Institut für Physikalische Chemie der Universität Wuppertal überwachte durch Kontrollmessungen mit einem bekannten und ebenfalls zertifizierten 30-Komponenten-Kohlenwasserstoffgemisch die Qualität der VOC Messungen.

### Gemessene Emissionen

Bei autobahnsekrechter Anströmung werden luv- und leeseitig unterschiedliche Spurenstoffpro-

file gemessen. Im Luv der Autobahn wird unter den vorgegebenen Bedingungen ein über alle Messhöhen hinweg konstantes Profil registriert. Auf der Leeseite ist, bedingt durch die Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs auf der Autobahn, die Ausbildung einer Abgasfahne zu beobachten.

Abb. 4 zeigt einen solchen Fall bei nordöstlicher Anströmung der Autobahn für CO und NO<sub>x</sub>. Die Fahnenhöhe liegt hier am 11. Mai 2001 zwischen 12 Uhr und 18 Uhr im Mittel zwischen 25 m und 30 m. Im unteren Messniveau (8 m) ist im Lee die CO-Konzentration um 50 ppb und die NO<sub>x</sub>-Konzentration um 15 ppb gegenüber den Messungen im Luv erhöht.

Die zusätzlich zu den Spurenstoffmessungen ausgeführten Partikelmessungen lassen ebenfalls die Ausbildung einer Abluftfahne im Lee der Autobahn er-

kennen. Abb. 5 zeigt exemplarisch für die Vielzahl der eingesetzten Messsysteme Ergebnisse des ELPI-Systems (Electrostatic Low Pressure Impactor) vom Paul Scherrer Institut in der Schweiz. Das ELPI wurde am 14. Mai 2001 bei Südwestwind im Aufzug des Nordturms, also leeseitig der Autobahn betrieben. Pro Stunde wurden je 6 Auf- und Abstiege mit dem Aufzug gefahren. Die Vertikalprofile liegen somit in einer zeitlichen Auflösung von ca. 6 Minuten vor. In der Abbildung ist exemplarisch für zwei Aufstiege die Anzahlkonzentration in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser (D<sub>p</sub>) und der Höhe über Grund aufgetragen. Die beiden Vertikalprofile zeigen bis zu einer Höhe von 20 m über Grund im Partikelbereich < 0.2 µm und im Partikelbereich > 1 µm deutliche Erhöhungen der Anzahlkonzentrationen.

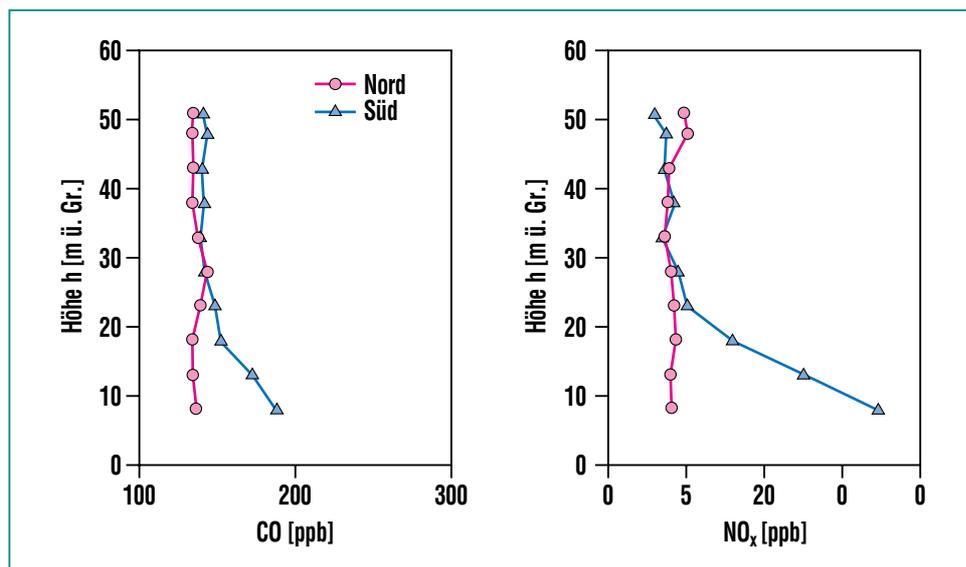


Abb. 4: Mittlere Vertikalprofile für CO (links) und NO<sub>x</sub> (rechts) am 11. Mai 2001 zwischen 12 Uhr und 18 Uhr bei nordöstlicher Anströmung (39°). Das Profil mit Punktmarkierungen zeigt Messungen im Luv, dasjenige mit Dreieckmarkierungen Messungen im Lee der Autobahn. Die Emissionen des Verkehrs bilden eine Abluftfahne zwischen 25 m und 30 m Höhe aus.

Die Konzentrationserhöhung im Feinstpartikelbereich wird hauptsächlich durch direkte Rußemissionen aus dem Auspuff der Fahr-

zeuge und durch kondensierte Schwefelsäurepartikel verursacht, während die erhöhten Werte für die größeren Partikel

auf Reifenabrieb, zusammengewachsene Rußpartikel und die Aufwirbelung von sedimentierten Partikeln durch den Fahrbetrieb zurückzuführen sind.

### Berechnete und modellierte Emissionen

Über den gesamten Messzeitraum hinweg konnten insgesamt 262 Einzelprofile jeweils für  $\text{NO}_x$  und CO ausgewertet werden. Die Berechnung der Quellstärken aus den Einzelprofilen führt zu einem Wochengang der Emissionen auf der A656. In Abb. 6 sind die experimentell ermittelten mittleren Tageswerte der Wochentage dargestellt (EXP).

Zum Vergleich sind zusätzlich die Emissionen, die vom IER der Universität Stuttgart aus Modellrechnungen bestimmt wurden angegeben (MOD), [1]. Die für die Rechnungen notwendigen Verkehrsstärken wurden aus einer automatischen Zählstelle abgeleitet und mit den Daten der detaillierten Verkehrserfassung korreliert. Somit steht ein homogener Verkehrsdatensatz für den gesamten Untersuchungszeitraum zur Verfügung.

Die Quellstärke für  $\text{NO}_x$  liegt an Arbeitstagen bei  $3.5 \text{ kg h}^{-1} \text{ km}^{-1}$  und an Wochenenden bei  $1.6 \text{ kg h}^{-1} \text{ km}^{-1}$ . Die Übereinstimmung zwischen Messung und Modell ist hier sehr gut. Die gemessene Quellstärke für CO liegt an Arbeitstagen bei  $9.9 \text{ kg h}^{-1} \text{ km}^{-1}$  und an Wochenenden bei  $7.4 \text{ kg h}^{-1} \text{ km}^{-1}$ . Die berechneten Werte sind jeweils etwa 25% niedriger. Diese Abweichungen sind geringer als bei einem Vorexperiment 1997 [3]. Damals lagen die vom Modell be-

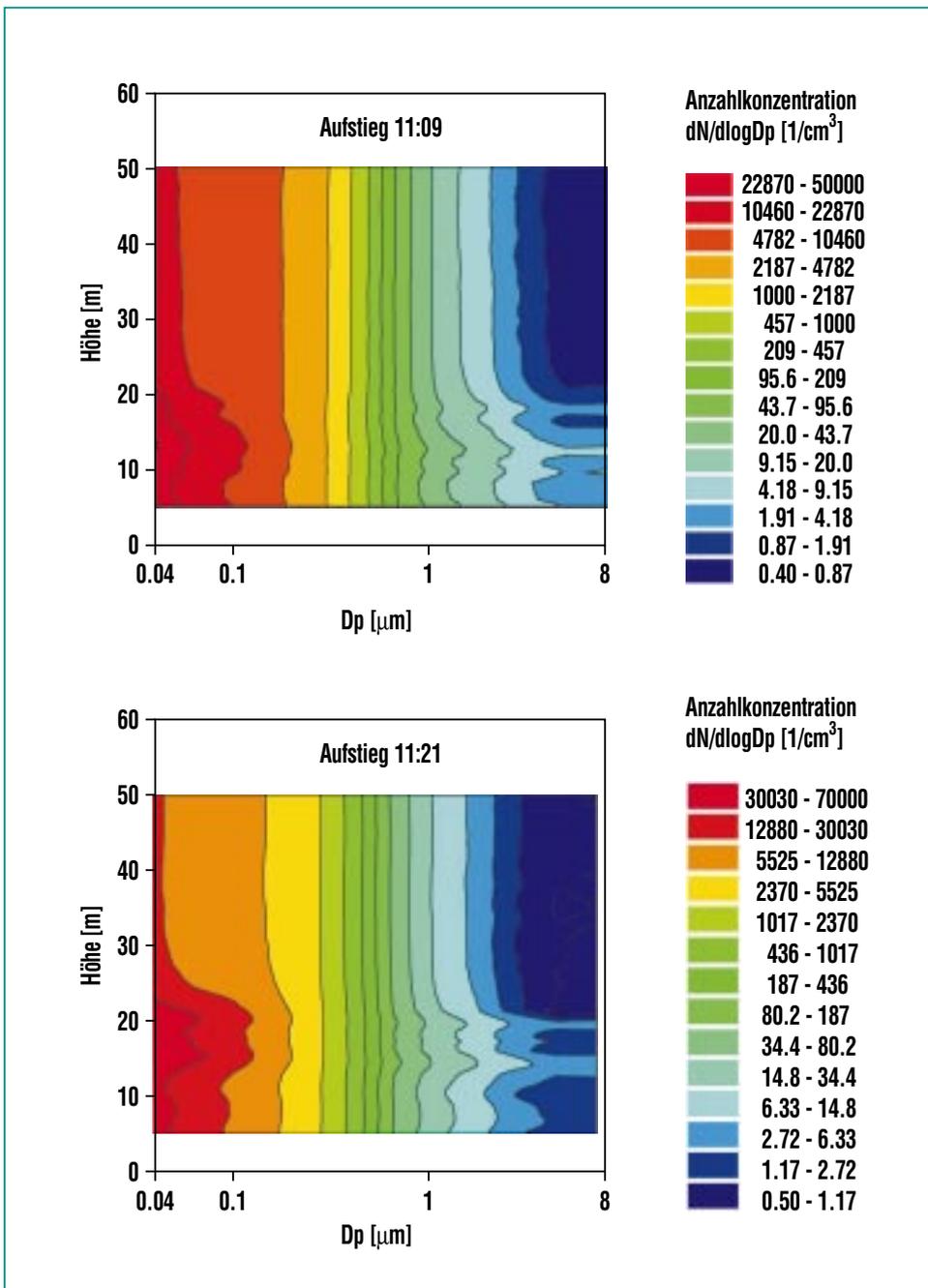


Abb. 5: Partikelgrößenverteilung im Lee der Autobahn. Das Beispiel zeigt zwei Vertikalprofile vom 14. Mai 2001. Aufgetragen ist der Partikeldurchmesser ( $D_p$ ) über der Höhe über Grund. Die Farben geben die Anzahlkonzentration einzelner Partikelgrößenklassen wieder. (Imhoff, PSI, Schweiz).

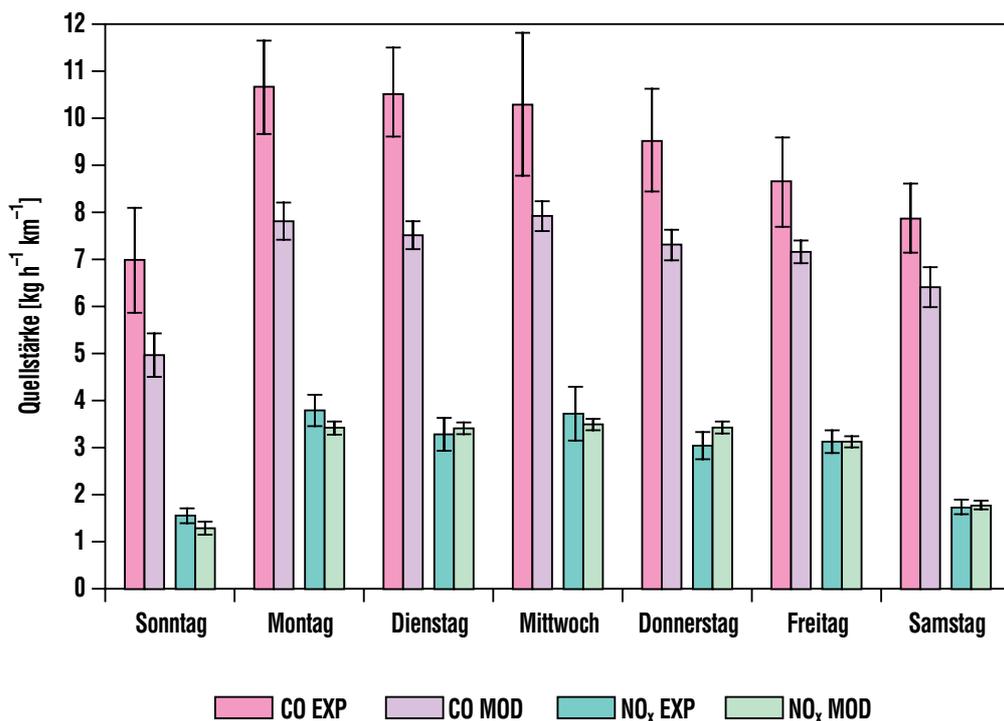


Abb. 6: Wochengang der Emissionen gemittelt zwischen 6:00 und 20:00 Uhr für CO und NO<sub>x</sub>. Die senkrechten Linien geben die Fehler an, mit denen die gemessenen (EXP) und die berechneten Emissionen (MOD) behaftet sind [1].

rechneten Werte nur bei etwa 50% der gemessenen realen Emissionen. Die heutige bessere Übereinstimmung konnte durch den optimierten Messaufbau und eine deutlich verbesserte Messtechnik, aber auch durch die gegenüber 1997 veränderten Annahmen über Emissionsfaktoren [2], Flottenzusammensetzung und Fahrmodi in den Modellrechnungen erreicht werden.

### Zusammenfassung

Im Mai 2001 wurde entlang der Bundesautobahn 656 bei Heidelberg ein Messprogramm zur experimentellen Bestimmung der Emissionen des Kraftfahrzeugverkehrs durchgeführt. Ziel war es, die Gü-

te von statistisch-numerisch berechneten Emissionen zu überprüfen. Erfahrungen, die 1997 durch ein Vorexperiment an gleicher Stelle gewonnen werden konnten [3], schlugen sich in einem optimierten und aufwendigeren Messaufbau nieder. Zusätzlich wurde das Messprogramm durch Partikelmessungen ergänzt.

Es stellen sich bei autobahnsekrechter Anströmung luv- und leeseitig unterschiedliche Konzentrationsprofile ein. Sie werden zur Bestimmung der durch den Kraftfahrzeugverkehr verursachten Emissionen herangezogen.

Eine detaillierte Verkehrserfassung vor Ort, in Verbindung mit Daten einer automatischen Ver-

kehrszählstelle, lieferten für den gesamten Messzeitraum einen aussagekräftigen Datensatz über die Verkehrsstärke und die Zusammensetzung der Fahrzeugflotte. Dieser Datensatz dient zur Berechnung der Emissionen durch ein numerisches Modell. Dabei werden auf Motorprüfständen gewonnene Emissionsfaktoren benutzt [2].

Ein Vergleich zwischen experimentell und statistisch-numerisch ermittelten Emissionen zeigt für Stickoxide eine gute Übereinstimmung. Für Kohlenstoffmonoxid dagegen wurden die Emissionen im Modell um 25% unterschätzt.

---

---

## Literatur

- [1] J. Kühlwein, R. Friedrich, 2001: *Verkehrsmessung, Emissionsmodellierung und Datenauswertung. Endbericht zur Durchführung eines Teilvorhabens im Rahmen des vom IMK durchgeführten Forschungsvorhabens „Emissionsnahe Überprüfung Kfz-bedingter Immissionen“*. Interner Bericht, 22 S.
- [2] UBA, 1999: *Umweltbundesamt, Berlin (Hrsg.); Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Bern (Hrsg.), INFRAS AG, Bern (Bearb.): Handbuch für Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs: Version 1.2 (erschieden als Software auf CD-Rom)*. Berlin 1999
- [3] B. Vogel, U. Corsmeier, H. Vogel, F. Fiedler, J. Kühlwein, R. Friedrich, A. Obermeier, J. Weppner, N. Kalthoff, D. Bäumer, A. Bitzer, K. Jay, *Atmospheric Environment* 34, 2437-2450

# Numerische Simulation der räumlichen und zeitlichen Verteilung gas- und partikelförmiger Luftbeimengungen im Nahbereich von Autobahnen

D. Bäumer, B. Vogel, F. Fiedler, IMK

## Einleitung

Der Kraftfahrzeugverkehr stellt nach wie vor eine wesentliche Quelle für schädliche Luftbeimengungen dar. Neben den gasförmigen Emissionen werden als Folge der Verbrennungsprozesse auch Partikel wie z.B. Ruß direkt in die Atmosphäre emittiert. Durch Abriebprozesse an Reifen und Bremsen und durch Aufwirbelungen von Straßenstaub werden ebenfalls Partikelemissionen hervorgerufen. Als Folge der gasförmigen Emissionen können sich Produkte wie Photooxidantien bilden, zu deren prominentesten Vertretern das bodennahe Ozon gehört. Auch so genannte Sekundärpartikel können als Folge der gasförmigen Emissionen entstehen.

Um die Immissionskonzentrationen im Lee einer Autobahn quantifizieren und prognostizieren zu können, sind numerische Simulationen erforderlich. Die numerischen Modelle, die zur Beschreibung der Konzentrationsverteilungen im Nahfeld der Verkehrswege herangezogen werden, müssen neben der atmosphärischen Turbulenz auch die zusätzliche Turbulenz berücksichtigen, die durch den Kraftfahrzeugverkehr hervorgerufen wird. Solche Parametrisierungen existieren bisher nur in stark vereinfachter Form. Basierend auf Messungen, die federführend vom Forschungszentrum unter Beteiligung nationaler und internationaler Messgruppen durchgeführt wurden [1], konnte eine neue Parametrisierung der kraftfahrzeuginduzierten Turbulenz entwickelt und in das Modellsystem KAMM/DRAIS [2, 3] integriert werden.

Durch Vergleich von simulierten mit gemessenen Konzentrationsverteilungen lässt sich die Güte der neuen Parametrisierung überprüfen. Mit dem so verbesserten Modell soll der Frage nachgegangen

werden, wie die durch die Fahrzeuge hervorgerufene Turbulenz die Konzentrationsverteilungen von gas- und partikelförmigen Luftbeimengungen im Nahbereich einer Autobahn beeinflusst.

## Die Parametrisierung der autobahninduzierten Turbulenz

Für die Simulationen der räumlichen und zeitlichen Verteilung von Luftbeimengungen im Nahfeld eines Autobahnabschnittes wurde das oben erwähnte Modellsystem KAMM/DRAIS verwendet. Dabei wird die Diffusionsgleichung in zweidimensionaler Form numerisch gelöst:

$$\frac{\partial \bar{c}_i}{\partial t} = -\bar{u} \frac{\partial \bar{c}_i}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} K_{xx} \frac{\partial \bar{c}_i}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial z} K_{zz} \frac{\partial \bar{c}_i}{\partial z} + \bar{P}_i + \bar{L}_i + (\bar{Q}_i) \quad (1)$$

Darin bezeichnet  $c_i$  die Konzentration einer Substanz  $i$ ,  $u$  die straßen-senkrechte Windkomponente,  $P_i$  und  $L_i$  Produktion und Verlust durch chemische Umwandlungen und  $Q_i$  die Emissionen. Die Querstriche kennzeichnen ein zeitliches Mittel. Die horizontalen Diffusionskoeffizienten  $K_{xx}$  und die vertikalen Diffusionskoeffizienten  $K_{zz}$  setzen sich dabei aus einem atmosphärischen (Atm) und einem autobahninduzierten Anteil (AB) zusammen:

$$\begin{aligned} K_{xx} &= K_{xx,Atm} + K_{xx,AB} \\ K_{zz} &= K_{zz,Atm} + K_{zz,AB} \end{aligned} \quad (2)$$

Für die Parametrisierung der autobahninduzierten Diffusionskoeffizienten wird von einer Gleichung ausgegangen, die die zeitliche und räumliche Entwicklung der turbulenten kinetischen Energie  $e$  beschreibt.

$$\frac{\partial \bar{e}}{\partial t} = -\bar{u} \frac{\partial \bar{e}}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} K_{xx} \frac{\partial \bar{e}}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial z} K_{zz} \frac{\partial \bar{e}}{\partial z} + \bar{P}_V + \bar{P}_D - \epsilon \quad (3)$$

$\bar{P}_V$  ist die Produktion der turbulenten kinetischen Energie durch den Verkehr,  $\bar{P}_D$  ist die Produktion durch das Strömungshindernis, welches der Damm, auf dem die Strasse verläuft, darstellt.  $\epsilon$  ist die Energiedissipation. Für die Produktionsterme und die Energiedissipation wurden folgende Parametrisierungen entwickelt.

$$\bar{P}_V = \frac{1}{2} \cdot c_{g,D} \cdot W \cdot H \cdot V^2 \cdot F \quad (4)$$

$$\bar{P}_D = \frac{1}{2} \cdot c_{g,D} \cdot H_D \cdot u^3 \quad (5)$$

$$\epsilon = 0.1 \cdot \frac{\bar{e}^{1.5}}{H} \quad (6)$$

$c_d$  ist der Widerstandsbeiwert (0.3 für PKW, 0.9 für LKW),  $W$  die Breite (1.8 m, 2.4 m),  $H$  die Höhe (1.4 m, 3.5 m) und  $V$  ist die Geschwindigkeit ( $33 \text{ m s}^{-1}$ ,  $22 \text{ m s}^{-1}$ ) der Fahrzeuge.  $F$  ist die zeitlich variierende Verkehrsstärke.  $c_{d,D}$  ist der Widerstandsbeiwert (0.12) und  $H_D$  die Höhe des Fahrbahndammes (1.0 m). Gleichung (3) wird numerisch integriert. Aus der berechneten Verteilung der turbulenten kinetischen Energie werden schließlich die Diffusionskoeffizienten  $K_{xx,AB}$  und  $K_{zz,AB}$  wie folgt bestimmt:

$$\begin{aligned} K_{xx,AB} &= W \cdot \bar{e}^{1/2} \\ K_{zz,AB} &= H \cdot \bar{e}^{1/2} \end{aligned} \quad (7)$$

$K_{xx,Atm}$  und  $K_{zz,Atm}$  werden mit Parameterisierungen berechnet, welche quellentfernungsabhängige

Diffusionskoeffizienten liefern. Dies trägt der in Abb. 1 skizzierten Tatsache Rechnung, dass mit zunehmendem Abstand immer größere Wirbel aus dem atmosphärischen Turbulenzspektrum zur Verdünnung der auf der Straße emittierten Luftbeimengungen beitragen [4,5]. Neben dem Abstand von der Quelle hängen die Diffusionskoeffizienten  $K_{xx,Atm}$  und  $K_{zz,Atm}$  auch von der atmosphärischen Temperaturschichtung und von der Windscherung ab.

### Vergleiche von Modellergebnissen mit Messungen

Während der Messkampagne BABII an der Autobahn Mannheim-Heidelberg wurden neben den Konzentrationsmessungen

von gas- und partikelförmigen Luftbeimengungen auch Turbulenzmessungen auf beiden Seiten der Autobahn durchgeführt. Die Messstellen sind in Abb. 2 skizziert. Die Autobahn verläuft in Höhe der Messstellen auf einer größeren Strecke geradlinig, so dass man von zweidimensionalen Verhältnissen ausgehen kann. Abb. 3 zeigt zum einen die gemessene Differenz der normierten Turbulenzenergie für die Daten der Messstellen 1 und 2. In diese Kurve flossen die Messdaten sämtlicher Wochentage ein. Während der verkehrsarmen Zeit zwischen 22 Uhr und 5 Uhr ist die Energiedifferenz nahezu konstant, aber signifikant von Null verschieden. Dies ist auf die Turbulenzproduktion infolge der Dammüberströmung zurückzuführen. Abb. 3

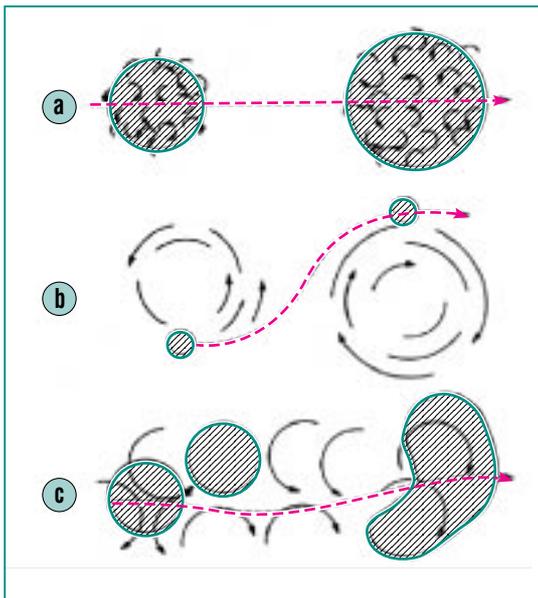


Abb. 1: Nur atmosphärische Wirbel, deren Durchmesser kleiner als die Ausdehnung einer betrachteten Luftbeimengungswolke sind, können zur Verdünnung der Luftbeimengung beitragen (a, c). Größere Wirbel bewirken lediglich eine Verlagerung der Luftbeimengungswolke (b).

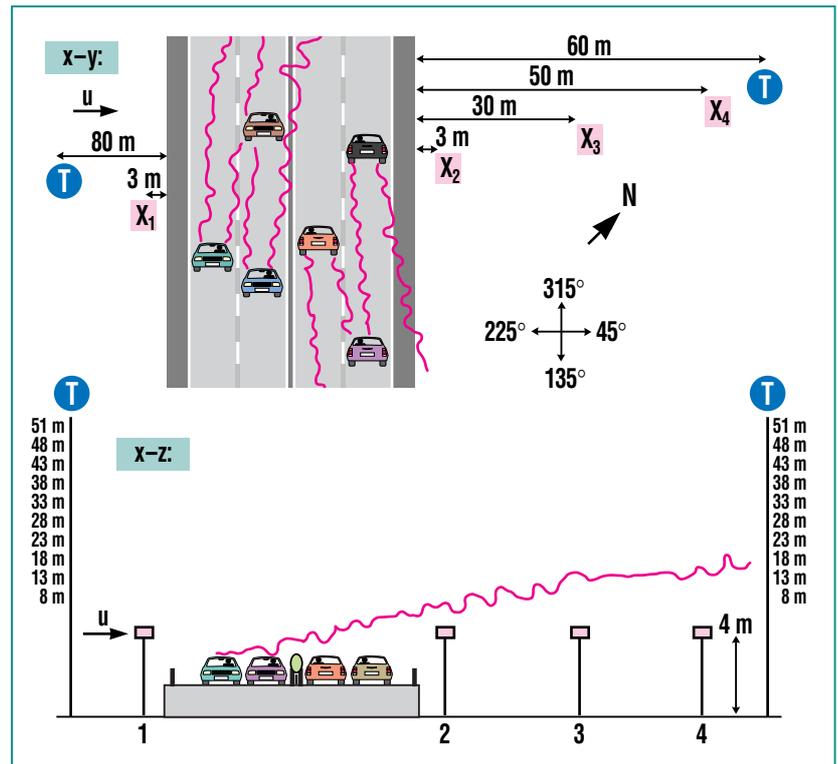
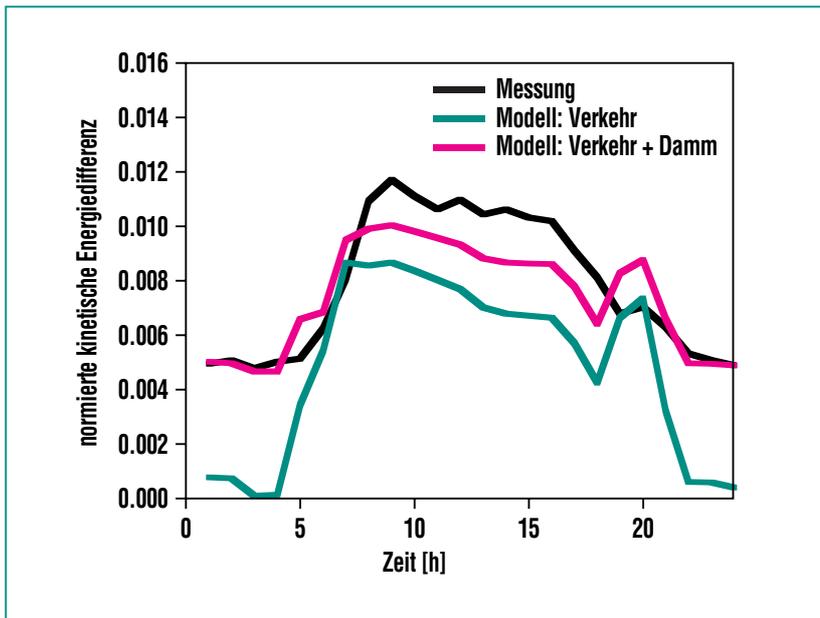


Abb. 2: Der Messaufbau für Konzentrations- und Turbulenzmessungen an der Autobahn.



**Abb. 3: Mittlerer Tagesgang der Differenz der an Mast 1 und Mast 2 gemessenen normierten turbulenten kinetischen Energie an Wochentagen.**

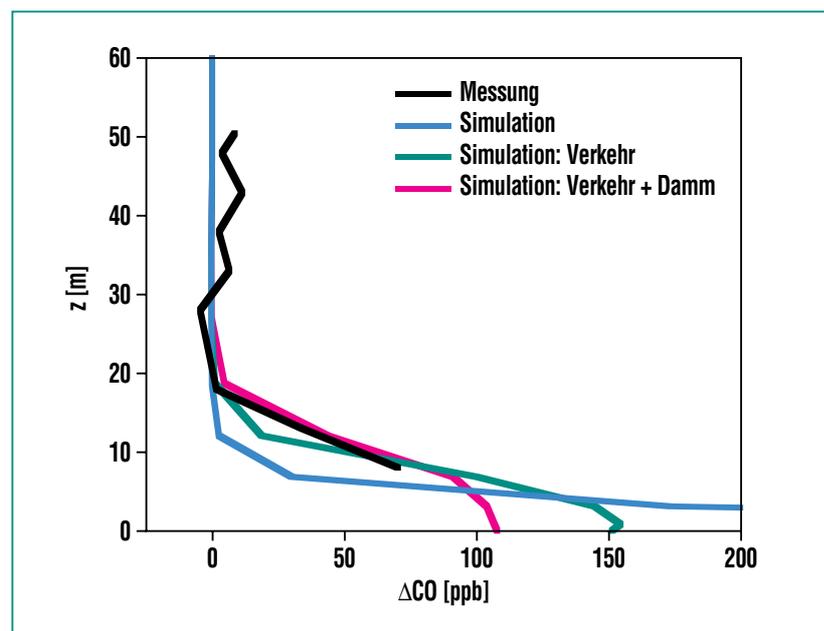
zeigt zum anderen auch die simulierte Differenz der normierten turbulenten kinetischen Energie gemäß Gleichung 3 und zwar zuerst die Turbulenzproduktion durch den Verkehr alleine (Gleichung 4) und dann die Turbulenzproduktion durch Verkehr und Dammüberströmung (Gleichung 5) zusammen. Bei Berücksichtigung beider Turbulenzbeiträge stimmen die simulierten Werte recht gut mit den Beobachtungen überein.

### Die Auswirkung der autobahninduzierten Turbulenz auf die Konzentrationsverteilungen

Unter Vorgabe von Emissionsdaten, die speziell für den betrachteten Autobahnabschnitt bestimmt wurden, wobei neben Emissionsfaktoren auch die gemessenen Ver-

kehrsstärken und Geschwindigkeiten sowie die beobachtete Flottenzusammensetzung einfließen [6], wurden Ausbreitungsrechnungen

durchgeführt. Abb. 4 zeigt die simulierten und die gemessenen Vertikalprofile der Konzentrationsdifferenz von Kohlenmonoxid (CO). Die Konzentrationsmessungen wurden an den in Abb. 2 mit T bezeichneten Messtürmen gewonnen. Es wurden drei Simulationen durchgeführt. Bei der ersten wurden sowohl die durch den Verkehr als auch die durch die Dammüberströmung erzeugte Turbulenz vernachlässigt, bei den beiden anderen wurden diese Terme nach und nach hinzugezogen. Im ersten Fall ist die simulierte Fahnenhöhe mit 12 m deutlich zu niedrig, die simulierten Konzentrationen sind viel zu hoch. Die Parametrisierung der fahrzeuginduzierten Turbulenz führt zu einer wesentlich größeren vertikalen Durchmischung und dadurch zu einem Ansteigen der Fahnenhöhe. Die geringste Abweichung weist die Simulation mit der kompletten Parametrisierung der autobahninduzierten Turbulenz auf.



**Abb. 4: Simuliertes und gemessenes Vertikalprofil der CO-Differenz (Lee-Luv) am 16.05.2001 um 6:00 Uhr.**

Während CO auf der betrachteten Skala als ein nahezu inertes Gas angesehen werden kann, trifft dies für Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO<sub>2</sub>) nicht zu. Kraftfahrzeuge emittieren im Wesentlichen NO, welches dann im Laufe des Ausbreitungsvorganges bei Vorhandensein von Ozon in NO<sub>2</sub> umgewandelt wird. Das Verhältnis der direkten Emissionen von NO zu denen von NO<sub>2</sub> ist 9:1. Wie schnell die Umwandlung im Nahbereich der Straße vonstatten geht, ist unter anderem deshalb von Interesse, weil NO<sub>2</sub> erheblich wasserlöslicher ist als NO und daher eher in der Lunge aufgenommen wird. Abb. 5 zeigt die simulierten horizontalen Konzentrationsverteilungen von NO und NO<sub>2</sub> um 13 Uhr in 0.8 m Höhe. Die chemische Umwandlung von NO in NO<sub>2</sub> zeigt sich in einem rascheren Abfall der NO Konzentration mit zunehmendem Abstand von der Straße. Bei Vernachlässigung der autobahninduzierten Turbulenz ergeben sich deutlich höhere Konzentrationen von NO

und NO<sub>2</sub> im Nahbereich der Straße. Dies unterstreicht erneut die Notwendigkeit der Berücksichtigung der autobahninduzierten Turbulenz in Ausbreitungsmodellen.

Durch Abriebprozesse an Reifen, Bremsen und dem Straßenbelag und durch Aufwirbelungen von Straßenstaub werden Partikelemissionen hervorgerufen. Die Durchmesser der auf diese Weise erzeugten Partikel erstrecken sich über einen Größenbereich von D = 1 bis 100 µm. Die unterschiedliche Größe der Partikel bedingt unterschiedliche Sedimentationsgeschwindigkeiten und somit auch unterschiedliche Reichweiten. Um zu quantifizieren, wie sich die Größenverteilung der auf einer Straße emittierten Partikel mit zunehmendem Abstand von der Straße verändert und wie diese Veränderung durch die autobahninduzierte Turbulenz beeinflusst wird, wurden ebenfalls numerische Simulationen durchgeführt. Die Koagulation der Partikel

untereinander wurde bei den Simulationen vernachlässigt. Diese Annahme ist auf Grund der zu erwartenden geringen Teilchenzahl-dichten gerechtfertigt.

Die Abb. 6 zeigt simulierte Größenverteilungen der Massendichte grober Partikel um 13 Uhr in 50 m Abstand im Lee der Autobahn. Dargestellt sind die Ergebnisse in den Höhen 0.8 und 3.0 m und zwar zum einen unter Vernachlässigung und zum anderen bei Berücksichtigung der autobahninduzierten Turbulenz. Es fällt auf, dass in beiden Höhen ein Bereich existiert, in dem sich die autobahninduzierte Turbulenz unterschiedlich auf die Massendichten auswirkt. Bei Partikeldurchmessern von 20 bzw. von 40 µm wirkt sich die autobahninduzierte Turbulenz nicht auf die Massendichte aus. Bei größeren Partikeln erzeugt die autobahninduzierte Turbulenz eine Erhöhung der Massendichten. Dies liegt darin begründet, dass im Quellbereich die Partikel in größere Höhen

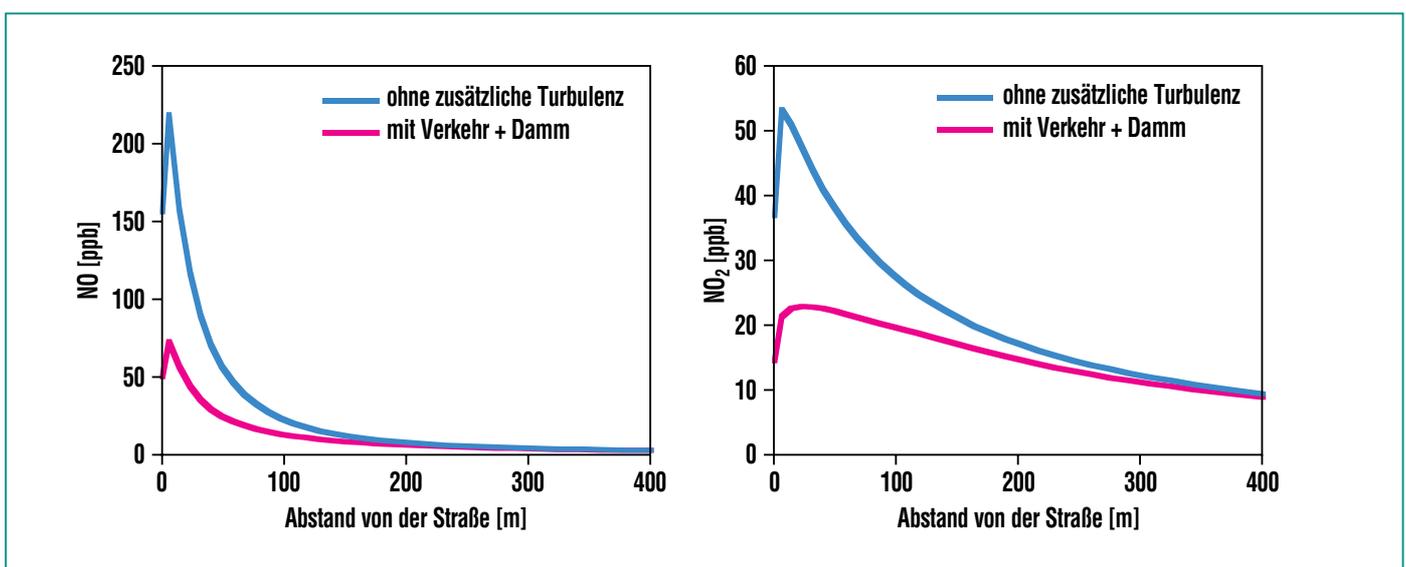


Abb. 5: Simulierter Konzentrationsverlauf in 0.8 m über Grund um 13 Uhr für NO (links) und NO<sub>2</sub>(rechts).

transportiert werden. Dadurch erhöht sich die Reichweite der Partikel.

## Zusammenfassung

Es wurde eine neue Parametrisierung entwickelt, die es ermöglicht, die durch den Verkehr bzw. durch den Straßendamm hervorgerufene zusätzliche Turbulenz in einem numerischen Ausbreitungsmodell zu berücksichtigen. Mit Hilfe von Messungen im Nahbereich einer Autobahn wurde das Modell überprüft. Mit dem so erweiterten Ausbreitungsmodell wurden die Konzentrationsverteilungen von gas- und partikelförmigen Luftbeimengungen im Nahbereich einer Autobahn berechnet. Ein Vergleich mit gemessenen Konzentrationsverteilungen zeigte die Güte der neuen Parametrisierung. Simula-

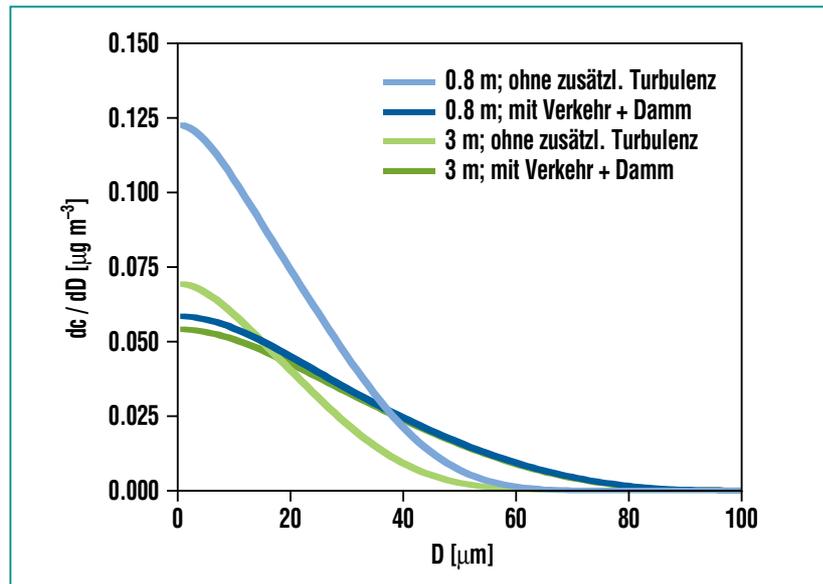


Abb. 6: Simulierte Größenverteilung der Partikel um 13 Uhr in 50 m Quellentfernung.

tionen, die unter Vernachlässigung der autobahninduzierten Turbulenz durchgeführt wurden,

unterstrichen deren Bedeutung für die im Nahbereich der Straße auftretenden Konzentrationen.

## Literatur

- |  |  |  |
|--|--|--|
| [1] U. Corsmeier, M. Kohler, B. Vogel, F. Fiedler, <i>vorliegende Ausgabe der Nachrichten.</i> | [3] Bäumeier, <i>Dissertation, Inst. Meteorol. Klimaforsch., Univ. Karlsruhe, 2002.</i>    | [5] C. Keil, <i>Diplomarbeit, Inst. Meteorol. Klimaforsch., Univ. Karlsruhe, 1996.</i> |
| [2] B. Vogel, F. Fiedler, H. Vogel, <i>J. Geophys. Res., 100, 22907-22928, 1995.</i>           | [4] G. Degrazia, <i>Dissertation, Inst. Meteorol. Klimaforsch., Univ. Karlsruhe, 1988.</i> | [6] J. Kühlwein, <i>Projektbericht, IER, Univ. Stuttgart, 2002.</i>                    |

# Prozessstudien zur Bildung von salpetriger Säure in der Troposphäre mittels numerischer Simulationen

B. Vogel, H. Vogel, IMK

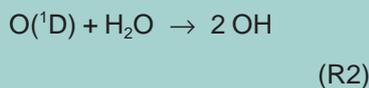
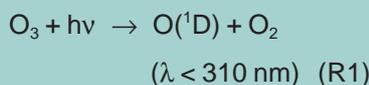
## Die Bedeutung der salpetrigen Säure für die chemische Zusammensetzung der Troposphäre

Eine Vielzahl von gas- und partikelförmigen Spurenstoffen gelangt aus natürlichen und anthropogenen Quellen in die Atmosphäre. Dort werden sie dann mit der vorherrschenden Strömung verfrachtet, durch turbulente Diffusion verdünnt und mit anderen Luftbestandteilen vermischt. Gleichzeitig werden die Spurenstoffe durch chemische Reaktionen umgewandelt und abgebaut. Da die Quantifizierung der Wechselwirkung zwischen diesen physikalischen und chemischen Prozessen durch Feldmessungen na-

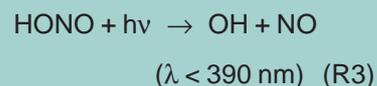
hezu unmöglich ist, kommt der numerischen Modellierung auf diesem Gebiet eine bedeutende Rolle zu. Auf der anderen Seite ist die Modellierung auf Messungen im Labor und auf Beobachtungsdaten in der Atmosphäre angewiesen.

Der chemische Abbau der gasförmigen Spurenstoffe in der Atmosphäre erfolgt fast ausschließlich durch das Hydroxylradikal (OH). Seine Konzentration ist zwar extrem niedrig (~0.01 ppt entsprechend ~1 OH auf  $10^{14}$  Luftmoleküle), sie kontrolliert aber die Lebensdauer der meisten Spurenstoffe in der Atmosphäre. Folglich hat die OH-Konzentration auch einen entscheidenden Einfluss darauf, wie weit ein Stoff in der Atmosphäre transportiert wird. Folgeprodukte der Reaktionen sind z.B. Photooxidantien wie Ozon, aber auch wasserlösliche Stoffe wie beispielsweise  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , die vom Regen aus der Atmosphäre ausgewaschen werden können. Aus diesem Grund ist es von großer Bedeutung, die Quellen des OH-Radikals zu kennen.

Die wichtigste Bildungsreaktion von OH in der reinen Atmosphäre ist die Photolyse von Ozon:



Eine weitere Reaktion, die in verunreinigter Luft zur Bildung des Hydroxylradikals führt, ist die Photolyse der salpetrigen Säure (HONO):



Um die OH-Produktion durch die Reaktion R3 modellieren zu können, muss man die Quellen der salpetrigen Säure kennen. Die einzige Gasphasenreaktion, die nennenswert zur HONO-Produktion beiträgt, ist die Reaktion von OH mit Stickstoffmonoxid (NO):



Bodennahe Messungen von HONO in der Atmosphäre zeigen, dass die maximalen Konzentrationen in den Nachtstunden auftreten, obwohl die OH-Konzentrationen in diesem Zeitraum nahe Null sind. Es muss daher in der Atmosphäre noch andere HONO-Quellen geben. Eine davon ist die direkte HONO-Emission durch den KFZ-Verkehr, die nach Messungen in einem Tunnel etwa 0,8 % der  $\text{NO}_x$ -Emission ausmacht [1]. In zahlreichen Laboruntersuchungen wurde ferner gefunden, dass  $\text{NO}_2$  an Oberflächen (z.B. an Aerosolpartikeln, oder am Boden) langsam in HONO umgewandelt wird. Schließlich wird auch über eine heterogene photochemische Quelle von HONO diskutiert, die aber bisher nicht durch Messungen quantifiziert werden konnte. Bezüglich aller Quellen existieren noch erhebliche Wissenslücken, vor allem hinsichtlich der Übertragbarkeit auf reale Bedingungen. Daher wurden am meteorologischen Messmast des Forschungszentrums (Abb. 1) Vertikalprofile der HONO-Konzentration zwischen 10 und 190 m über Grund und weitere für die HONO



Abb. 1: Der 200 Meter hohe Messmast des Forschungszentrums. Das kleine Bild zeigt einen Mitarbeiter der Gesamthochschule Wuppertal mit einem Teil der Messgeräte, die auf dem Dach des Mast-Aufzugs installiert waren.

Bildung relevante Größen gemessen. Ergänzend dazu wurden Modellsimulationen durchgeführt.

### Die Messungen

Die Messungen fanden vom 17. - 19. Oktober 2001 unter Beteiligung der Gesamthochschule Wuppertal [2] statt. Die Bestimmung von HONO-Konzentrationen in der Atmosphäre war bisher mit extremem Aufwand verbunden und nur mit sehr schlechtem zeitlichen Auflösungsvermögen möglich. Um Vertikalprofile am Messmast des Forschungszentrums zu erhalten, kam ein in Wuppertal neu entwickeltes HONO-Messgerät zum Einsatz [3,4], das eine zeitliche Auflösung von 5 min und eine Nachweisgrenze von 2 ppt entsprechend 2 Teilen HONO in 10<sup>12</sup> Teilen Luft hat. Zusätzlich wurden NO, NO<sub>2</sub> und die Aerosol-Größenverteilung gemessen. Außerdem werden am Messmast ständig Temperatur, Windgeschwindigkeit, Windrichtung, Feuchte und Turbulenz in

verschiedenen Höhen erfasst. Die Geräte zur Messung der Spurengase HONO, NO, NO<sub>2</sub> und der Aerosol-Größenverteilung wurden auf dem Dach des Mast-Aufzugs installiert. Vertikalprofile wurden erhalten, indem der Aufzug in verschiedenen Höhen jeweils 15 Minuten angehalten wurde. Bisher existieren weltweit keine vergleichbaren Messungen,

### Die Modellierung

Um die Bedeutung der verschiedenen Quellen für das HONO-Budget abzuschätzen, wurden die in Abb. 2 schematisch dargestellten Prozesse in die eindimensionale Version des Chemie-Transport-Modells KAMM/DRAIS [5, 6] integriert. Mit Hilfe von Modellsimulationen sollten folgende Fragen beantwortet werden:

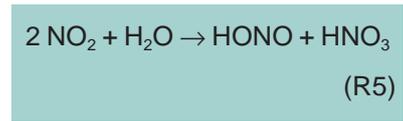
- Welchen Beitrag zur HONO-Bildung liefern die einzelnen Prozesse?

- Welchen Anteil hat die HONO-Photolyse an der OH-Produktion?

Die den Simulationen zu Grunde liegenden meteorologischen Bedingungen entsprechen dem Zeitraum 18 - 19. Oktober 2001, die zeitlich variierenden Emissionen der beteiligten Spurenstoffe entsprechen den Gegebenheiten der Umgebung des Forschungszentrums.

Die einzelnen HONO-Quellen werden im Modell wie folgt behandelt:

Direkte Emissionen durch den KFZ-Verkehr werden proportional zu den NO<sub>x</sub>-Emissionen vorgegeben. Die heterogene Produktion von HONO,



wird als Reaktion erster Ordnung an Oberflächen parametrisiert. Dabei werden Ergebnisse aus der o.g. Tunnelstudie zugrunde gelegt

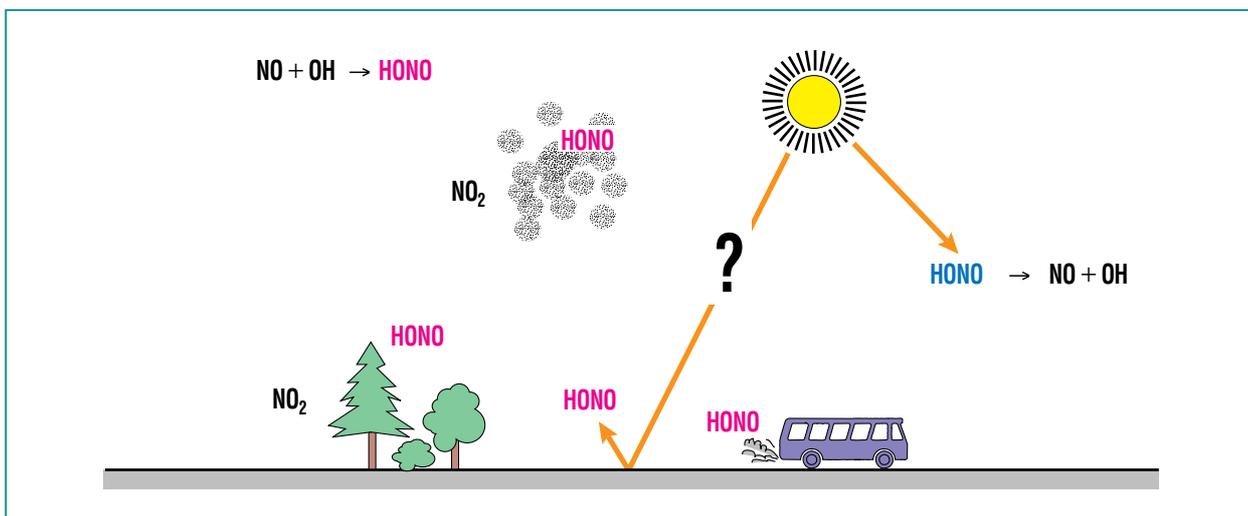


Abb. 2: Die wichtigsten in der Atmosphäre ablaufenden Prozesse, die an der Bildung von HONO beteiligt sind. Das Fragezeichen kennzeichnet die postulierte heterogene photochemische Reaktion.

[6]. Reaktion R5 kann an den im Modell simulierten Aerosolpartikeln in der Atmosphäre und an der Erdoberfläche selbst ablaufen.

Die Abb. 3 zeigt den simulierten zeitlichen Verlauf der HONO-Konzentration in Bodennähe im Vergleich zu den Beobachtungen, wenn nur die HONO-Reaktionen R3 und R4 berücksichtigt werden. Es zeigt sich, dass während des gesamten Tages das Berechnete deutlich unter dem Beobachteten liegt. Wie bereits vermutet, stellen sich in den Nachtstunden im Vergleich zu den Beobachtungen viel zu geringe HONO-Konzentrationen ein.

Bei Wiederholung der Simulation unter zusätzlicher Berücksichtigung der direkten HONO-Emissionen aus dem Kraftfahrzeugverkehr und der heterogenen Reaktionen an Oberflächen erhält man den in Abb. 4 dargestellten zeitlichen Verlauf. Die nächtlichen Verhältnisse werden vom Modell jetzt deutlich besser wiedergegeben, wenn man berücksichtigt, dass dem gemessenen Konzentrationsverlauf starke Schwankungen durch Turbulenz überlagert sind, die das Modell nicht im Detail beschreibt. Tagsüber dagegen sind die Unterschiede zwischen Messung und Rechnung unverändert. Zusätzliche Simulationen, deren Ergebnisse hier nicht dokumentiert sind, zeigen, dass der Beitrag der heterogenen Reaktion R5 an Aerosolpartikeln zur HONO-Bildung vernachlässigbar klein ist, und dass die direkten Emissionen von HONO durch den KFZ-Verkehr und die heterogene Reaktion R5 am unteren Rand der Atmosphäre zu etwa

gleichen Anteilen an der HONO-Bildung beteiligt sind.

Ein Vergleich von Messung und Rechnung für die Tagesstunden

zeigt, dass das Modell die HONO-Konzentrationen noch immer um etwa 30 % unterschätzt. Es wurde daher eine „photochemische“ HONO-Quelle berücksichtigt.

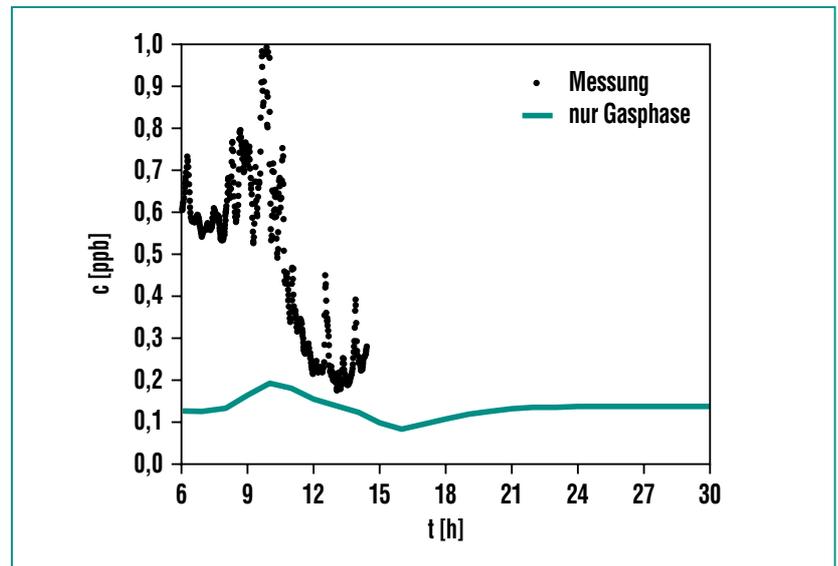


Abb. 3: Tagesgang der HONO-Konzentration. Die Punkte zeigen die Messungen, die grüne Kurve kennzeichnet den simulierten Verlauf, bei dem nur Gasphasenreaktionen berücksichtigt wurden.

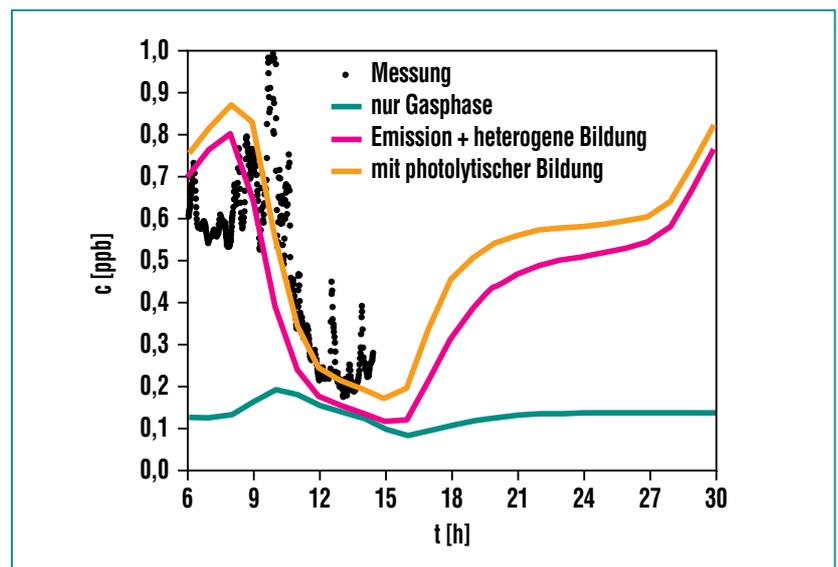


Abb. 4: Wie Abb. 3 – Die rote Kurve zeigt die Ergebnisse bei Berücksichtigung der direkten Emissionen von HONO durch den KFZ-Verkehr und der heterogenen Reaktionen an der Erdoberfläche sowie am Aerosol. Die orangefarbene Kurve zeigt das Ergebnis für den Fall, dass zusätzlich eine photochemische Quelle vorgegeben wird.

Dies geschieht im numerischen Modell durch die Vorgabe einer HONO-Emission am Erdboden, die proportional zur Sonneneinstrahlung ist. Erst bei Berücksichtigung dieser hypothetischen Quelle erreichen die simulierten HONO-Konzentrationen am Tage die Werte der Beobachtungen. Stellt man die fiktive photochemische Bildung den direkten Emissionen durch den KFZ-Verkehr gegenüber, ergibt sich, dass die photochemische Quelle 25mal stärker sein muss.

Diese Aussagen werden zusätzlich untermauert, wenn man den vertikalen Verlauf der HONO-Konzentration am Messmast des Forschungszentrums betrachtet. In Abb. 5 sind die gemessenen und simulierten HONO-Konzentrationen für einen Zeitraum zwischen 19 und 24 Uhr am 18. Oktober

2001 aufgetragen. Die Tatsache, dass die gemessenen HONO-Maximalwerte direkt am Boden auftreten und die Konzentrationen mit der Höhe deutlich abnehmen, untermauert die Aussage, dass HONO an der Erdoberfläche gebildet wird. Man könnte vermuten, dass die raschere Konzentrationsabnahme im Modell durch eine Unterschätzung der HONO-Bildung am Aerosol verursacht wird. Das lässt sich aber ausschließen, da dies eine um Zehnerpotenzen größere Oberfläche des Aerosols voraussetzen würde als tatsächlich gemessen und simuliert wurde. Es gibt vielmehr Hinweise darauf, dass vertikale Austauschprozesse von der verwendeten eindimensionalen Modellversion nicht hinreichend erfasst wurden.

Nun wurde der Frage nachgegangen, welchen Anteil die Photolyse von Ozon beziehungsweise die Photolyse von HONO an der OH-Bildung haben. Es zeigt sich, dass für die Bedingungen wie sie während der Messkampagne vorlagen, d.h. sehr niedrige Ozonkonzentrationen und niedrige Feuchte, die Photolyse von HONO in Bodennähe die dominierende OH-Quelle ist. Zusätzlich durchgeführte Rechnungen für sommerliche Bedingungen mit hohen Ozonkonzentrationen und hoher Feuchte zeigen ein anderes Bild (Abb. 6). Hier findet man zwar immer noch einen hohen Anteil der HONO-Photolyse R3 an der

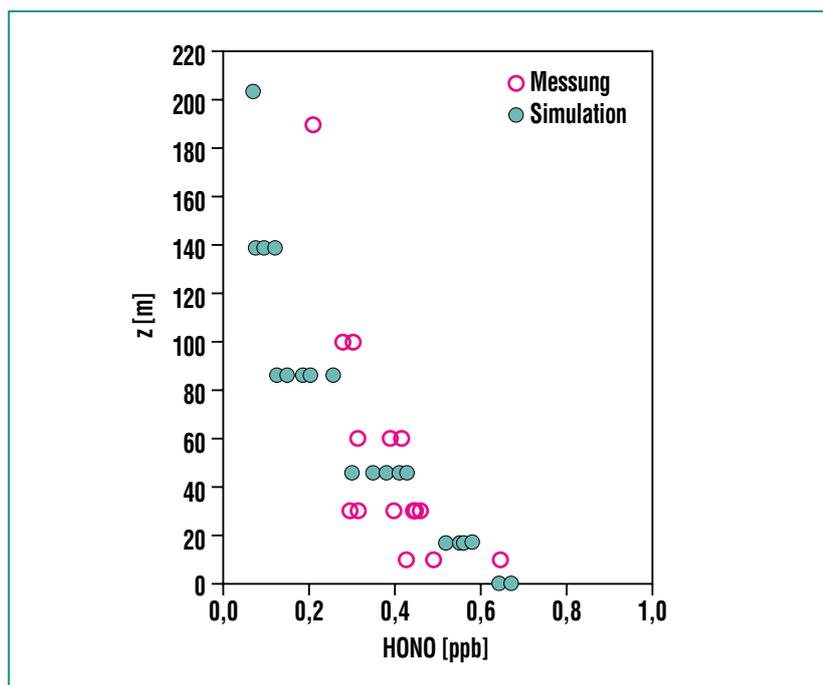


Abb. 5: Gemessene und mit dem vollständigen HONO-Bildungs- und Verlustmechanismus simulierte Vertikalprofile der HONO-Konzentration am 18. Oktober 2001 zwischen 19 und 24 Uhr.

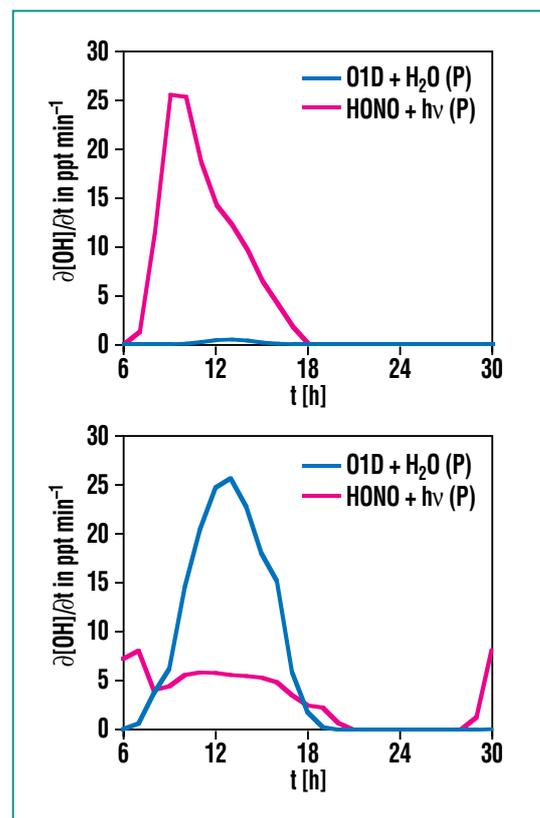


Abb. 6: Simulierter Tagesgang der OH-Produktionsrate  $\partial[\text{OH}]/\partial t$  für die Reaktionen R2 und R3 für den 18. Oktober 2001 (oben) und einen typischen Sommertag (unten).

OH-Produktion in den Morgenstunden, jedoch einen deutlich geringeren Beitrag während des Tages. Trotz höherer Einstrahlung ist die Produktion durch die HONO-Photolyse geringer als am Oktobertag. Das liegt daran, dass auch die Entwicklung der Grenzschicht bei der sommerlichen Lage anders verläuft, mit deutlich größeren Grenzschichthöhen und damit verbunden verstärktem vertikalen Austausch und somit niedrigeren Konzentrationen in der bodennächsten Modellschicht.

### Zusammenfassung

Das OH-Radikal sorgt wegen seiner extrem hohen Reaktivität für die Selbstreinigung der Atmosphäre von natürlichen und anthropogenen Spurengasen. Daher ist es von großer Wichtigkeit, die Produktionsprozesse des OH-Radikals in numerischen Modellen der Atmosphäre richtig zu beschreiben. Eine der möglichen OH-Quellen ist die Photolyse von gasförmiger salpetriger Säure

(HONO). Am meteorologischen Mast im Forschungszentrum Karlsruhe wurden erstmalig Vertikalprofile von HONO gemessen und dazu begleitend Modellsimulationen durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, dass während der Nacht heterogene Bildungsprozesse am Boden sowie direkte HONO-Emissionen durch den KFZ-Verkehr den Hauptbeitrag zur HONO-Konzentration liefern, während heterogene Reaktionen an Aerosolen eine untergeordnete Rolle spielen. Die am Tage beobachteten HONO-Konzentrationen können mit dem Modell nur simuliert werden, wenn zusätzlich eine fiktive photochemische HONO-Quelle berücksichtigt wird. Der Anteil der HONO-Photolyse an der OH-Produktion ist für den Oktobertag dominierend, dagegen bei sommerlichen Situationen nur in den Morgenstunden bedeutend. Zu klären bleibt, ob eine photochemische Quelle für HONO tatsächlich existiert und ob Abweichungen zwischen Messung und Simulation in größerer Höhe wie

vermutet auf Transportvorgänge zurückzuführen sind. Die hier vorgestellte Untersuchung zeigt, wie in der Atmosphärenforschung das Zusammenspiel zwischen Feldmessungen und numerischen Simulationen zur Klärung wissenschaftlicher Fragestellungen beitragen kann.

### Literatur

- [1] R. Kurtenbach, K.H. Becker, J. A. G. Gomes, J. Kleffmann, J.C. Lörzer, M. Spittler, P. Wiesen, R. Ackermann, A.Geyer, U. Platt, *Atmos. Environ.*, 35, 3385-3394, 2001.
- [2] J. Kleffmann, R. Kurtenbach, J. Lörzer, P. Wiesen, N. Kalthoff, B. Vogel, H. Vogel, *submitted to Atmos. Environ.*, 2002.
- [3] J. Heland, J. Kleffmann, R. Kurtenbach, P. Wiesen, *Environ. Sci. Technol.*, 35, 3207-3212, 2001.
- [4] J. Kleffmann, J. Heland, R. Kurtenbach, J. Lörzer, P. Wiesen, *submitted to Environ. Sci. Pollut. Res.*, 2002.
- [5] B. Vogel, H. Vogel, J. Kleffmann, R. Kurtenbach, *submitted to Atmos. Environ.*, 2002.
- [6] N. Riemer, *Wiss. Ber. Inst. Meteorol. Klimaforsch. der Univ. Karlsruhe*, 29, (2002).

# Forschungsflugzeug DO128 – ein fliegendes Labor für die Umwelt- und Klimaforschung am Forschungszentrum

Ch. Kottmeier, U. Corsmeier, F. Fiedler, IMK; R. Hankers, Universität Braunschweig, IFF

## Einleitung

Das Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Bereich Troposphäre (IMK) nutzt für Messprogramme zur Umwelt- und Klimaforschung seit langem das Forschungsflugzeug DO128 des Instituts für Flugführung (IFF) der Universität Braunschweig. Der Einsatz des Flugzeugs erfolgt im Rahmen einzelner Messprogramme, für die jeweils die geeignete Instrumentierung zusammengestellt, erprobt und betrieben wird. Die wissenschaftliche Leitung liegt bei den Wissenschaftlern des IMK, die Durchführung des Flugbetriebs und die Zuständigkeit für den Geräteinsatz beim IFF. Durch Nutzung von Kalibrier-richtungen des IMK und durch Vergleichsmessungen mit anderen Forschungsflugzeugen im Rahmen größerer Messprogramme wird die geforderte hohe Messgenauigkeit auch für Spurengasmessungen in der Atmosphäre sichergestellt [4].

In diesem Beitrag werden das Flugzeug und seine Messinstrumentierung beschrieben. Anhand von Ergebnissen aus Forschungsvorhaben der letzten Jahre werden dann die Einsatzmöglichkeiten dieses „Fliegenden Labors“ aufgezeigt.

## Das Flugzeug und seine Instrumentierung

Das zweimotorige Turboprop-Flugzeug vom Typ Dornier 128 (Abb.1) besitzt eine Reichweite von ca. 1500 km, kann bis zu 4 Stunden in der Luft sein und bei voller Messinstrumentierung außer den zwei Piloten noch 2 bis



**Abb. 1: Das Forschungsflugzeug DO128, Rufzeichen D-IBUF: An der Spitze des Nasenmastes befinden sich Sensoren für die Messung der meteorologischen Parameter Wind, Temperatur und Feuchte.**

3 Wissenschaftler mitnehmen. Es besitzt eine umfangreiche Messausrüstung, die teils von der Universität Braunschweig (meteorologische Basisausrüstung, Wind- und Turbulenzmessung, Bordrechner) und teils vom Forschungszentrum Karlsruhe (luftchemische Messausrüstung, Strahlungsmessgeräte, Digitalkamera, Fallsondenanlage) bereitgestellt wird [2]. Die Tabelle 1 zeigt die an Bord des Flugzeugs zu messenden Größen und die dazu verwendeten Instrumente. Die flugtechnischen Messgrößen dienen einerseits der kontrollierten Flugdurchführung, sie sind andererseits aber auch zur Berechnung und Interpretation der meteorologischen und luftchemischen Messwerte sowie der Erdoberflächendaten notwendig.

## Aufnahme von Sturmschäden im Schwarzwald (Orkan Lothar)

Mit der DO128 erfolgte eine Aufnahme des Schadensbildes im Waldbestand des Schwarzwaldes nach dem Orkan Lothar vom 26. Dezember 1999. Die Befliegung mit einem Zeilenscanner [1] fand fünf Monate nach dem Ereignis statt (Abb. 2). Aus den Messwerten werden georeferenzierte Verteilungen des Vegetationsindex auf ca. 2 m x 2 m großen Bildpunkten am Boden berechnet [5]. Die geschädigten Flächen unterscheiden sich klar durch einen reduzierten Vegetationsindex von vitalen Waldbeständen und durch unterschiedliche Textur von sonstigen Flächen

Messgrößen	Instrumente
Statischer Druck, dynamischer Druck, Druckdifferenzen	5-Loch-Sonde und Druckwandler
Position und Geschwindigkeit gegenüber der Erde	GPS-Empfänger
Höhe über Grund	Laser Altimeter und Radar Altimeter
Fluglagewinkel, Drehraten, Beschleunigungen, Trägheitsnavigation, Geschwindigkeit gegenüber der Erde	INS-Lasernav
Ruderstellungen	Potentiometer
Luftfeuchte	Aerodata Humicap, Taupunktspiegel
turbulente Luftfeuchteschwankungen	Lyman-alpha Hygrometer
Lufttemperatur	PT 100 Temperatursensor, verglast
turbulente Lufttemperaturschwankungen	PT 100 Temperaturensor, offen
Wind (horizontal, vertikal)	5-Loch-Sonde; GPS und INS
turbulente Windfluktuationen	5-Loch-Sonde; GPS und INS
Solarstrahlung, oberer und unterer Halbraum	Kipp & Zonen Pyranometer
Infrarotstrahlung, oberer und unterer Halbraum	Kipp & Zonen Pyrgeometer
Ozonkonzentration	Environment O <sub>3</sub> 41M (UV-Absorption)
turbulente Ozonschwankungen	Güsten Ozon Sensor (Chemilumineszens)
NO	NO <sub>x</sub> TO <sub>y</sub> -Sensor mit C <sub>r</sub> O <sub>3</sub> -Katalysator (Luminol-Chemilumineszens)
NO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub> TO <sub>y</sub> -Sensor (Luminol-Chemilumineszens)
NO <sub>y</sub>	NO <sub>x</sub> TO <sub>y</sub> -Sensor mit Mo/C <sub>r</sub> O <sub>3</sub> Katalysator (Luminol-Chemilumimeszens)
PAN	NO <sub>x</sub> TO <sub>y</sub> -Sensor mit C <sub>r</sub> O <sub>3</sub> Katalysator und Heizung (Luminol-Chemilumineszens)
CO	Aero Laser 5001 (Resonanzfluoreszens)
CO <sub>2</sub>	LI-COR 6252 (IR-Absorption)
Luftprobenahme	Lufteinlass Kabinendach, bis zu 30 Proben
Spektrale Reflektivität der Erdoberfläche	AWI Spektral-Linescanner (3 Kanäle)
Reflektivität der Erdoberfläche	JVC CCD-Kamera
Oberflächentemperatur der Erde	Heitronics Radiometer KT19, abtastend

**Tab. 1: Instrumentierung der DO128, unterlegte Blöcke von oben: flugtechnische Daten, meteorologische Messgrößen, luftchemische Größen, Eigenschaften der Erdoberfläche.**

mit geringer Vegetation (Abb. 3). Es wird offensichtlich, dass das Schadensbild erheblich von den orographischen Gegebenheiten abhängt. Große Schäden traten in Sattellagen zwischen Einzelbergen, an nordwestlich bis nördlich orientierten Bergflanken, in windparallelen Längstälern und am luvseitigen Hang von Berg Rücken auf. Erhebliche Schäden erlitten Waldbestände auf Bergkuppen, an exponierten Stellen im Flachland und an südlich bis südöstlich orientierten Flanken von Einzelbergen. Geringe Schäden sind in Windschattenzonen, d.h. an den östlichen Seiten von Bergen, in Mulden und Nischen sowie in Quertälern zu verzeichnen. Das komplexe Schadensbild wird derzeit durch eine kombinierte Analyse besser erklärt, bei der Vegetations- und Standortmerkmale berücksichtigt werden und die Strömungsmodellierung mit dem Modellsystem

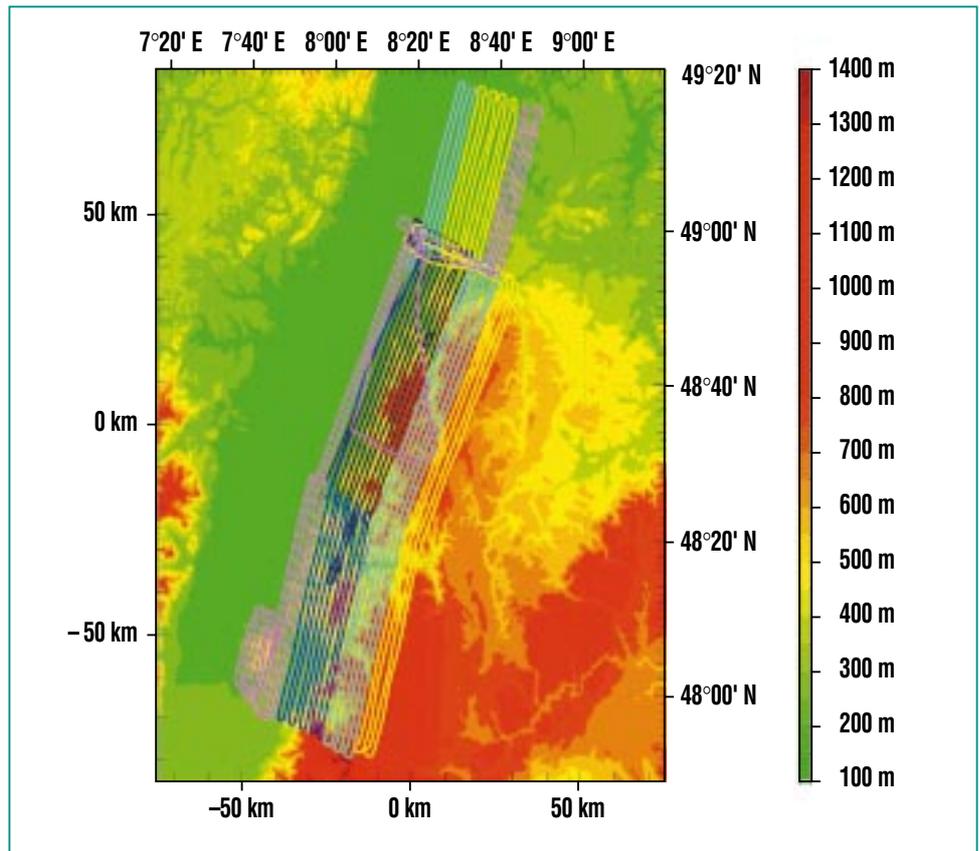


Abb. 2: Befliegungsmuster des Nordschwarzwaldes im Mai/Juni 2000 mit einem Zeilenscanner an Bord der DO128.

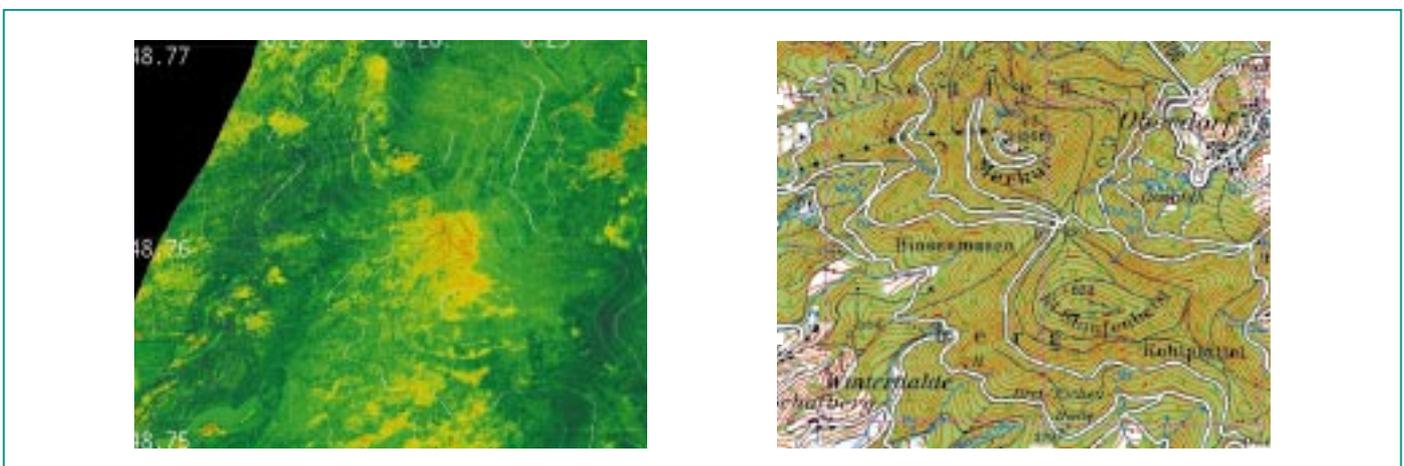


Abb. 3: Ergebnis der Befliegung östlich von Baden-Baden. Höhenlinienabstand 50 Meter, 200 m-Linien hervorgehoben, Datenauflösung 4 qm. In der Szene östlich von Baden-Baden ist der Waldschaden (gelb-braune Fläche) im Bereich eines Sattels zwischen Merkur und Staufenberg besonders markant. Der 200 m tiefer liegende Sattel mit dem Wegekreuz (Fußwege und Abräumspuren) und die südlich angrenzende Flanke des Staufenbergs sind total geschädigt, während der Gipfelbereich beider Berge weniger betroffen ist. Bereiche östlich von Erhebungen waren bei der Anströmung von Westen im Windschatten und blieben verschont.

KAMM (Karlsruher Atmosphärisches Mesoskaliges Modell) eine wichtige Rolle spielt.

Ziel der Schadensaufnahme und der Strömungsmodellierung ist es, eine räumlich hoch auflösende Risikokartierung für die Sturmgefährdung von Waldbeständen zu gewinnen. Hierbei werden besonders die orographischen Einflüsse, d.h. die Geschwindigkeitsänderungen beim Über- und Umströmen von Mittelgebirgen berücksichtigt.

### Bestimmung der Emission von Luftschadstoffen aus dem Gebiet einer Großstadt (Augsburg)

Die Belastung der Luft mit Schadstoffen lässt sich mit numerischen Modellen, z.B. dem Modellsystem KAMM/DRAIS/MADE des IMK berechnen. Voraussetzung dafür sind verlässliche Daten über die Emissionen im Modellgebiet, die ihrerseits wieder mit Hilfe von Emissionsberechnungsmodellen bereitgestellt werden, welche alle

Emittenten aus den Bereichen Verkehr, Industrie und Privathaushalten enthalten. Die Qualität der Emissionsmodelle ist jedoch nicht genau bekannt und wurde deshalb in einem Feldmessprogramm unter Beteiligung des IMK untersucht. Das sogenannte Evaluierungs-Experiment Augsburg (Koordination IER, Univ. Stuttgart; IMK-IFU, Garmisch-Partenkirchen) war Teil des Troposphärenforschungsprogramms (TFS) der Bundesrepublik Deutschland. Ziel war es, durch Messung der Konzentrationen wichtiger Schadstoff-

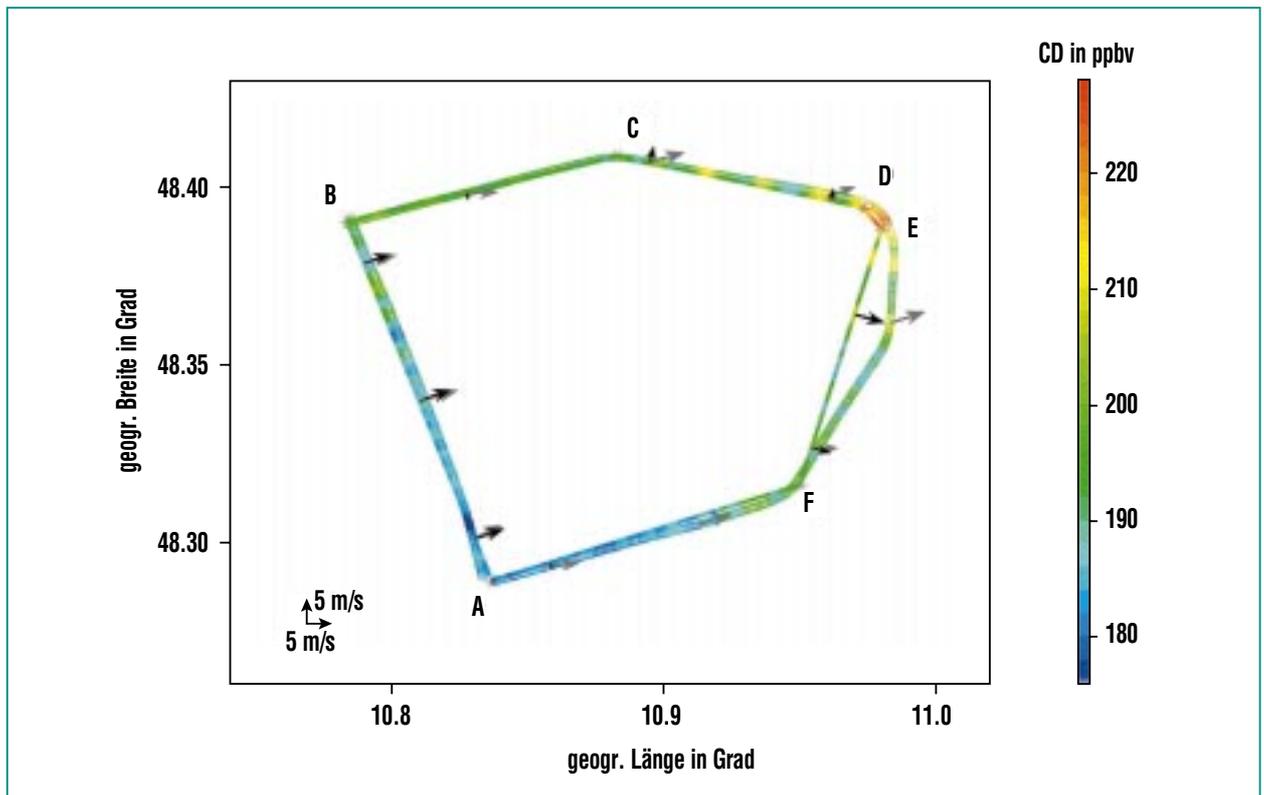


Abb. 4: Horizontalprojektion eines Flugwegs (Abb. 5) der DO128 beim Umfliegen des Stadtgebiets von Augsburg mit Messungen der Kohlenmonoxidkonzentration. Durch die genaue Kurseinhalten des Flugzeugs mit GPS und Trägheitsnavigation unterscheiden sich die Flugwege in insgesamt sieben verschiedenen Messhöhen kaum. Die Differenz zwischen Flugweg (dicke Kurve) und Kontrollfläche (dünne Kurve) auf der Strecke E-F tritt nur in den beiden unteren von 7 Flugniveaus wegen des Umfliegens eines Hindernisses auf. Graue Pfeile markieren den auf dem Flugweg gemessenen Wind und schwarze Pfeile die Windkomponente senkrecht zur berechneten Kontrollfläche.

fe ( $\text{CO}$ ,  $\text{NO}_x$ ) auf einer Kontrollfläche um ein Stadtgebiet herum die Emissionen innerhalb des Gebietes zu bestimmen [6]. Das messtechnische Konzept dafür ist die Massenbilanzmethode [3]. Dabei werden die Massenflüsse eines Spurenstoffs durch die Randflächen eines Kontrollvolumens bestimmt und aus der Bilanz der Massenflüsse über das Kontrollvolumen die Emissionen berechnet. Dieses Verfahren wurde eingesetzt, um die Emissionen für das Stadtgebiet von Augsburg zu bestimmen. Sie verursachen die erhöhten Schadstoffkonzentrationen auf der Leeseite der Stadt. Die DO128 wurde hierbei gemeinsam mit einem Flugzeug des IMK-IFU

[6] und weiteren Messstationen am Boden und an Ballonen eingesetzt.

Das Flugmuster (Abb. 4) wurde so geplant, dass der gesamte Transport durch eine senkrechte Kontrollfläche um das Stadtgebiet berechnet werden konnte. Der Transport erfolgt durch die Komponente des Windes senkrecht zur Kontrollfläche und erforderte deshalb eine hohe Genauigkeit der Windmessung. Das präzise Einhalten des Flugwegs und genaue Messungen der Spurenstoffkonzentrationen waren weitere Anforderungen für eine exakte Bestimmung der Emissionen.

Die Mischungsschichthöhe lag zum Zeitpunkt des Messfluges bei 1050 m, so dass diese Höhe als Obergrenze für das Kontrollvolumen angesehen werden konnte. Die Abbildung zeigt sehr deutliche Unterschiede zwischen dem Luv- (Wegpunkte A-B und F-A) und Leebereich (Wegpunkte C-F). Während die Werte im Luvbereich bei 180 ppbv liegen, treten im Leebereich der Stadt Maxima von 250 ppbv auf. Die wichtigsten CO-Emittenten in Augsburg sind der Verkehr mit 88 % und die Haushalte mit 8 %. Da CO-Emissionen hauptsächlich aus dem Fahrzeugverkehr stammen, sind sie verhältnismäßig homogen über den gesamten Stadtbereich verteilt.

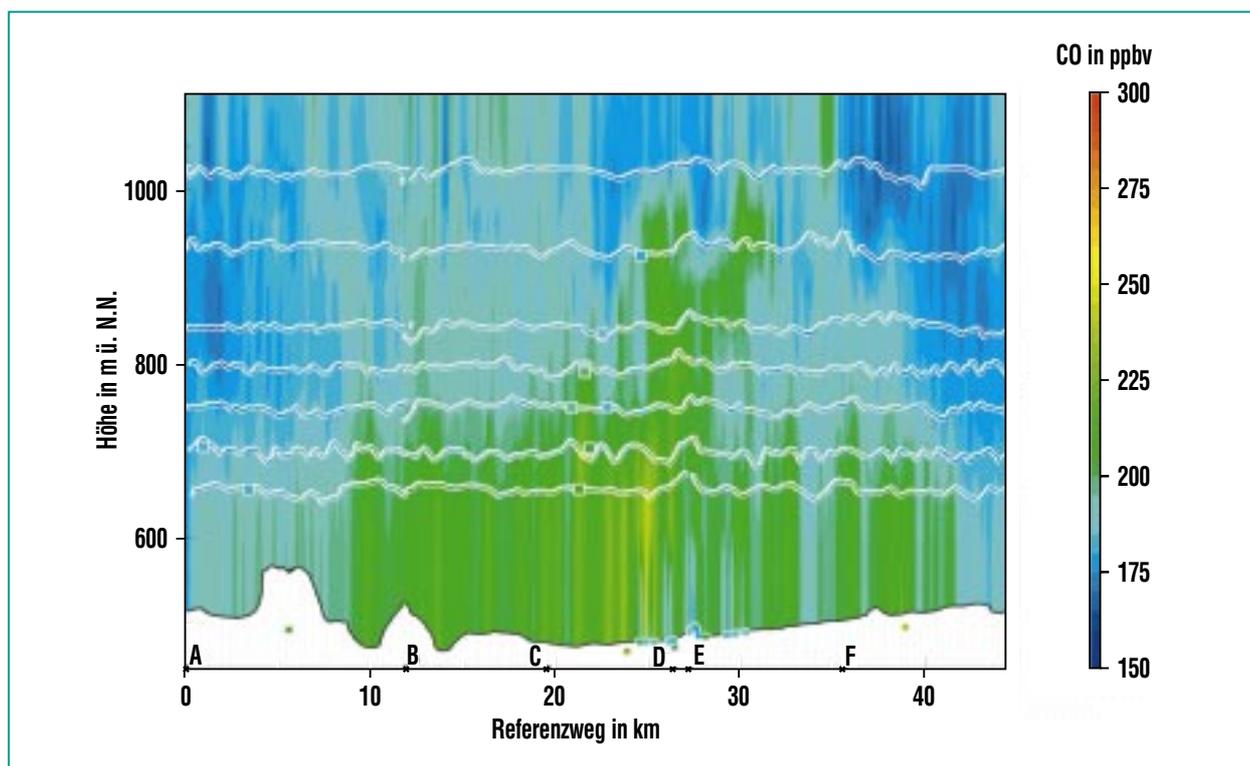


Abb. 5: Verteilung der Kohlenmonoxidkonzentration auf der aufgeklappten Gesamtkontrollfläche A-F-A (Abb. 4) um das Stadtgebiet für einen Flug vom 22.10.98. Die Interpolation zwischen den sieben Flugniveaus berücksichtigt auch Messpunkte am Boden (runde Symbole) und Luftproben, die an Bord des Flugzeugs in Stahlkanister gezogen und nach der Landung im Labor analysiert wurden (quadratische Symbole).

Man findet also eine vergleichsweise gute Durchmischung dieses Spurenstoffs in der gesamten Mischungsschicht, wobei eine leichte Erhöhung zum Boden hin zu verzeichnen ist.

Die Verteilung von Stickoxiden ( $\text{NO}_x$ ) zeigt wie beim CO deutliche Differenzen zwischen dem Luv- und dem Leebereich der Stadt. Werten von 5 ppbv bis 8 ppbv im Luv stehen 15 ppbv bis 23 ppbv im Lee gegenüber. Im Gegensatz zum CO sind die höchsten  $\text{NO}_x$ -Konzentrationen auf einen engen Bereich begrenzt. Dies deutet darauf hin, dass es sich um die Abluftfahnen von Industrieanlagen handelt, die innerhalb des Stadtgebietes stehen.

Die Emissionsraten für Augsburg liegen an normalen Wochentagen über Mittag für CO zwischen  $1600 \text{ kg h}^{-1}$  und  $1975 \text{ kg h}^{-1}$  und für  $\text{NO}_x$  zwischen  $300 \text{ kg h}^{-1}$  und  $435 \text{ kg h}^{-1}$ . Im Gegensatz dazu sind die  $\text{NO}_x$ -Emissionen am Samstagmittag mit  $110 \text{ kg h}^{-1}$  deutlich niedriger, die CO-Emissionen dagegen jedoch nahezu gleich. Der Grund sind die am Samstag im Vergleich zum Wochentag niedrigeren industriellen Aktivitäten aber ein nahezu gleiches Verkehrsaufkommen. Punkt-

quellen, wie Industrieanlagen, machen nämlich 24 % der gesamten  $\text{NO}_x$ -Emissionen aus.

Die Emissionen wurden auf der Grundlage der Messdaten mit verschiedenen Verfahren und unter variierenden Annahmen über die Zufuhr von Luft durch die obere Begrenzungsfläche des Kontrollvolumens und unterhalb des niedrigsten Flugniveaus berechnet. Hierbei ergaben sich Abweichungen, die im Einzelfall 35% erreichen können. Während Emissionsmodelle an Werktagen während der Mittagszeit fast konstante Werte liefern, variieren die gemessenen Emissionen zwischen verschiedenen Tagen erheblich.

### Ausblick und zukünftige Entwicklung

Die Nutzung des Forschungsflugzeugs DO128 mit getrennten Zuständigkeiten für Flugbetrieb (Universität Braunschweig) und wissenschaftliche Leitung (Forschungszentrum Karlsruhe) hat sich gut bewährt. Die mittlere Reichweite und Flugdauer und der Einsatzbereich bis 7 km Höhe machen das Messflugzeug für Messungen in der unteren Atmosphäre, für die regionale Klimafor-

schung und für die Umweltforschung bis zu Gebieten von der Größe eines Bundeslandes sehr gut geeignet. Die bewährte Kooperation mit dem IFF soll im Rahmen zukünftiger Programme weitergeführt und die Instrumentierung verbessert werden.

Für Messungen in der oberen Troposphäre, für Vergleichsmessungen mit bereits verfügbaren und geplanten Satelliteninstrumenten, zu Fragen interkontinentaler Spurenstofftransporte oder zur Konvektion in verschiedenen Klimazonen (Projekt TRACKS) wird ein Flugzeug größerer Leistungsfähigkeit benötigt, wobei die vorhandene Instrumente weiter genutzt werden können. Unter maßgeblicher Beteiligung der Helmholtz-Zentren, hierbei auch des Forschungszentrums Karlsruhe, wurde deshalb die Beschaffung eines großen deutschen Forschungsflugzeugs interkontinentaler Reichweite (HALO; High Altitude Long Range Aircraft) vorbereitet und beantragt. Zu dem Antrag liegt ein Votum des Wissenschaftsrates vor, das der Beschaffung höchste Priorität einräumt.

### Literatur

- [1] A. Bochert, J.M. Hacker, K. Ohm, *Color Line Scanner as imaging NDVI Sensor. Second EARSEL Workshop on Imaging Spectroscopy. 2000*
- [2] U. Corsmeier, R. Hankers, A. Wieser *Meteorologische Zeitschrift, 10 (2001) 315-329*
- [3] N. Kalthoff, U. Corsmeier, F. Fiedler, M. Habram, Ch. Kottmeier, K. Schmidt, F. Slemr, *Atmospheric Environment 36 No. 1 (2002), 519-531*
- [4] H.-J. Kanter, V.A. Mohnen, A. Volz-Thomas, W. Junkermann, K. Glaser, C. Weitkamp, F. Slemr, *J. Atmos Chem. 42 (2002), 235-253.*
- [5] Ch. Kottmeier, C. Schmitt, J. Schmöckel, *Sturm Lothar: Schadensanalyse und Risikoanalyse aus meteorologischer Sicht. Tagungsband (Herausg. G. Tetzlaff, T. Trautmann, K.S.Radtke) Zweites Forum Naturkatastrophen (2002), 428 – 432*
- [6] F. Slemr, G. Baumbach, P. Blank, U. Corsmeier, F. Fiedler, R. Friedrich, M. Habram, N. Kalthoff, D. Klemp, J. Kuehlwein, K. Mannschreck, M. Moellmann-Coers, K. Nester, H.-J. Panitz, P. Rabl, J. Slemr, U. Vogt, B. Wickert, *Journal of Atmospheric Chemistry, 42 (2002), 207-233.*

# Windsysteme und Transport von Luftverunreinigungen im Großraum Marseille: ESCOMPTE

Ch. Kottmeier, N. Kalthoff, U. Corsmeier, F. Fiedler, IMK

## Ziele und Durchführung von ESCOMPTE

Ozon, ein entscheidender Luftschadstoff während der Entwicklung sogenannter Sommersmogepisoden, kann beim Menschen ernsthafte Gesundheitsprobleme verursachen und Ökosysteme, Agrarkulturen und Materialien schädigen. Es entsteht, wenn bestimmte luftverunreinigende Stoffe aus Industrie und Verkehr unter Einwirkung von Sonnenlicht chemisch reagieren. Gemäß einer Richtlinie der Europäischen Union müssen die Regierungen die Öffentlichkeit unterrichten, wenn Überwachungsstationen Ozonkonzentrationen oberhalb eines kritischen Schwellenwertes feststellen, der mit 180 Mikrogramm Ozon je Kubikmeter Luft als Mittelwert während einer Stunde angegeben ist. Warnungen vor hohen Ozonkonzentrationen sind aber vor allem dann sinnvoll, wenn sie frühzeitig vor ihrem Eintreten ausgesprochen werden, so dass Handlungsmöglichkeiten durch Reduktion von Emissionen gegeben sind. Für die Ozonprognose werden Chemie-Transportmodelle (CTM) eingesetzt, die unter anderem auch am Institut für Meteorologie und Klimaforschung entwickelt wurden.

Nach Evaluierungen der Europäischen Umweltagentur wurde z.B. im Zeitraum von April bis August 2002 der Schwellenwert von  $195 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in 11 der 15 EU Mitgliedsstaaten und in 6 von 12 weiteren europäischen Staaten, die Daten bereitstellten, überschritten. Eine Überschreitung trat in mindestens einem dieser 27 Länder an 120 der 153 erfassten Tage auf. Die häu-

figsten Überschreitungen wurden in den Monaten Juni und Juli gemessen. Der Schwellenwert für die Unterrichtung der Bevölkerung wurde in Frankreich, Griechenland, Italien und Spanien in allen fünf überwachten Monaten überschritten. Die Gesamtüberschreitungen waren in Südfrankreich, in der italienischen Poebene und in Mittelitalien am höchsten.

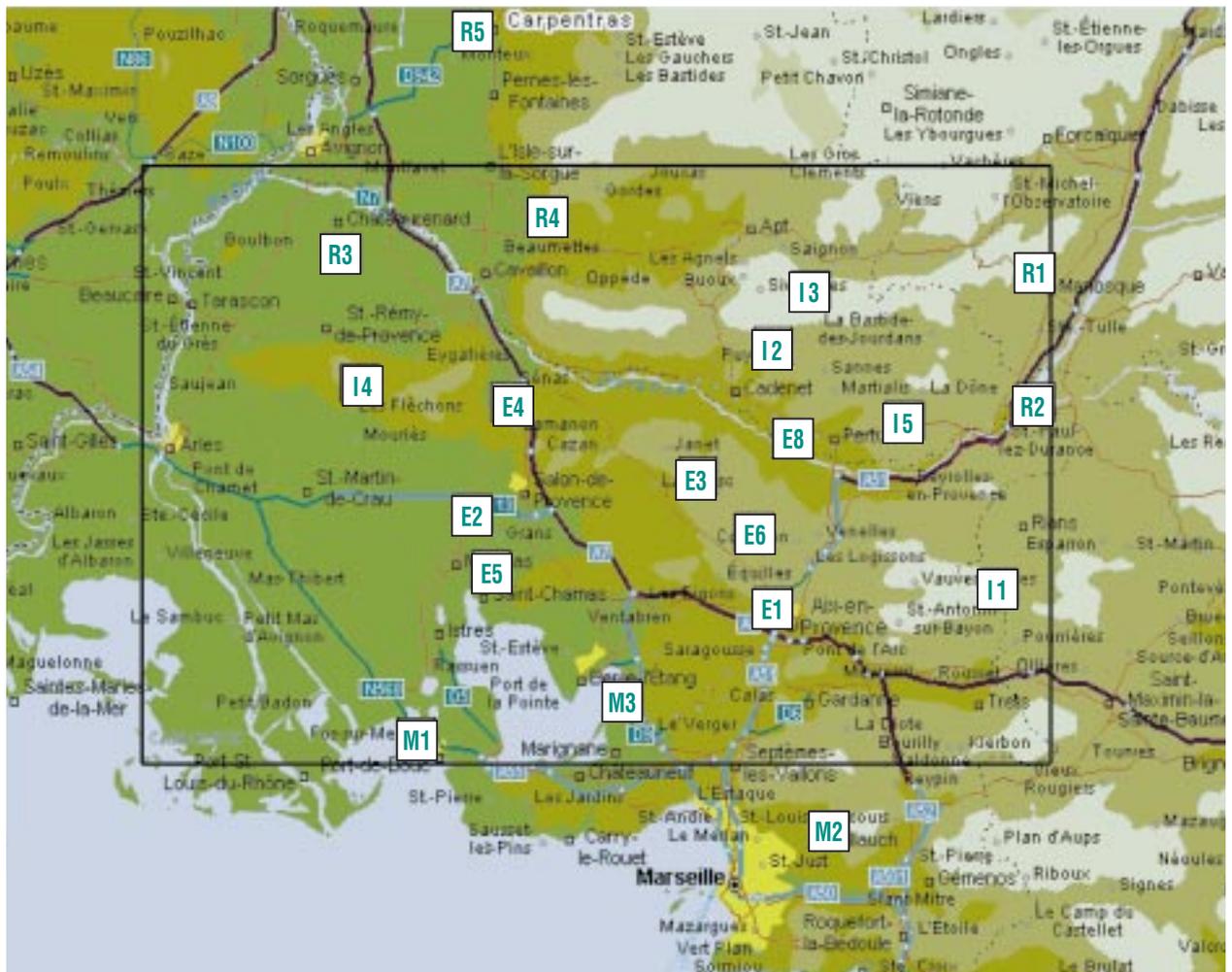
Die realistische Simulation solcher Photosmogsituationen stellen an Chemie-Transportmodelle besonders hohe Anforderungen, wenn die Strömungsverhältnisse durch Sekundärzirkulationssysteme wie z.B. Land-Seewind- und Berg-Talwind-Zirkulationen beeinflusst werden. Durch umfangreiche Messprogramme stehen bereits gute Datensätze zur Modellüberprüfung und -verbesserung, z.B. für flache Gebiete beim BERLIOZ-Experiment 1998 (Becker et al. [2]; Corsmeier et al. [3]) und den südwestdeutschen Mittelgebirgsraum bei TRACT (Fiedler und Borrell [4]), zur Verfügung. Bisher wurde aber noch kein vergleichbarer Datensatz für gebirgige Küstenregionen gewonnen.

Das unter französischer Koordination durchgeführte Forschungsvorhaben ESCOMPTE diente der Gewinnung eines solchen geeigneten Datensatzes zur Überprüfung und Verbesserung von Modellen zur Berechnung des Transports und der chemischen Umwandlungen von Luftschadstoffen in belasteten Küstenregionen. Es war Ziel des Programms, die dreidimensionalen Verteilungen atmosphärischer und chemischer Größen sowie deren zeitliche Va-

riationen zu erfassen. Das Messprogramm fand unter Beteiligung des IMK im Juni und Juli 2001 im Großraum Marseille statt. In diesem Gebiet treten in den Sommermonaten regelmäßig Situationen mit großer luftchemischer Belastung auf, die ihre Ursache in den Emissionen der Millionenstadt Marseille und ihrer hoch industrialisierten Umgebung haben. Die turbulente Diffusion und der Transport erfolgen in dieser Region unter dem Einfluss verschiedener komplexer Windsysteme, die sich durch das Auftreten der regionalen Strömungskanalisation im Rhonetal (Mistral), ein tagesperiodisches Land-Seewindsystem und ein überlagertes Gebirgswindsystem über den französischen Seealpen ergeben. Das IMK beteiligte sich unter anderem mit dem Forschungsflugzeug DO128, zwei Radiosondenstationen und verschiedenen Bodenmessstationen an ESCOMPTE. Insgesamt kamen 7 Flugzeuge, 23 Bodenstationen, 20 Fernerkundungssysteme und 2 Schiffe zum Einsatz (Abb. 1). Neben der Beteiligung an abgestimmten Messungen für die Kernziele von ESCOMPTE wurde als eigenes Forschungsziel auch Spurenstofftransporte durch Konvektion untersucht.

## Verteilung von Luftschadstoffen während einer Photosmog-Episode

Photo- oder Sommersmogsituationen entwickeln sich in den Ballungsgebieten am Mittelmeer ähnlich wie in Mitteleuropa bei wind-schwachen Hochdrucklagen mit hoher Sonneneinstrahlung und



**Abb. 1: Stationsnetz mit bodennahen Messungen meteorologischer und luftchemischer Parameter sowie mit Radar- und Lidarmessungen. Das IMK betrieb unter anderem zwei Radiosondenstationen bei Vinon (R1) and St. Remy (R3) sowie eine Station für Energiebilanz-, Turbulenz- und Windprofilmessungen (SODAR) bei R1. Das Forschungsflugzeug DO128 wurde von Avignon aus im gesamten Gebiet im Höhenbereich bis 4 km eingesetzt.**

hohen Emissionsraten von Ozonvorläufersubstanzen, vor allem von Stickoxiden und Kohlenwasserstoffen. In solchen Situationen bildet sich häufig nachts über Land eine Bodeninversion aus, in der sich früh morgens zunächst die primär emittierten Stoffe aufgrund fehlender Durchmischung anreichern. Mit zunehmender Sonneneinstrahlung nimmt in dieser Luft durch photochemische

Produktion der Ozongehalt in wenigen Stunden um 40 bis 60  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  zu.

Eine solche Wettersituation war auch während ESCOMPTE zwischen dem 24. und 27. Juni 2001 gegeben. Am 25. Juni 2001 setzte in den Vormittagsstunden an der Küste der Seewind ein, der die von Marseille und seinen umgebenden Industriegebieten emittierten Stoffe landeinwärts transportierte.

Gleichzeitig erfolgte bei zunehmender Sonneneinstrahlung photochemische Ozonbildung, durch die die Stickoxidkonzentration in der belasteten Luftmasse reduziert wurde. Die Ozonbelastung in den landeinwärts gelegenen Gebieten dagegen hängt von den Emissionen, der Effizienz der luftchemischen Umwandlungen, den Transportvorgängen und der turbulenten Vermischung in der pla-

netarischen Grenzschicht, d.h. bis etwa 1000 m Höhe über der Erdoberfläche, ab. Während an diesem Tag an den Küstenstationen maximale Konzentrationen von knapp  $140 \mu\text{g}/\text{m}^3$  gemessen wurden, traten 50 km landeinwärts über den Mittelgebirgen am Alpenrand fast  $300 \mu\text{g}/\text{m}^3$  auf.

Durch die Messungen konnte gezeigt werden, dass sich das Land-Seewind-System im Rhonedelta deutlich weiter nordwärts erstreckt als an der Cote d'Azur. In die Alpen strömt die belastete Luft vor allem durch die Taleinschnitte ein, was etwa beim annähernd küstenparallelen Durancetal durch den Umweg über das Rhonetal eine Verzögerung der Entwicklung bedeutet. Dies wird durch Messungen an der IMK-Bodenstation in Vinon deutlich (Abb. 2). Während am Vormittag der Wind schwach war und aus verschiedenen Richtungen wehte, stellte sich dort ab 13 Uhr eine fast talparallele Strömung mit Windgeschwindigkeiten von ca.  $3 \text{ m/s}$  sein. Etwas mehr als eine Stunde später stieg die Ozonkonzentration abrupt an und erreichte in Vinon um 16 Uhr einen Wert von  $270 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , bevor in den Nachtstunden erwartungsgemäß bodennaher Abbau von Ozon die Konzentrationen wieder sinken ließ.

An diesem Tag wurden mit mehreren Messflugzeugen zu verschiedenen Zeiten auf jeweils ähnlichen Flugmustern die räumlichen Verteilungen der Spurenstoffe und meteorologischen Größen erfasst. Der Flug der vom IMK eingesetzten DO128 in einer Höhe von 800 m bis 900 m (Abb. 3) zeigt, dass die bodennah gemessenen Ozonwerte den Werten in der

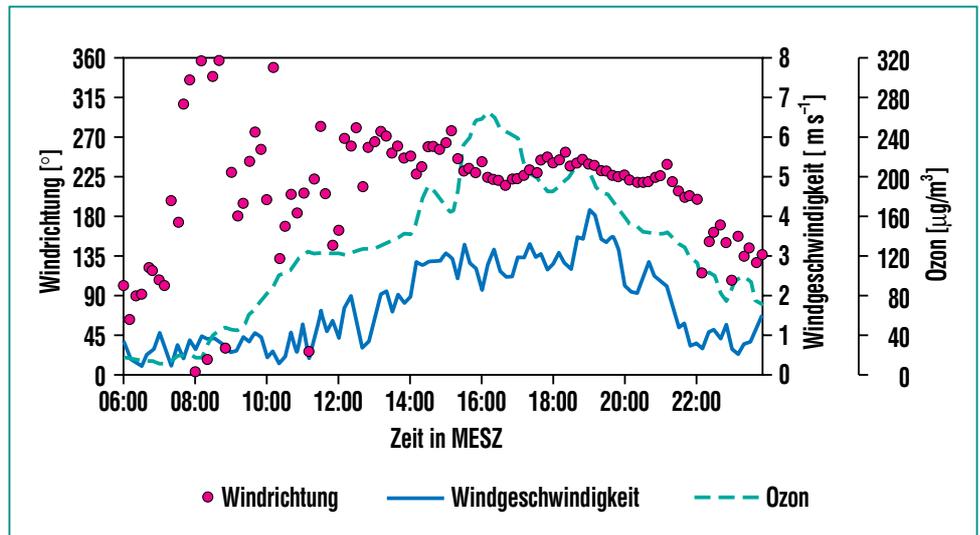


Abb. 2: Tagesgang der Windgeschwindigkeit, Windrichtung und der Ozonkonzentration aus IMK-Messungen am 25. Juni 2001 in Vinon (R1).

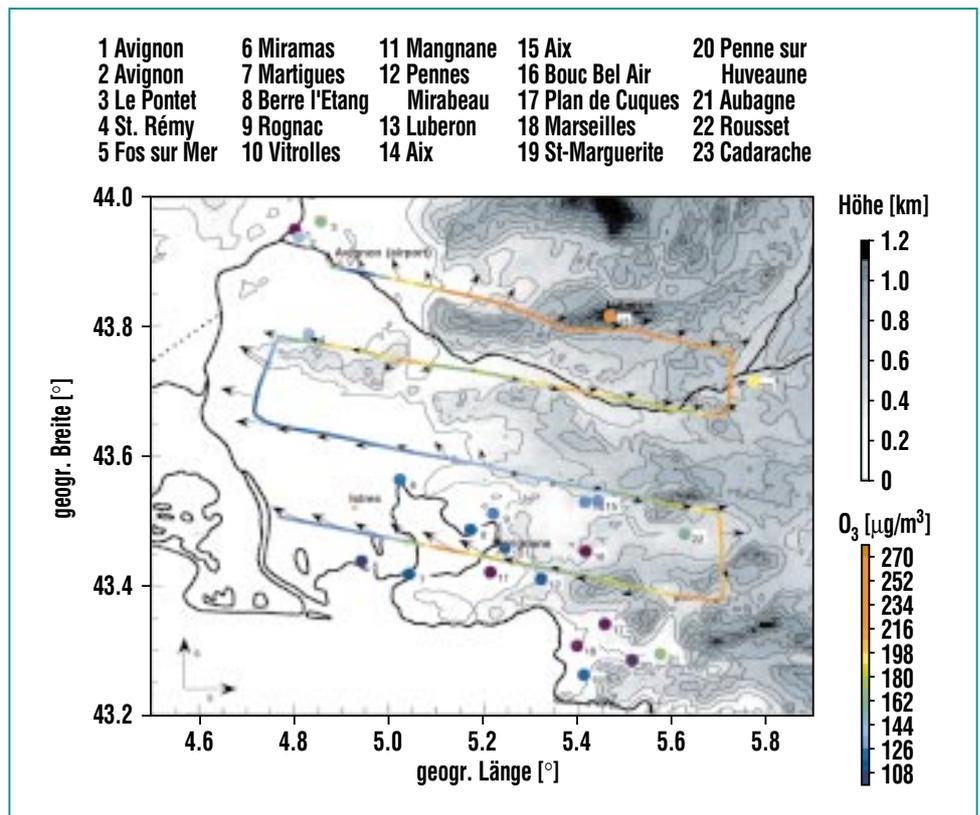


Abb. 3: Verteilung der Ozonkonzentration aus bodennahen Messungen des AIRMARAIX-Messnetzes und aus Messungen der DO128 mit den gemessenen Windvektoren (Referenzpfeil 5 m/s) am Nachmittag des 25. Juni 2001 in 920 m Flughöhe. Die Einzelpunkte geben die am Boden gemessenen Stundenmittelwerte von Ozon an.

Grenzschicht in erster Näherung entsprechen. Dagegen blieb die Atmosphäre in 2800 m Höhe unbeeinflusst. Die Bodenwerte werden erheblich durch Emittenten in ihrem Nahbereich, vor allem durch Verkehrsemissionen, beeinflusst. Auch in 800 m sind noch deutlich kleinräumige Variationen zu erkennen. Dies liegt an den Vermischungsvorgängen, die durch konvektive Wirbel erfolgen. Hierbei kann in Aufwindgebieten bodennahe ozonreiche Luft innerhalb von wenigen Minuten in die obere Grenzschicht gelangen. Die Abwinde dagegen beziehen oft Luft aus der unbelasteten Luft oberhalb der Grenzschicht mit ein und sind mit Minima verbunden.

Um die mittlere Entwicklung der Ozonverteilung zu bestimmen, wurde aus den Messungen auf den Flugwegen durch Glättung

und räumliche Interpolation eine Verteilung bestimmt (Thürauf [5]). Hierbei wurde das Kriging-Verfahren eingesetzt, das besonders günstige Interpolationseigenschaften besitzt und unter anderem eine Fehlerschätzung der Interpolation ermöglicht. Die mittlere Verteilung von  $\text{NO}_x$  (Abb. 4) zeigt erwartungsgemäß, dass die maximalen Stickoxidkonzentrationen nicht ortsgleich mit den Ozonmaxima auftraten. Beispielsweise werden am Gipfel des Luberon und im gesamten östlichen Rhonetal die höchsten Ozonkonzentrationen gemessen, während hohe Werte des Stickoxids nur am rhoneseitigen Eingang des Durancetals auftreten, während sie auf dem Transportweg in das östliche Gebiet mutmaßlich photochemisch abgebaut wurden. Die hohen Stickoxidwerte über dem

Mt. St. Victoire (Bildmitte rechts) sind bei schwachem Westwind als Emissionen von Marseille zu erklären, die aufgrund des kürzeren Transportweges noch nicht zur Ozonbildung beigetragen haben. Insgesamt gesehen führen die gleichzeitig wirkenden Umverteilungen der Spurenstoffe durch die Windsysteme und die luftchemischen Prozesse zu einer komplexen räumlichen Struktur, deren Interpretation nur durch Chemie-Transportmodelle mit Datenassimilation aller verfügbaren Messungen möglich sein wird.

Die Beiträge zur Änderung mittlerer Ozonkonzentrationen an festen Orten lassen sich zumindest qualitativ durch die Messungen abschätzen. Sie setzen sich aus der horizontalen Advektion des Spurenstoffs mit dem mittleren Wind, der vertikalen Advektion,

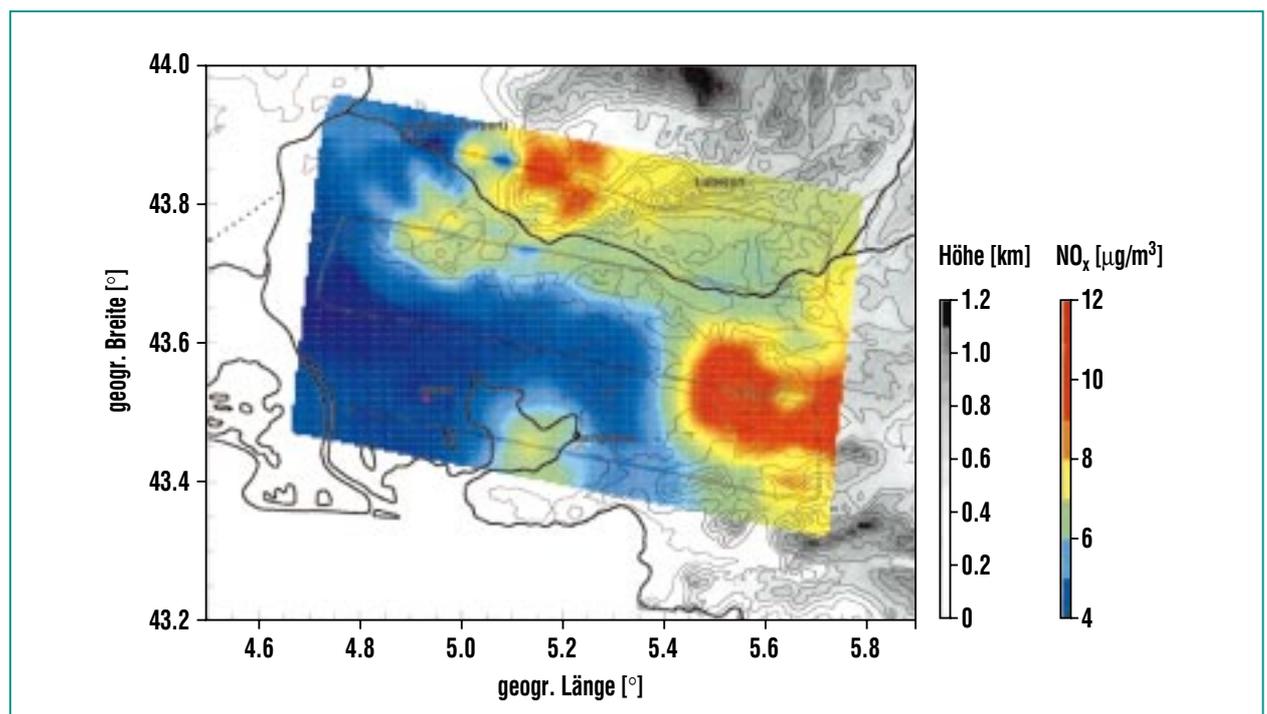


Abb. 4: Kriging-interpolierte Verteilung (geglättet) von Stickoxid ( $\text{NO}_x$ ) aus Messungen der DO128 am Nachmittag des 25. Juni 2001 in 920 m Flughöhe.

der Änderung des turbulenten Vertikaltransports und chemischen Umwandlungen zusammen. Für eine Berechnung der einzelnen o.g. Beiträge lagen die umfangreichsten Daten für die Gebiete um Vinon (R1) und Marseille/Vallon Dol vor. Es ergibt sich, dass die beobachtete zeitliche Änderung der Ozonkonzentration zu keiner Tageszeit und in keinem der beiden Gebiete allein durch chemische Umwandlungen zu erklären ist. So ist im Gebiet um Vinon trotz einer geringen Zunahme der Ozonwerte um nur  $4 \mu\text{g}/(\text{m}^3 \text{ h})$  aufgrund der starken Advektion von Ozon mit einem Beitrag von  $20 \mu\text{g}/(\text{m}^3 \text{ h})$  auf eine intensive photochemische Ozonbildung zu schließen. Dieses Ergebnis stimmt grundsätzlich mit vielen Untersuchungen in anderen Gebieten, z.B. im Oberrheingraben, überein. Allerdings ist in Südfrankreich der Einfluss der regionalen Windsysteme noch schwieriger zu ermitteln als in anderen Gebieten.

### Vertikalaustausch durch Konvektion

Aufgrund der hohen Sonneneinstrahlung und der relativ trockenen Erdoberfläche entwickelt sich an Sommertagen in der Bergregion des ESCOMPTE-Gebietes intensive Turbulenz in Form konvektiver Wirbel. Die Messungen am 17. Juni 2001 dokumentieren eine Situation mit intensiver Konvektion bei nordwestlichem Wind und Grenzschichthöhen von 2000 m. Es traten allerdings keine hohen Spurenstoffkonzentrationen auf, da die emittierten Spurenstoffe über das Mittelmeer verfrachtet wurden. Die Messungen eignen sich aber sehr

gut für Untersuchungen der Turbulenzstruktur und der Grenzschichtentwicklung (Hasel [6]). Bei dem Messflug über dem Randbereich der Alpen am Nachmittag wurden in Höhen von ca. 950 m, 1700 m und 3000 m identische Flugmuster geflogen. Dabei traten sehr intensive Auf- und Abwinde mit bis zu 8 m/s über den Gebirgszügen des Mt. St. Victoire und Luberon sowie dem Durancetal auf (Abb. 5). Aufgrund der hohen Windgeschwindigkeiten waren orographische Einflüsse auf die Konvektion nicht nachweisbar. Die Aufwinde waren mit erhöhten  $\text{NO}_2$ -Werten verbunden, da sie die bodennah emittierten Stoffe aufwärts transportierten. Dagegen waren die ebenfalls sehr heftigen Abwinde trockener als die Umgebungsluft, was auf die Einmischung trockener Luft aus Höhen

oberhalb von 2 bis 3 km zu erklären ist.

Die Untersuchungen zur Bedeutung der Konvektion für den Vertikalaustausch, wie sie bei ESCOMPTE exemplarisch begonnen wurden, sollen in Zukunft noch intensiviert werden. Hierzu wurde im Jahr 2002 das Messprogramm „Vertikaler Austausch und Orographie (VERTIKATOR)“ als Teil des Atmosphärenforschungsprogramm AFO 2000 des BMBF unter Koordination des IMK durchgeführt. Seitens sechs beteiligter Helmholtzzentren sind darüber hinaus mehrere große Feldexperimente in verschiedenen Klimazonen der Erde unter dem Titel „Transporte und chemische Umsetzungen in konvektiven Systemen (TRACKS)“ geplant.

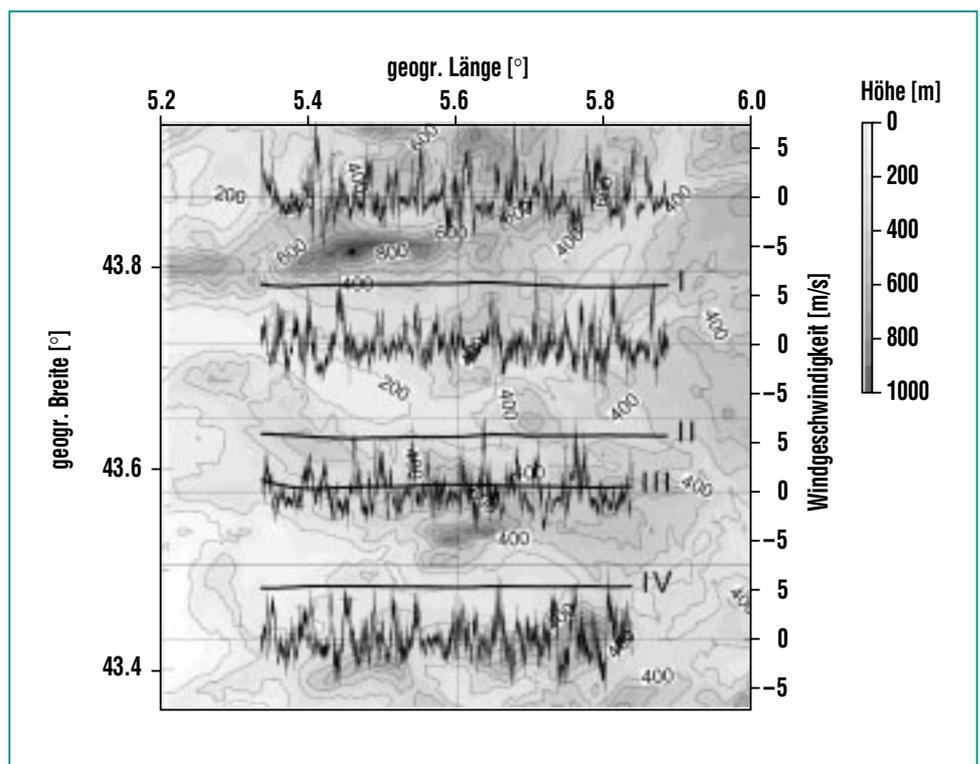


Abb. 5: Vertikalgeschwindigkeiten auf den Flugabschnitten I bis IV (dick ausgezogen) in einer Höhe von 950 m am Nachmittag des 17. Juni 2001.

## Schlussbemerkungen

Durch die koordinierten Messungen während des ESCOMPTE-Experimentes entstanden wertvolle Datensätze zur Analyse atmosphärischer Transportprozesse und zur Überprüfung und Verbesserung von Chemie-Transportmodellen, wie sie mit KAMM/DRAIS auch am IMK betrieben werden. Die Beteiligung an

dem Programm ermöglicht dem Institut vollen Zugang zum Gesamtdatensatz. Das Modellsystem kann auf diese Weise auch unter Randbedingungen überprüft werden, wie sie weltweit in vielen hoch belasteten Ballungszonen in Küstenregionen herrschen. Hierdurch soll auch dem erkennbaren Forschungsbedarf zu Umweltproblemen in Ländern der dritten Welt Rechnung getragen werden, in

denen sich derzeit große Umwälzungen der Industrie und Wirtschaft, der Bevölkerungs- und Verkehrsentwicklung und der Schadstoffemissionen vollziehen.

## Literatur

- [1] B. Cros , P. Durand , E. Frejafon, C. Kottmeier, P. E. Perros, V-H. Peuch, J.L. Ponche, D. Robin, F. Said , G. Toupance, H. Wortham, *Atmospheric Research*, 2003.
- [2] K. H. Becker, B. Donner, S. Gäb, *Proceedings of EUROTRAC Symposium 98 Band 2*, WIT Press, Southampton, 669-672, 1999.
- [3] U. Corsmeier, N. Kalthoff, B. Vogel, M.-U. Hammer, F. Fiedler, Ch. Kottmeier, A. Volz-Thomas, S. Konrad, K. Glaser, B. Neiniger, M. Lehning, W. Jaeschke, M. Memmesheimer, B. Rappenglueck, G. Jakobi, *J. Atmos. Chem.*, 42 , 289-321, 2002.
- [4] F. Fiedler, P. Borrell, *Springer* , 223-268, 2000.
- [5] J. Thürauf, *Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe*, 2002.
- [6] M. Hasel, *Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe*, 2002.

# Die Stratosphäre im globalen Wandel

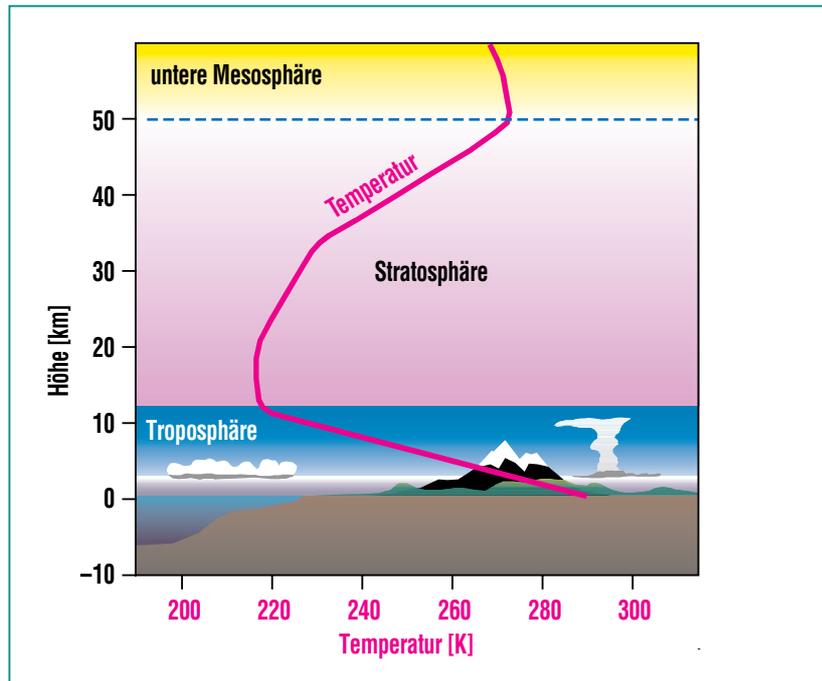
H. Fischer, IMK

## Einleitung

Zum besseren Verständnis des Folgenden gehen wir zunächst kurz auf den vertikalen Aufbau der Atmosphäre ein, der für mittlere Breiten in Abb. 1 schematisch dargestellt ist:

Etwa 80 % der gesamten Masse der Atmosphäre befinden sich in der Troposphäre, in der sich das Wettergeschehen abspielt. Sichtbare Anzeichen dafür sind Wasserwolken und Regen, sowie bei tiefen Temperaturen in großer Höhe die Bildung feiner Eiswolken (Zirren). Die Troposphäre wird durch Konvektion vertikal gut durchmischt, wobei sich aufsteigende Luft wegen der exponentiellen Druckabnahme mit der Höhe adiabatisch stark abkühlt. Die Abnahme der Temperatur mit der Höhe ist in der Troposphäre nahezu linear (Abb. 1).

In der Tropopause, einer dünnen Schicht am oberen Rand der Troposphäre, ändert sich das Temperaturprofil dramatisch. Das darüber liegende „Stockwerk“ der Atmosphäre bis in etwa 50 km Höhe heißt Stratosphäre, weil hier wegen des stark geänderten Temperaturverlaufs die Durchmischung übereinander liegender Luftschichten weitgehend unterbunden ist. Aus dem gleichen Grund bildet die Tropopause eine sehr wirksame Barriere gegen das Eindringen von feuchter und verschmutzter Luft aus der Troposphäre in die extrem trockene Stratosphäre, die nur noch etwa 0,0005 Volumen-% Wasserdampf enthält. Die Stratosphäre ist daher weitgehend wolkenfrei. Davon ausgenommen sind nur die Polgebiete: Über ihnen kann sich im



**Abb. 1: Aufbau der Erdatmosphäre (schematisch, für mittlere Breiten). Die Tropopause, also die schmale Übergangszone zwischen der Troposphäre und der Stratosphäre, ist in hohen Breiten nach unten verschoben. Am Äquator, wo sie bis auf ca. 17 km angehoben ist, ist die Tropopause am kältesten.**

Winter die Stratosphäre so extrem abkühlen, dass selbst der wenige noch vorhandene Wasserdampf zusammen mit Salpetersäuredampf an feinen Aerosolpartikeln kondensiert und dünne „Polare Stratosphärische Wolken“ (PSC) bildet.

Am oberen Rand der Stratosphäre ist der Druck bereits unter 0,1% des Standarddrucks auf Meereshöhe abgefallen, weshalb die darüber beginnende Mesosphäre und alle höheren „Stockwerke“ der Atmosphäre zusammen genommen nur noch einen geringen Anteil der gesamten Luftmasse enthalten.

Mehr als 90 % des gesamten atmosphärischen Ozons ( $O_3$ ) befinden sich in der Stratosphäre, wo

es durch die Einwirkung von kurzwelliger Sonnenstrahlung auf molekularen Sauerstoff erzeugt wird. Vor allem dieser hohe Ozongehalt sorgt dafür, dass die Temperatur in der Stratosphäre mit der Höhe wieder ansteigt (Ausnahme: untere polare Stratosphäre), denn  $O_3$  absorbiert selbst einen Teil des Sonnenlichtes und verwandelt es in Wärme. Gleichzeitig schützt das stratosphärische „Ozonschild“ das Leben auf der Erde vor dem schädlichen UV-B-Anteil des Sonnenlichtes, den es nahezu vollständig herausfiltert.

Die Entdeckung des Ozonlochs über der Antarktis Mitte der 80er Jahre hat deutlich gemacht, dass die Schutzfunktion des „Ozonschildes“ vor allem durch anthro-

pogene Emissionen flüchtiger chlor- und bromhaltiger Verbindungen gefährdet wird. Auch andere Anzeichen deuten darauf hin, dass sich die Stratosphäre in einem globalen Wandel befindet, der sowohl anthropogene als auch natürliche Ursachen haben kann. Der Wandel äußert sich z.B. in Veränderungen der räumlichen Temperatur- und Wasserdampfverteilung. Seit über 20 Jahren steigt der Wasserdampfgehalt der unteren Stratosphäre um etwa 1% pro Jahr an, was zu starken Änderungen der dynamischen, chemischen und strahlungsbedingten Prozesse in der Atmosphäre führen kann. Nicht zuletzt deswegen steht nach wie vor der weltweite Abbau des Ozons in der Stratosphäre im Zentrum der Forschungsaktivitäten.

Unter den Wissenschaftlern ist allgemein akzeptiert, dass der globale Wandel der Atmosphäre sich stärker in den oberen Schichten als den bodennahen auswirkt. Die Ursachen der stratosphärischen Veränderungen sind uns aber nur teilweise bekannt; demnach bleibt genügend Raum für bedeutsame wissenschaftliche Arbeiten.

### Der Ozonabbau

Bereits Anfang der 70er Jahre hatten amerikanische Wissenschaftler den Abbau des stratosphärischen Ozons aufgrund der Photolyse von Fluorchlorkohlenwasserstoffen in der Stratosphäre postuliert. Es dauerte dann etwa 10 Jahre bis sich die UN-Völkergemeinschaft zum „Wiener Übereinkommen zum Schutze der Ozonschicht“ durchgerungen hatte. Bei einer solchen Absichtserklärung

ohne feste Reduktionsszenarien für Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKW) wäre es vermutlich geblieben, wenn nicht englische Wissenschaftler 1985 das Ozonloch über der Antarktis entdeckt hätten. Dieser Effekt überraschte selbst die Wissenschaftler, die zunächst keine Erklärung für das Ozonloch hatten.

Durch intensive antarktische Messkampagnen mit Flugzeugen, Sondierungen an Messstationen und Satellitenmessungen wurde in der Folgezeit eine Datenbasis geschaffen, auf der rasch neue Theorien über den Ozonabbau entwickelt werden konnten. Es stellte sich schließlich heraus, dass die bereits erwähnten Polaren Stratosphärischen Wolken (PSC) eine wichtige Rolle spielen und die FCKW auch in diesem Fall die eigentliche Ursache des Ozonabbaus sind.

Inzwischen liegen Messungen der atmosphärischen Zustandsparameter und der Konzentration von einer Reihe von Spurenstoffen in globalem Maßstab vor und es gibt eine Hierarchie von numerischen Modellen, mit denen die Atmosphäre über unterschiedliche Zeitintervalle simuliert werden kann. Trotz großer Fortschritte im Verständnis der Vorgänge zeigen die Vergleiche von Messungen mit simulierten Parameterverteilungen immer noch erhebliche Diskrepanzen unter arktischen Bedingungen. Auch der Abbau des Ozons in mittleren nördlichen Breiten, die für uns von zentralem Interesse sind, kann nach wie vor nicht zufriedenstellend durch numerische Modelle wiedergegeben werden.

Ziel aller wissenschaftlichen Untersuchungen muss es sein, atmosphärische Modelle bereitzustellen, mit denen zuverlässige Vorhersagen der Entwicklung der Ozonschicht in den kommenden Jahrzehnten möglich werden. Heute werden bereits mit einer Reihe von Modellen Vorhersagen gemacht, jedoch sind deren Unsicherheiten noch deutlich zu groß. Zu den noch nicht entsprechend gut parametrisierten Prozessen zählen zum einen Transportprozesse zwischen den tropischen und arktischen Breiten sowie zwischen Troposphäre und Stratosphäre. Zum anderen sind es mikrophysikalische Prozesse bei der Bildung und Veränderung der PSCs und Prozesse innerhalb der diese umgebenden Luft.

Kürzlich durchgeführte Vergleiche von Ozon-Vorhersagen atmosphärischer Modelle für den arktischen Bereich zeigen eine erhebliche Streuung (Abb. 2) und bestätigen damit die oben gemachte Aussage über die ungenügende Qualität der numerischen Modelle. Um die beschriebenen Probleme einer Lösung näher zu bringen, müssen die Datenbasis ergänzt und durch Vergleich von Modellergebnissen mit gemessenen Parameterverteilungen die Parametrisierung relevanter stratosphärischer Prozesse verbessert werden.

### Messung stratosphärischer Parameter

Lücken in den stratosphärischen Messdaten gibt es insbesondere bei den Spurengasen, beim Aerosol und bei Wolkenpartikeln. Das IMK-ASF hat sich seit geraumer

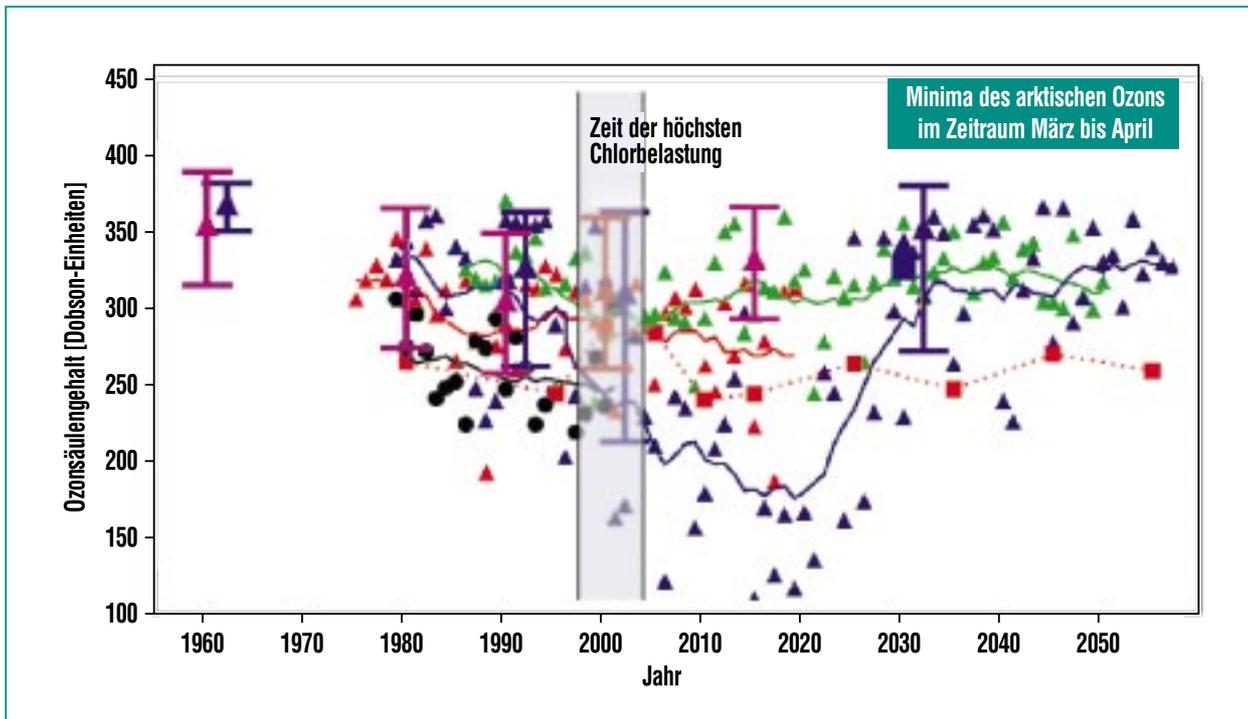


Abb. 2: Vergleich des vom Satelliten TOMS seit 1960 jährlich ermittelten minimalen Ozonsäulengehalts über der Arktis (schwarze Punkte) mit Vorhersagen verschiedener Modelle, die meist das Ozonloch unterschätzen. Die Vorhersagen der Modelle für die kommenden Jahrzehnte zeigen eine große Streuung. Nach [7].

Zeit erfolgreich darum bemüht, wesentliche Beiträge zur Sondierung der Stratosphäre zu erbringen.

Bodengebundene Fernerkundungsinstrumente wurden entwickelt und eingesetzt, um Zeitreihen stratosphärischer Spurenstoffverteilungen zu erfassen [1]. Dem Vorteil der zeitlich nahezu kontinuierlichen Messung steht der Nachteil der beschränkten vertikalen Auflösung der Daten gegenüber. Obwohl diese Geräte ein wesentlicher Bestandteil des globalen Messsystems sind, müssen sie wegen ihrer Nachteile durch andere Messverfahren ergänzt werden.

In den vergangenen Jahrzehnten hat das IMK-ASF eine ganze Fa-

milie von Infrarot-Fourierspektrometern entwickelt und zur Erfassung atmosphärischer Spurenstoffe eingesetzt. Diese technisch hochwertigen Geräte mit dem Namen MIPAS (Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung) liefern neben der Temperatur und den Konzentrationen von ca. 25 Spurengasen auch Informationen über Aerosole und Wolkenpartikel [2]. Die Bestimmung mikrophysikalischer Parameter von polaren Stratosphärenwolken, die Aufnahme von Salpetersäure in die Wolkenpartikel und die Denitrifizierung durch Sedimentation großer Partikel wurden bei Flügen mit der ballongetragenen Version von MIPAS in den vergangenen Jahren eindrucksvoll demonstriert [3].

Die Vorteile eines flugzeuggetragenen MIPAS kommen insbesondere durch die zweidimensionalen räumlichen Verteilungen von atmosphärischen Parametern entlang der Flugroute zum Tragen [4]. Die Entwicklung dieser Geräte wird gekrönt durch das MIPAS Satellitenexperiment, das seit März 2002 globale dreidimensionale Verteilungen von Spurenstoffen erfasst [5]. Bereits jetzt zeichnet sich ab, dass die MIPAS-Satellitendaten weltweit genutzt und für eine Vielzahl von Forschungsvorhaben wesentliche Informationen liefern werden. Durch das im IMK-ASF aufgebaute Datenverarbeitungssystem für MIPAS-Messungen wird das Institut wesentliche Beiträge für die Stratosphärenforschung leisten können.

## Simulation des Zustandes der Atmosphäre mit numerischen Modellen

Voraussetzung für ein besseres Verständnis der stratosphärischen Prozesse ist neben einer exzellenten Datenbasis die Verfügbarkeit eines guten numerischen Modells. Das IMK-ASF hat aus diesem Grund ein Chemie-Transport-Modell (CTM) mit dem Namen KASIMA entwickelt, dessen Einsatz sich bereits in ver-

schiedenen Forschungsvorhaben als sehr nützlich erwiesen hat [6]. Durch den Einbau eines detaillierten mikrophysikalischen Moduls für Wolkenprozesse wird KASIMA eine herausragende Stellung unter den CTMs einnehmen können. Es ist vorgesehen, in Kooperation mit auswärtigen Wissenschaftlergruppen eine sich daraus ergebende Parametrisierung für PSC-Prozesse in Klimamodelle zu integrieren und damit wesentlich genauere Vorhersagen für die Ozonschicht zu erzielen.

## Ausblick

Im IMK-ASF sind in den vergangenen Jahren ausgezeichnete Voraussetzungen für die Bearbeitung wissenschaftlicher Fragestellungen in der Stratosphäre geschaffen worden. Nun gilt es, diese Möglichkeiten zu nutzen und auf internationaler Ebene eine hervorragende Rolle zu spielen.

## Literatur

- [1] G. Kopp et al.,  
*in diesem Heft*
- [2] H. Fischer,  
*Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* 96,  
1992, S. 306-314
- [3] O. Möhler, H. Oelhaf,  
*in diesem Heft*
- [4] C. Blom et al.,  
*in diesem Heft*
- [5] T. v. Clarmann, G. Stiller,  
*in diesem Heft*
- [6] W. Kouker, T. Reddman,  
R. Ruhnke,  
*Nachrichten Heft 4/2002*
- [7] J. Austin et al.,  
*Atm. Chem. Phys.*, 3, 2003,  
S. 1 – 27

# Das Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung (MIPAS) auf dem Umweltforschungssatelliten ENVISAT

T. v. Clarmann, G. Stiller, IMK

## Einleitung

Schon in den Siebziger Jahren des letzten Jahrhunderts postulierten Chemiker, dass Chlor, Stickstoff- und OH-Radikale in katalytischen Reaktionszyklen stratosphärisches Ozon zerstören können. Seit der Entdeckung des antarktischen Ozonlochs Mitte der Achtziger Jahre wurde die umweltpolitische Relevanz dieser Zusammenhänge offenbar und führte zu einer Intensivierung der Erforschung der Stratosphäre in den Neunziger Jahren. Dennoch sind wir noch heute weit entfernt von einem lückenlosen quantitativen Verständnis der Vorgänge in der Stratosphäre und im stratosphärisch/troposphärischen Grenzbereich. Um einen Großteil der in der stratosphärischen Chemie relevanten Spurenstoffe global messen zu können, wurde von Prof. H. Fischer (IMK) auf der Basis von Labor- und Ballonexperimenten das Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung (MIPAS) [1] vorgeschlagen, das mittlerweile als Teil der Kernnutzlast im Verbund mit verschiedenen anderen Erdbeobachtungsexperimenten des ENVISAT-Forschungssatelliten der European Space Agency (ESA) seine Arbeit aufgenommen hat. Ein wichtiger Teil der MIPAS Auswertearbeiten findet am IMK statt.

## Der Forschungssatellit ENVISAT

Bei ENVISAT handelt es sich um den weltweit bisher größten Umweltforschungssatelliten, der jemals gebaut wurde (Abb. 1).

Die Gesamtmasse des Satelliten, der etwa die Größe eines Autobusses hat, beträgt etwa 8200 kg; Die Nutzlast umfasst neben MIPAS zwei weitere Instrumente zur Atmosphärenbeobachtung in Hinblick auf Spurengase: GOMOS [2] und SCIAMACHY [3].

Weitere Instrumente stehen zur Beobachtung der Erdoberfläche und des Wassers in all seinen Aggregatzuständen zur Verfügung.

Am 1. März 2002 wurde ENVISAT mit einer Ariane-V-Rakete vom Weltraumbahnhof Kourou aus in seine polare sonnensynchrone Erdumlaufbahn geschossen. Der Satellit umkreist seitdem einmal in



Abb. 1: Der Umweltforschungssatellit ENVISAT (Quelle: ESA).

100 Minuten in einer mittleren Höhe von 800 km die Erde. Die Lebensdauer des Satelliten wird auf etwa fünf Jahre veranschlagt.



Abb. 2: Der Start von ENVISAT am 1. 3. 2002 (Quelle: ESA).

## MIPAS

Die Ozonchemie der mittleren und unteren Stratosphäre involviert zahlreiche Spurengase, die fast alle im mittleren infraroten Spektralbereich Emissionsbanden aufweisen, die mit dem Fouriertransformationsspektrometer MIPAS gleichzeitig gemessen werden können. Dank der hohen spektralen Auflösung von  $0,035\text{ cm}^{-1}$  hinterlässt jedes Gas im Spektrum eine hinreichend separierte Signatur, die zur quantitativen Auswertung der Gase herangezogen werden kann.

MIPAS misst in Horizontsondierung. Die langen optischen Wege des Sehstrahls durch die Atmosphäre führen zu einer guten Messempfindlichkeit auch bei niedrig konzentrierten Gasen. Die stufenweise Änderung der Elevation der

Blickrichtung begründet die Höhenauflösung der Messung. (Abb. 3)

Die meisten auf Weltraumplattformen eingesetzten in Horizontsondierung messenden Fouriertransformationsspektrometer messen die atmosphärische Absorption von Sonnenlicht bei Sonnenauf- oder -untergang. Damit waren keine Messungen in der Nacht oder im polaren Winter möglich. MIPAS misst die thermische Emission der Atmosphäre und kann deshalb auch Nacht- oder Polarnachtmessungen durchführen [4]. Dies ist besonders relevant, da viele Spezies einer ausgeprägten Photochemie unterliegen, und Messungen bei Sonnenauf- oder -untergang deshalb keinesfalls repräsentativ sind.

Das MIPAS-Instrument tastet in 75 Sekunden die Atmosphäre einmal vertikal ab und führt dabei

Messungen an 17 verschiedenen Tangentenhöhen von 6 - 68 km durch. Die fourierspektroskopische Messung liefert Intensitäten als Funktion der optischen Weglängendifferenz des Interferometers, sog. Interferogramme. Nach der Phasenkorrektur werden die Interferogramme durch Fouriertransformation in Spektren umgewandelt. Zur absoluten Strahldichte-Kalibration werden Schwarzkörperspektren sowie Spektren des kalten Weltraums herangezogen. Jedes Spektrum besteht aus fünf Spektralkanälen:  $685\text{-}970\text{ cm}^{-1}$ ,  $1020\text{-}1170\text{ cm}^{-1}$ ,  $1215\text{-}1500\text{ cm}^{-1}$ ,  $1570\text{-}1750\text{ cm}^{-1}$ ,  $1820\text{-}2410\text{ cm}^{-1}$ . Bei einer Gitterweite von  $0,025\text{ cm}^{-1}$  ergibt das 58400 unabhängige Einzelmessungen pro Tangentenhöhe, und etwa  $9 \cdot 10^{10}$  einzelne spektrale Messwerte während der Lebensdauer von MIPAS.

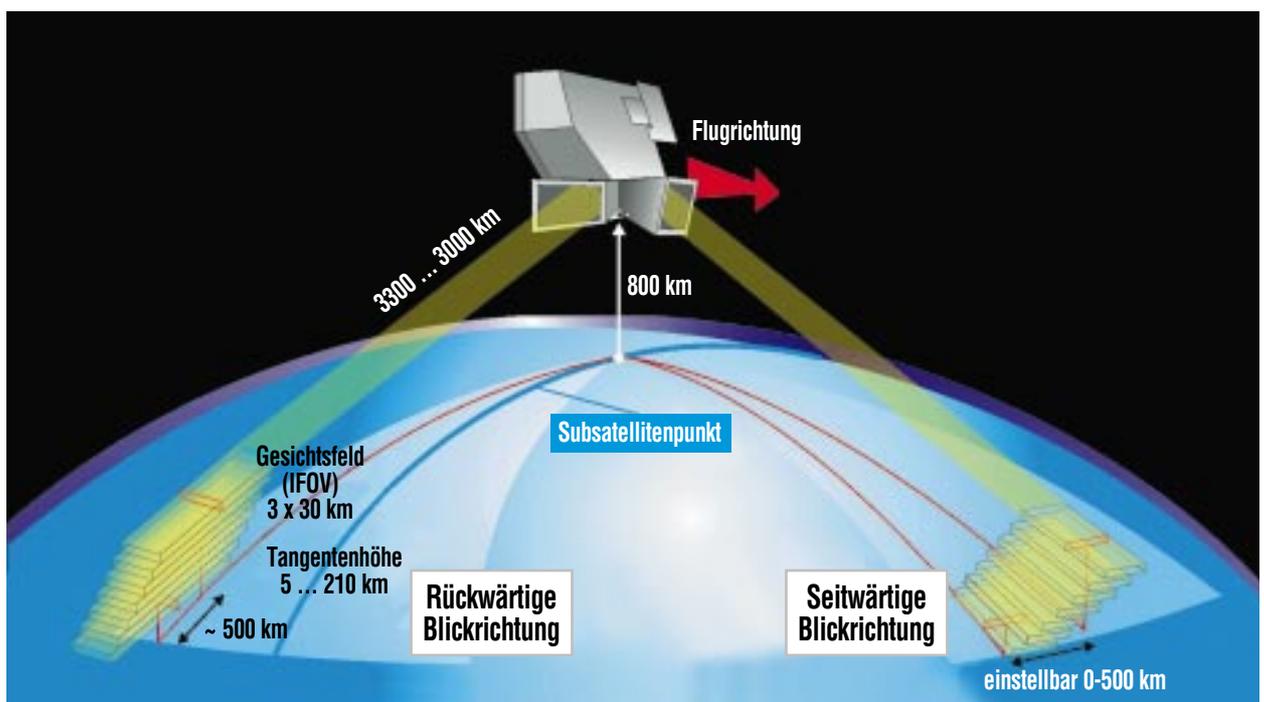


Abb. 3: Die Messgeometrie der Horizontsondierung: Der Sehstrahl verläuft waagrecht durch die Atmosphäre (Quelle: ESA).

## Auswertung

Um aus den kalibrierten Strahldichtespektren Vertikalprofile von Spurengasen oder andere geophysikalische Parameter herzuleiten, muss die inverse Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung gefunden werden. Die Strahlungsübertragungsgleichung beschreibt den Strahlungs-transport durch die Atmosphäre, also die Emission und Absorption von Photonen durch die Moleküle, die im Blickfeld des Messinstruments liegen. Die Inversion erfolgt nach Linearisierung der Strahlungsübertragungsgleichung um Schätzwerte der atmosphärischen Parameter nach der Methode der kleinsten Quadrate, wobei Nebenbedingungen zur physikalisch sinnvollen Stabilisierung der Lösung gestellt werden. Es wird also derjenige Satz von atmosphärischen Parametern gesucht, für den mit der Strahlungsübertragungsgleichung das gemessene Spektrum möglichst gut simuliert werden kann, und gleichzeitig die Nebenbedingung möglichst gut erfüllt wird. Um der Nichtlinearität der Strahlungsübertragungsgleichung gerecht zu werden, wird die Inversion iterativ durchgeführt [5].

Zur numerischen Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung ist ein entsprechendes Computermodell erforderlich, das alle für die Strahlungsübertragung relevanten Prozesse der Atmosphäre berücksichtigen muss. Zur Berechnung spektral hoch aufgelöster Spektren kommen nur sogenannte Linie-für-Linie-Modelle in Frage, bei denen jeder Vibrations-Rotationsübergang separat

modelliert wird. Da die Atmosphäre bezüglich Druck, Temperatur und Zusammensetzung inhomogen ist, ist bei der numerischen Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung auf hinreichend feine Diskretisierung zu achten. Mit dem „Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm“ (KOPRA) [6] steht am IMK ein geeignetes Strahlungsübertragungsmodell zur Verfügung, dessen Leistungsumfang speziell auf das MIPAS-Experiment abgestimmt wurde. Andere methodische Arbeiten am IMK beziehen sich auf die Auswahl zur Auswertung verwendeter Spektralbereiche [7] [8] sowie auf die optimale Formulierung der Nebenbedingung bei der Inversionsrechnung [9].

## Der Datenprozessor am IMK

MIPAS-ENVISAT ist ein internationales Großexperiment, zu dessen Realisierung und Auswertung Institutionen aus zahlreichen Nationen beitragen. Bezüglich der Datenauswertung ist das folgende arbeitsteilige Vorgehen vorgesehen: Neben Druck und Temperatur werden unter Verantwortung der ESA Vertikalprofile von  $O_3$ ,  $H_2O$ ,  $CH_4$ ,  $N_2O$ ,  $HNO_3$  und  $NO_2$  global aus den Messdaten abgeleitet und der wissenschaftlichen Gemeinde zur Verfügung gestellt. Die Ableitung der Höhenverteilungen der übrigen Gase, z. B.  $ClONO_2$ ,  $N_2O_5$ ,  $NO$ , FCKWs u. a., wird von wissenschaftlichen Institutionen in Eigenverantwortung durchgeführt. Hierzu hat das IMK einen Datenprozessor entwickelt, der die Datenauswertung nach der oben beschriebenen Methodik

durchführt und diagnostische Größen (insbesondere Kovarianzmatrizen und Auflösungs-matrizen) bereitstellt.

Um sicherzustellen, dass der Prozessor auch funktioniert, wurde ein Blindtest durchgeführt. Im Rahmen eines von uns koordinierten EU-Projektes wurden für ein vorgegebenes Datum und eine vorgegebene Geolokation von einem Partner eine Horizontsondierungssequenz Spektren, wie MIPAS sie liefern wird, auf Basis von dem Konsortium vorerst nicht bekannten atmosphärischen Parametern generiert. Diese Spektren wurden mit Rauschen und weiteren instrumentellen Artefakten entsprechend der MIPAS-Gerätespezifikation überlagert und an die Teilnehmer dieses Prozessierungsexperiments verteilt. Jeder Teilnehmer versuchte, mit seinem Prozessor die atmosphärischen Parameter, auf Basis derer die „synthetischen Messungen“ erzeugt wurden, zu rekonstruieren. Diese realitätsnahen Tests sind für das IMK sehr erfolgreich verlaufen, und sie erzeugen Zuversicht, dass auch echte MIPAS-Messungen erfolgreich ausgewertet werden können.

## Validierung

Die mit MIPAS-ENVISAT gemessenen Daten müssen validiert werden, bevor sie zur wissenschaftliche Verwertung freigegeben werden. Das IMK ist, sowohl in seiner Eigenschaft als sogenanntes „Expert Support Laboratory“, als auch als unmittelbarer Kontraktor der ESA, an vielerlei Validierungsaktivitäten beteiligt.

## Wissenschaftliche Verwertung

MIPAS hat begonnen, globale Spurengasverteilungen von bis zu 40 verschiedenen Spurengasen zu liefern. Daneben können aus den spektralen Daten weitere Parameter der unteren und mittleren Atmosphäre bis hinauf in die Thermosphäre, wie Temperatur, mikrophysikalische Aerosol- und Wolkeneigenschaften, Erwärmungs- und Abkühlungsraten, Kollisionsraten von molekularen Stoßbildungsprozessen und Photolyseraten wichtiger photochemischer Prozesse abgeleitet werden. Die Nutzung der MIPAS-Daten eröffnet damit die Möglichkeit zur Mitarbeit in den aktuellsten atmosphärenwissenschaftlichen Fragestellungen.

Zur Vorhersage des Zustands der Atmosphäre in den nächsten Jahrzehnten ist das Verständnis des polaren Ozonabbaus immer noch ein zentraler Punkt. Insbesondere durch die Beobachtung von Polaren Stratosphärenwolken und der Analyse ihrer Zusammensetzung, sowie durch die Messung der Partitionierung der Spurengase aus der Stickstoff-Familie wird ein Beitrag geleistet zum besseren Verständnis der heterogenen chemischen Prozesse, die letztlich zum Ozonabbau führen.

Der Tropopausenbereich, d.h. die Grenzschicht zwischen Troposphäre und Stratosphäre in ca. 10 km Höhe, ist in den letzten Jahren in den Mittelpunkt des Interesses gerückt. Dieser Bereich spielt für die Strahlungsbilanz der Erde und damit für die globale Erwärmung eine zentrale Rolle. Die bisher magere Datenbasis über Was-

serdampf- und Aerosol- bzw. Cirren-Verteilungen, die die Strahlungsbilanz maßgeblich mitbestimmen, wird durch MIPAS erheblich verbessert werden. Weiterhin kann MIPAS durch Beobachtung von inerten Tracern, aber auch reaktiven Spurenstoffen wie Ozon, zum Verständnis der vertikalen Transportprozesse durch die Tropopausenregion beitragen. In der oberen Troposphäre konzentriert sich die Forschung zur Zeit auf das Verständnis der photochemischen Ozonbildungsprozesse. Hier interagieren kurzzeitige photochemische und Transportprozesse so stark, dass ein großräumiges, wenn nicht sogar globales Bild gegenüber Einzelbeobachtungen große Vorteile mit sich bringt, um Transporte von Bildungs- bzw. Abbauprozessen zu unterscheiden. Mit der Messung von Spurengasen im infraroten Spektralbereich, die bei den photochemischen Ozonbildungsprozessen eine Rolle spielen, wie z.B. Konstituenten, die bei der Biomassenverbrennung entstehen, wird mit MIPAS Neuland beschritten.

Von der Mesosphäre (Höhe: 50 bis 85 km) wird angenommen, dass sie eine Art Frühwarnfunktion im Klimasystem spielt, indem sie frühzeitig und ausgeprägt auf Änderungen in der Zusammensetzung der Atmosphäre reagiert. Allerdings liegt über die Mesosphäre nur eine geringe Datenbasis vor. MIPAS wird in diesem Höhenbereich regulär bis ca. 68 km und gelegentlich auch bis in Höhen von 150 km messen und so zur Klärung zahlreicher unverstandener Prozesse in der Mesosphäre beitragen.

Alle hier angesprochenen Fragestellungen werden in den nächsten Jahren im Rahmen nationaler und internationaler Forschungsprojekte angegangen. Die Voraussetzung dafür, nämlich ein effizientes und dennoch hochflexibles Auswertesystem, wurde in den letzten Jahren am IMK geschaffen.

## Mögliche Nachfolgeexperimente

Das wissenschaftliche Interesse für die satellitengebundene Messung großräumiger Spurengasverteilungen verschiebt sich zur Zeit etwas von der Stratosphäre hinunter in den stratosphärisch/troposphärischen Grenzbereich und sogar in die freie Troposphäre. Für die hier interessierende Thematik – vorrangig Austauschprozesse sowie regionale Chemie – ist die optimierte räumliche Auflösung von besonderer Bedeutung. Ein Nachfolgeexperiment, AMIPAS (Advanced Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding), wurde als künftiges Erdbeobachtungsexperiment vorgeschlagen. Weiterhin wird derzeit die Anwendbarkeit nadirblickender Spektrometer zur Spurengasmessung untersucht. Zwei Projekte sind hier in Vorbereitung: Bei TROC handelt es sich um eine Mission mit einem polar umlaufenden Low-Earth-Orbit-Satelliten, während mit GEOTROPE erstmals eine derartige wissenschaftliche Plattform auf einen geostationären Orbit gebracht werden soll. Das IMK ist bei allen drei Missionsvorschlägen bezüglich der Datenauswertung und auch der Instrumentenkonzepte in führender Rolle beteiligt.

## Literatur

- [1] H. Fischer,  
*Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*(96)3  
(1992) 306-314
- [2] S. Noël, J. P. Burrows,  
H. Bovensmann, J. Frerick,  
K. V. Chance, A. H. P. Goede,  
C. Muller,  
*Adv. Space Res.* (26)12 (2000)  
1949-1954
- [3] J. L. Bertaux, G. Megie, T. Widemann,  
E. Chassefiere, R. Pellinen, E. Kyrölä,  
S. Korpela, P. Simon,  
*Adv. Space Res.* 11 (1991) 237-242
- [4] H. Fischer, H. Oelhaf,  
*Appl. Opt.* 35(16) (1996)  
2787-2796
- [5] T. von Clarmann, G. Stiller,  
A. Friedle, K. Ressel, T. Steck,  
*Proc. European Symposium  
on Atmospheric Measurements  
from Space,  
ESAMS'99, 18-22 Jan 1999,  
Noordwijk (1999)*  
529-532
- [6] G. P. Stiller, (ed.),  
*FZKA-Bericht 6487 (2000)*
- [7] T. von Clarmann, G. Echle,  
*Appl. Opt.* 37(33) (1998) 7661-7669
- [8] G. Echle, T. von Clarmann, A. Dudhia,  
J.-M. Flaud, B. Funke, N. Glatthor,  
B. Kerridge, M. López-Puertas,  
F. J. Martín-Torres, G. P. Stiller,  
*Appl. Opt.* 33(30) (2000) 5531-5540
- [9] T. Steck,  
*Appl. Opt.* 41(9) (2002) 1788-1797

# MIPAS-STR: ein Fernerkundungsinstrument für Stratosphärenflugzeuge

C. E. Blom, T. Gulde, M. Höpfner, C. Keim, W. Kimmig, G.Y. Liu, C. Piesch, C. Sartorius, IMK

## Einleitung

Flugzeuggetragene Messungen haben den Vorteil, dass das Messgebiet aktiv angesteuert werden kann. Konventionelle Flugzeuge, wie zum Beispiel die FALCON des DLR, sind jedoch in der Flughöhe auf etwa 13 km beschränkt. Die GEOPHYSICA, ein russisches Stratosphärenflugzeug, das für die europäische Klima- und Ozonforschung in ein fliegendes Labor umgewandelt wurde, schließt die Lücke zwischen Beobachtungen von Satelliten bzw. Stratosphärenballons und den konventionellen Flugzeugen. Das IMK hat das MIPAS-STR (Michelson Interferometer für Passive Sondierung – STRatosphärenflugzeuge) für den Einsatz auf der Geophysica entwickelt [1] und bei ersten wissenschaftlichen Missionen über der Antarktis und Europa eingesetzt.

## Das Stratosphärenflugzeug GEOPHYSICA

Die russische GEOPHYSICA und die amerikanische ER-2 sind zurzeit die einzigen Stratosphärenflugzeuge, die für die Atmosphärenforschung zur Verfügung stehen. Außer der Reichweite von etwa 3500 km sind die Flugeigenschaften der GEOPHYSICA denen der ER-2 überlegen. Mit einer Nutzlast von 1500 kg erreicht sie eine Gipfelhöhe von über 20 km, also die Bereiche der unteren Stratosphäre und oberen Troposphäre, die für wissenschaftliche Fragestellungen in den letzten Jahren große Bedeutung erhalten haben. Trotz ihrer großen Spannweite von 37.5 m bei einer Länge von 23 m ist sie sehr robust und kann sogar bei starkem Seitenwind (bis zu 36 km/h) starten und landen. Die GEOPHYSICA wird seit Anfang 1997 für Forschungszwecke im Rahmen europäischer

Vorhaben eingesetzt. Eine Interessenvereinigung, der das Forschungszentrum als Gründungsmitglied beigetreten ist, gewährleistet die Bereitstellung dieses Flugzeugs für die nationale und europäische Atmosphärenforschung bis Ende 2005.

## MIPAS-STR

Das MIPAS-STR ist ein mit Trockeneis gekühltes Fourier-Transformations-Spektrometer (FTS), das die thermische Emission der atmosphärischen Spurenstoffe gegen den kalten Hintergrund des Weltraums im infraroten Spektralbereich von 770 bis  $1940 \text{ cm}^{-1}$  ( $5.15 - 13.0 \mu\text{m}$ ) mit hoher spektraler Auflösung erfasst. Durch die Anwendung der FTS-Technik wird die simultane Messung vieler Spurengase, die im mittleren IR spektrale Signaturen aufweisen, gewährleistet. In dem jetzigen Konzept sind nahezu die komplette  $\text{NO}_y$ -Familie ( $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{N}_2\text{O}_5$ ,  $\text{ClONO}_2$ ), eine Reihe von Quellgasen ( $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ , FCKWs,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{SF}_6$ , etc.) und  $\text{O}_3$  messbar. Die Emissionsmethode ist unabhängig von Quellen wie z. B. der Sonne. Daher können die Messungen, wie bei allen MIPAS-Instrumenten, auch während der Polarnacht durchgeführt werden, und gibt es keine Einschränkungen für die Blickrichtung und die Flugtrajektorien. Die Unabhängigkeit vom Sonnenstand erlaubt kontinuierliche Horizont- und Aufwärtssondierungen. Mit der Horizontsondierung können Vertikalprofile bis zur Flughöhe gemessen werden, mit Aufwärtsmessungen die Verteilung der Spezies oberhalb des Flugzeugs. Kontinuierliche Messungen während des



**Abb. 1: Die GEOPHYSICA beim Anflug auf Ushuaia auf Feuerland. MIPAS-STR ist auf dem Rücken des Flugzeugs, hinter der Pilotenkabine, eingebaut.**

Flugs liefern die 2-dimensionale Verteilung der Spurenstoffe mit guter vertikaler (< 2 km) und horizontaler (< 30 km im Flugrichtung) Auflösung.

Das MIPAS-STR besteht aus zwei Modulen: dem Optikmodul und dem Elektronikmodul. Beide Module werden auf dem Rücken der Geophysica eingebaut.

Der gekühlte Teil der Optik ist in einer 3-D-Darstellung in Abb. 2 gezeigt. Er gliedert sich in zwei Ebenen: in der oberen Ebene befindet sich der Scanspiegel und das Teleskop; in der unteren Ebene das Interferometer und die mit flüssigem Helium gekühlte Fokalebene des Detektor-Kryostaten. Die Scanspiegeleinheit bestimmt die Ausrichtung der Sichtlinie. Dabei wird zur Bestimmung der Lage des Instruments ein eigenes Trägheitsnavigationssystem (AHRS: Attitude and Heading Reference System) als Referenz verwendet. Das Teleskop definiert die vertikale Auflösung am Horizont und unterdrückt parasitäre Strahlung, die von außerhalb des nominellen Gesichtsfelds herrührt. Das bei MIPAS-STR verwendete Doppelpendelinterferometer (DPI) [2] – eine Sonderform der Grundidee von Michelson – gewährleistet eine achtfache Übersetzung von mechanischer Bewegung in optische Weglängendifferenz. Die gesamte Optik ist in einen wärmeisolierenden Behälter eingebaut, in den das Trockeneis-Kühlsystem integriert ist.

Das Elektronikmodul (Abb. 3) wurde in Zusammenarbeit mit dem IPE entwickelt. Es ist aus mehreren vernetzten Prozessoren aufgebaut, die unabhängig und pa-

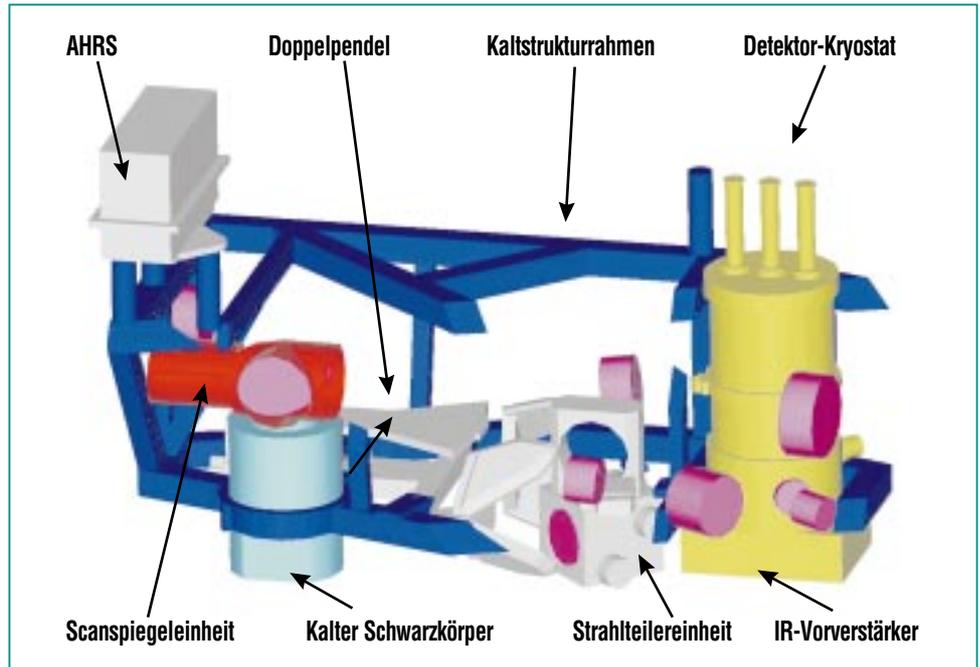


Abb. 2: 3-D-Ansicht des gekühlten Bereichs des Optikmoduls des MIPAS-STR. In der oberen Ebene befinden sich die Scanspiegeleinheit (rot) und die Spiegel (lila) des Teleskops, in der unteren Ebene das DPI (grau). Die IR-Detektoren sind in den Kryostat (gelb) eingebaut.

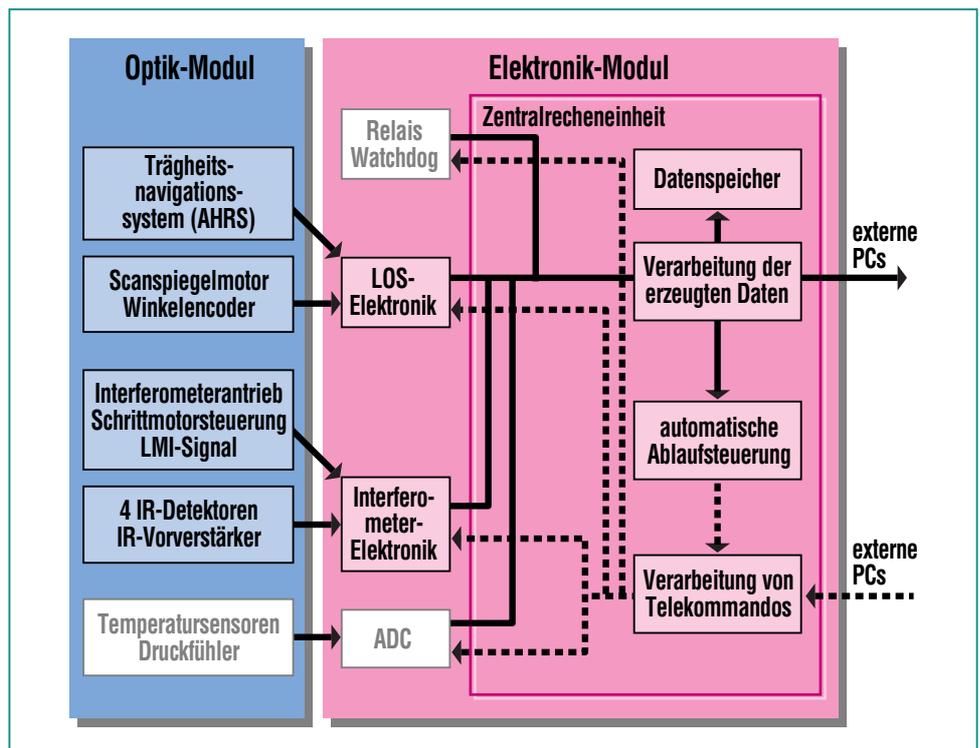


Abb. 3: Schematische Übersicht der Elektronik des MIPAS-STR.

parallel die Ansteuerung und Datenerfassung der einzelnen Komponenten übernehmen. Die wesentlichen Elemente sind die Zentralrechnereinheit, die LOS- (Engl.: line of sight) Elektronik, die Interferometerelektronik und mehrere Überwachungssysteme. Der Zentralrechner verarbeitet Kommandos wahlweise von externen PCs oder, im Flug, von der Ablaufsteuerung und verteilt sie an die entsprechende Subsysteme. Die Daten der Subsysteme werden entgegengenommen, gespeichert und an die Ablaufsteuerung weitergeleitet. Die LOS-Elektronik steuert anhand der vom AHRS gemessenen Lagewinkel den Scanspiegel so an, dass die Elevation der Sichtlinie konstant den gewünschten Winkel relativ zum Erdhorizont einnimmt. [3]. Die von der Firma Bruker Optik GmbH entwickelte Interferometer-Elektronik regelt den Pendelantrieb und misst die Signale der Infrarotdetektoren. Die Abtastung der Interferogramme erfolgt zeitäquidistant [4], ein neues Verfahren, das gewährleistet, dass die Qualität der Messung durch die Vibrationen des Flugzeugs nicht wesentlich verschlechtert wird [5].

**Die Nutzlast der GEOPHYSICA für die Messung von atmosphärischen Spurengasen**

MIPAS-STR bildet zusammen mit SAFIRE-A [6] die Kernnutzlast der GEOPHYSICA für die Fernerkundung atmosphärischer Spurengase. SAFIRE-A ist, wie MIPAS-STR, ein FTS-Emissionsgerät, aber für den Spektralbereich 20 – 160 cm<sup>-1</sup> (60 – 500 µm) im fernen

	MIPAS-STR	SAFIRE-A (1)
<b>Tracers, Quellgase</b>		
O <sub>3</sub>	A	A
O <sub>3</sub> -Isotope ( <sup>18</sup> O, <sup>17</sup> O)	-	B
HF	-	A
N <sub>2</sub> O	A	A
CFCI <sub>3</sub> , CF <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub>	A	-
CCl <sub>4</sub> , CF <sub>4</sub> , CHF <sub>2</sub> Cl	B	-
H <sub>2</sub> O	A	A
HDO	B	A
CH <sub>4</sub>	A	-
OCS	C	-
<b>NO<sub>y</sub></b>		
NO	C	C (?)
NO <sub>2</sub>	B	B
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	B	-
HNO <sub>3</sub>	A	A
ClONO <sub>2</sub>	A	-
<b>Cl<sub>y</sub></b>		
ClO	C (2)	A (2)
HCl	-	A
ClONO <sub>2</sub>	A	-
HOCl	C	B
<b>HO<sub>x</sub></b>		
OH	-	A (2)
HO <sub>2</sub>	-	B
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	-	B
<b>Br<sub>y</sub></b>		
HBr	-	C
HOBr	-	C
A	Spezies, die „einfach“ zu messen sind. Integrationszeiten pro Spektrum: 10-60 Sekunden.	
B	Wie A, jedoch Integrationszeiten pro Spektrum: 1-10 Minuten.	
C	Schwierig zu messen oder längere Integrationszeiten notwendig.	
(1)	Eine Auswahl kann simultan gemessen werden.	
(2)	Nur bei speziellen atmosphärischen Bedingungen messbar.	

**Tab. 1: Spurengase, die von MIPAS-STR und SAFIRE-A gemessen werden können.**

Infrarot ausgelegt. Durch die Abdeckung beider Spektralbereiche erhält man wesentliche komplementäre Informationen und es können nahezu alle NO<sub>y</sub>- und Cly-Spezies erfasst werden (siehe Tab. 1). Von SAFIRE-A werden Rotationsbanden und von MIPAS-STR Vibrations-Rotationsbanden der Moleküle zur Messung der Spurengasgehalte genutzt. Dies erlaubt eine interne Überprüfung der Ergebnisse für Spurengase, die von beiden Instrumenten gemessen werden.

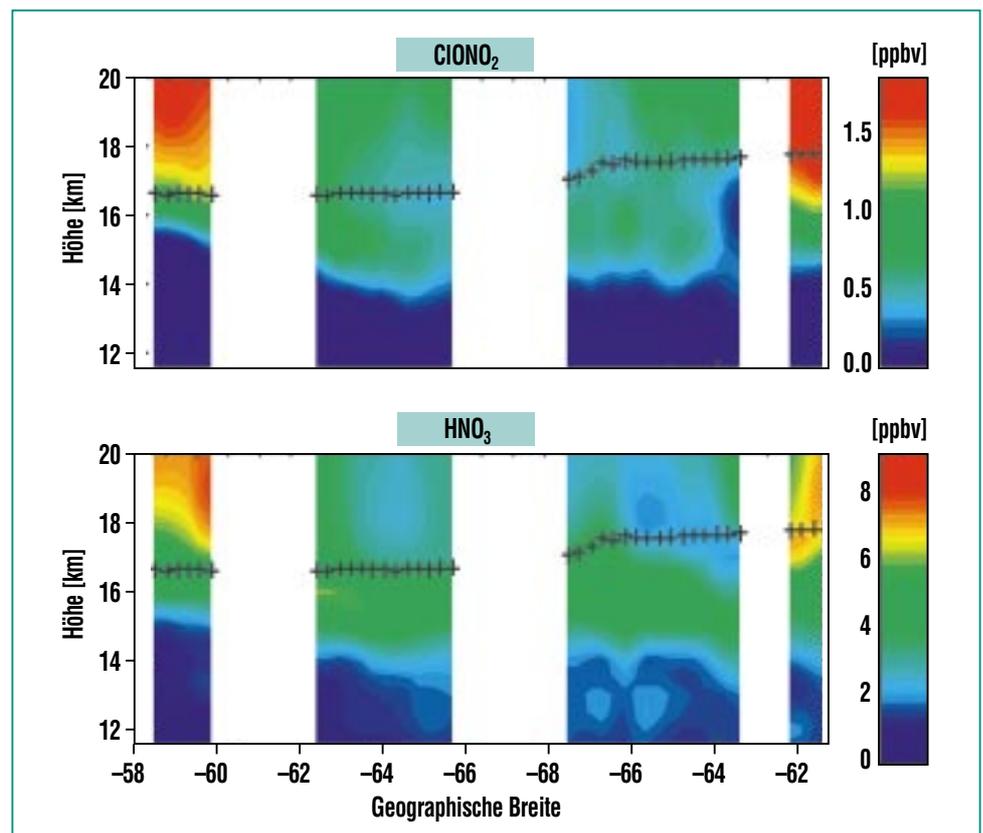
Viele der für die Klima- und Ozonforschung wichtigen Spurengase können durch In-situ-Messverfahren gemessen werden. Sie liefern Vertikalprofile der Spezies während der Auf- und Abstiege und der so genannten „dives“, sowie Horizontalverteilungen auf Flugniveau während der sonstigen Abschnitte des Messflugs. Die relative Genauigkeit und räumliche Auflösung der In-situ-Geräte übertrifft meistens diejenige der Fernerkundungsinstrumente. Dies ist für die Erfassung von kleinskaligen Prozessen wichtig und erlaubt so eine Abschätzung von Horizontalgradienten mit ihren Folgen für die Ableitung der Spurengasverteilungen aus Fernerkundungsmessungen. Da die Messungen der In-situ-Instrumente auf völlig unterschiedlichen Techniken basieren, liefern sie zudem eine unabhängige Überprüfung der Fernerkundungsmessungen.

Die Nutzlast der GEOPHYSICA für die In-situ-Spurengasmessungen im Rahmen der Validierung der Envisat-Chemie-Instrumente MIPAS, SCIAMACHY und GOMOS wurde großteils von deut-

schen Institutionen für den Einsatz auf der GEOPHYSICA entwickelt: Der Gaschromatograph HAGAR (High Altitude Gas AnalyzeR [7]) vom Institut für Meteorologie und Geophysik der J.W. Goethe Universität Frankfurt (CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, FCKW-11, FCKW-12 und Halon-12), das Hygrometer FISH (Fast In-Situ Stratospheric Hygrometer) und das ClO/BrO Instrument HALOX (HALogen OXide monitor) vom Institut für Stratosphärenchemie des Forschungszentrums Jülich, und das NO/NO<sub>y</sub> Instrument SIOUX (Stratospheric Observati-

on Unit for Nitrogen OXides) vom Institut für Physik der Atmosphäre des Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt.

Zur Nutzlast gehören zudem italienische und russische Sensoren zur Messung von Wasser und Ozon. Insgesamt bildet die einzigartige Kombination der Fernerkundung im mittleren und fernen Infrarot mit In-situ-Messungen auf der GEOPHYSICA die Grundlage eines umfassenden Vergleichs, bei dem systematische Fehler detektiert werden können.



**Abb.4:** Zweidimensionale Verteilungen der Spurengase Chlornitrat und Salpetersäure, wie sie von MIPAS-STR am 23.9.1999 bei einem Flug über die Grenze des antarktischen Polarwirbels hinweg gemessen wurden. Der südlichste Punkt des Flugs lag bei ca. -68 Grad und die Grenze des Polarwirbels befand sich zwischen -60 und -62 Grad. Die + Symbole kennzeichnen die Höhe und geographische Breite der GEOPHYSICA bei der Messung der einzelnen Vertikalprofile (ppbv = parts per billion volume).

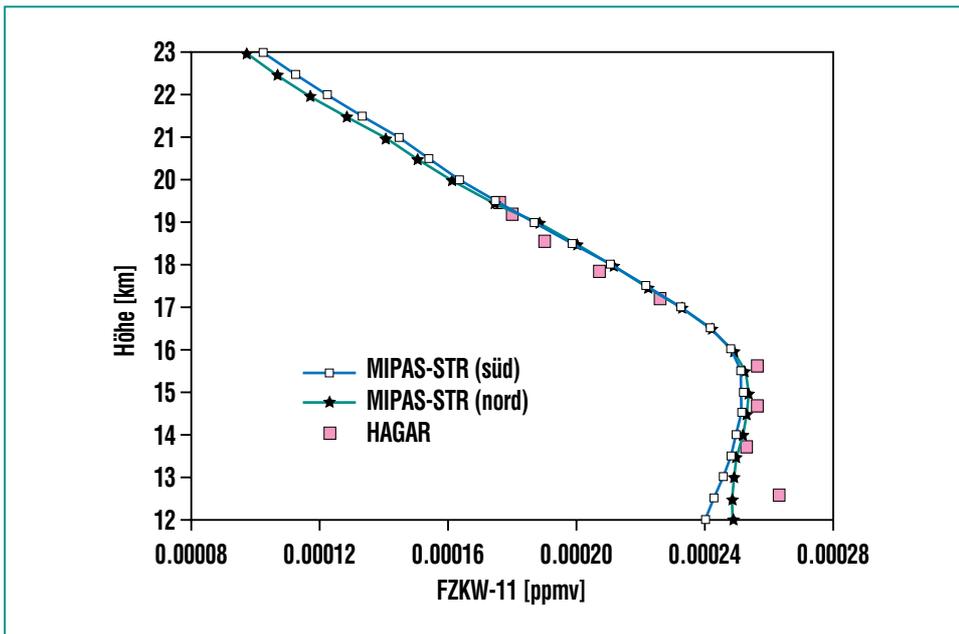


Abb. 5: Vergleich der FCKW-11 Profile von MIPAS-STR und von HAGAR, gemessen am 22. Juli 2002 über Norditalien (ppmv = parts per million volume).

### Beispiele von Messungen, die mit MIPAS-STR durchgeführt wurden

MIPAS-STR wurde erstmals im Rahmen der internationalen Messkampagne APE-GAIA [8] für wissenschaftliche Untersuchungen

eingesetzt. Die Kampagne fand, vom argentinischen Flughafen Ushuaia auf Feuerland ausgehend, im September und Oktober 1999 statt. In dieser Periode am Ende des Ozonabbaus in der Antarktis wird das reaktive Chlor (Cl, ClO) in die Reservoirgase ClONO<sub>2</sub> und HCl zurückgebildet. Bei günstiger Lage konnte der Polarwirbel von Ushuaia aus auf längeren Flügen von der GEOPHYSICA erreicht werden. MIPAS-STR konnte auf drei solcher Flüge erfolgreich eingesetzt werden. Abb. 3 zeigt ein Beispiel der MIPAS-STR-Messungen. Die niedrigen Volumen-Mischungsverhältnisse des ClONO<sub>2</sub>, 0,5 - 1,0 ppbv innerhalb des Polarwirbels, zeigten eindeutig, dass die Rückführung des reaktiven Chlors, anders als in der Arktis, zuerst zur Bildung des, von SAFIRE-A gemessenen, Reservoirgases HCl führt. Dies erklärt sich aus der starken Denitrifizierung (Entfernung des NO<sub>y</sub>) des antarktischen Polarwirbels, die auch in den MIPAS-STR-Messungen des HNO<sub>3</sub>, der Hauptbestandteil des NO<sub>y</sub>, ersichtlich war.

In Abb. 5 zeigt einen Vergleich der FCKW-11 Profile von MIPAS-STR mit In-situ-Messungen von HAGAR. Die Profile von HAGAR wurden während des Abstiegs kurz vor der Landung erhalten. Die Messungen wurden im Rahmen der Envisatvalidierung über Norditalien durchgeführt [9].

### Literatur

- [1] C. Piesch, T. Gulde, C. Sartorius, F. Friedl-Vallon, M. Seefeldner, M. Wölfel, C.E. Blom, H. Fischer, *Proc. of the 2nd Internat. Airborne Remote Sensing Conference and Exhibition, ERIM, Ann Arbor, MI, Vol. II, 199-208, 1996.*
- [2] P. Burkert, F. Fergg, H. Fischer, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, GE-21, No. 3, 345-349, 1983.*
- [3] C. Keim, *Dissertation im Fach Physik, Universität Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte des Forschungszentrums Karlsruhe, FZKA 6729, 2002.*
- [4] J. W. Brault, *Applied Optics, No. 35, 2891-2896, 1996.*
- [5] W. Kimmig, *Dissertation im Fach Physik, Universität Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte des Forschungszentrums Karlsruhe, FZKA 6665, 2001.*
- [6] Carli, B., P.A.R. Ade, U. Cortesi, P. Dickinson, M. Epifani, F.C. Gannaway, A. Gignoli, C. Keim, C. Lee, C. Meny, J. Leotin, F. Mencaraglia, A. G. Murray, I. G. Nolt, M. Ridolfi, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, Vol. 16, No. 10, 1313-1328, 1999.*
- [7] Riediger O., *Dissertation, J.W. Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2000.*
- [8] B. Carli, C.E. Blom, M.P. Chipperfield, U. Cortesi, G. DeRossi, G. Redaelli, *SPARC-Newsletter, No. 15, 31-24 2000.*
- [9] C.Y. Liu, C.E. Blom, T. Gulde, C. Keim, M. Höpfner, P. Loes, C. Piesch, C. Sartorius, *Proceedings of the Envisat Validation Workshop at ESRIN, Frascati, Italy, 9-13 December 2002, in press.*

# Messung stratosphärischer Spurengase für die Ozonforschung mit bodengebundener Millimeterwellenradiometrie und Infrarotspektroskopie

G. Kopp, Th. Blumenstock, A. Griesfeller, F. Hase, G. Hochschild, M. Schneider, IMK

## Einführung

Während mittlerweile alljährlich im antarktischen Frühjahr ein starker großräumiger Ozonverlust über der Antarktis durch vom Menschen in die Stratosphäre eingebrachte Chlorverbindungen beobachtet wird, zeigt sich über der Arktis aufgrund der komplexeren Topographie eine stärkere Variabilität, was die Modellierung und damit die Vorhersage des langfristigen Trends erschwert. Unklar ist auch, inwieweit der anthropogene Ozonabbau über der Arktis zur beobachteten Ozonabnahme in mittleren Breiten von einigen Prozent pro Dekade beiträgt.

Vom Menschen über Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe (FCKWs) in die Stratosphäre eingebrachtes Chlor ist normalerweise in chemisch neutralen Reservoirgasen gebunden. In der winterlichen polaren Stratosphäre wird es jedoch an der Oberfläche von Wolkenpartikeln in polaren Stratosphärenwolken (eng. „polar stratospheric clouds“, kurz PSCs) aus den Reservoirgasen freigesetzt [1]. PSCs entstehen in der unteren

Stratosphäre in Höhen von ca. 12 bis 25 km bei extrem tiefen Temperaturen unter  $-80^{\circ}\text{C}$ . Abb. 1 zeigt PSCs über Kiruna in Nordschweden im Januar 2000. Das an der Oberfläche der Wolkenpartikel freigesetzte molekulare Chlor wird am Ende der Polarnacht durch das Sonnenlicht photolysiert und es werden Chlorradikale gebildet, die über katalytische Reaktionen Ozon zerstören.

## Grundlagen der bodengebundenen Fernerkundung

Zahlreiche stratosphärische Spurengase besitzen im Millimeterwellen- und Infrarotgebiet charakteristische Spektrallinien, die von Rotations- bzw. Rotationsschwingungsübergängen herrühren. Durch Stöße mit anderen Molekülen werden diese Spektrallinien verbreitert, wobei die Linienbreite proportional zum Umgebungsdruck ist. Mathematisch beschrieben wird der Transport elektromagnetischer Strahlung durch die Atmosphäre durch die Strahlungsübertragungsgleichung.



**Abb. 1: Polare Stratosphärenwolken (PSCs) über Kiruna am 27. Januar 2000. Aufgrund ihres perlmuttartigen Erscheinungsbildes werden diese Wolken auch Perlmutterwolken genannt. An der Oberfläche der entweder aus einem Gemisch aus Schwefelsäure, Salpetersäure und Wasser oder aus Eiskristallen bestehenden Wolkenpartikel wird reaktives Chlor aus Reservoirgasen freigesetzt.**

### Die Strahlungsübertragungsgleichung:

$$I(h_0) = \underbrace{I(h_\infty)e^{-\tau(h_0, h_\infty)}}_{\substack{\text{Hintergrundstrahlung,} \\ \text{durch gesamte Atmosphäre} \\ \text{gedämpft}}} + \int_{h_0}^{h_\infty} \underbrace{\alpha(h)B(T(h))}_{\substack{\text{Quellfunktion} \\ \text{der Strahlung in} \\ \text{der Höhe } h}} \underbrace{e^{-\tau(h_0, h)}}_{\substack{\text{Dämpfung auf} \\ \text{dem Weg zum} \\ \text{Boden}}} dh$$

$I(h_0)$  ist die am Boden gemessene Strahlungsintensität,  $I(h_\infty)$  die Hintergrundstrahlung,  $B(T(h))$  die Planckfunktion bei der Temperatur  $T$  in der Höhe  $h$ , und  $\alpha(h)$  ist der höhenabhängige Absorptionskoeffizient. Die optische Dicke  $\tau(h_0, h)$  berechnet sich gemäß

$$\tau(h_0, h) = \int_{h_0}^h \alpha(h') dh'$$

Informationen über die Höhenverteilung finden sich aufgrund der Druckverbreiterung der Spektrallinien im Absorptionskoeffizienten  $\alpha(h)$ .

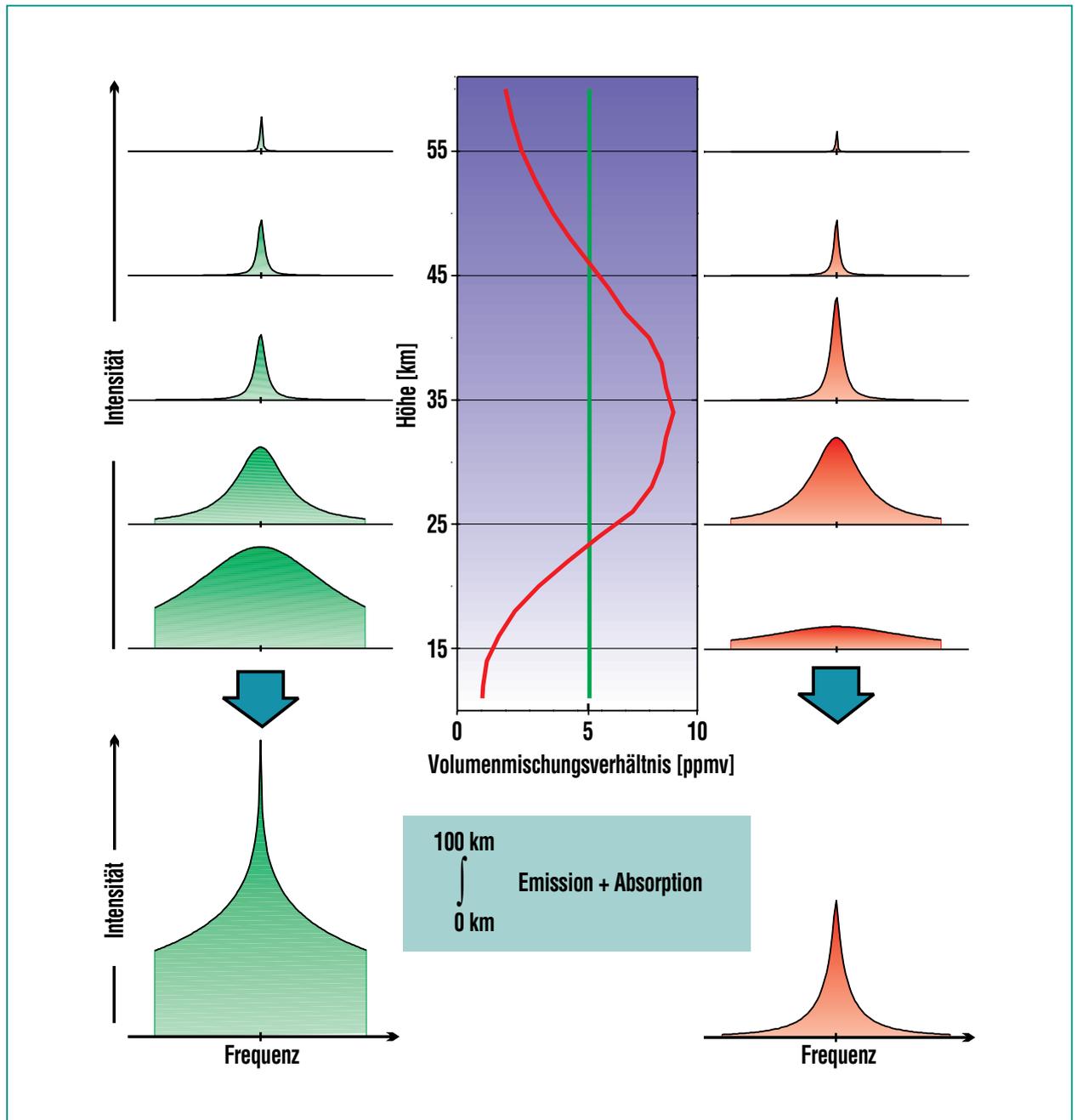


Abb. 2: Strahlungstransport durch die Atmosphäre bei Messung in Emissionsgeometrie. Aufgrund der Zunahme des Druckes zum Boden hin werden die von den Spurengasen herrührenden Spektrallinien immer stärker verbreitert. Die linke Seite zeigt die Sequenz für ein Spurengas mit konstantem Volumenmischungsverhältnis (grünes Profil), während rechts der Verlauf für ein Spurengas mit einem Maximum bei 35 km Höhe dargestellt ist (rotes Profil). Man erkennt deutlich die Abhängigkeit der einzelnen Strahlungsbeiträge vom Volumenmischungsverhältnis. Die am Boden messbaren Intensitätsspektren im unteren Teil der Abbildung stellen eine Überlagerung der einzelnen Strahlungsbeiträge dar und beinhalten in ihrer unterschiedlichen Signaturform Informationen über die Höhenverteilung des betrachteten Spurengases.

Wird, wie in der bodengebundenen Millimeterwellenradiometrie üblich, in Emissionsgeometrie, d.h. gegen den kalten kosmischen Hintergrund gemessen, kann die Hintergrundstrahlung vernachlässigt werden. Im Gegensatz dazu wird bei der bodengebundenen Infrarotspektroskopie üblicherweise in Absorptionsgeometrie, d.h. in die Sonne gemessen. In diesem Falle kann die Eigenemission der Atmosphäre vernachlässigt werden und die gemessenen Spektrallinien zeigen sich als Absorptionslinien im Sonnenspektrum.

Abb. 2 zeigt anhand einer Messung in Emissionsgeometrie, dass ein unterschiedliches Höhenprofil eine unterschiedliche Form der am Boden messbaren Signatur ergibt. Dies erlaubt umgekehrt Rückschlüsse auf die Höhenverteilung des betrachteten Spurengases. Aufgrund des vergleichsweise geringen Informationsgehaltes in den gemessenen Spektren müssen an die gesuchte Lösung allerdings zusätzliche Forderungen gestellt werden, um ein physikalisch sinnvolles Ergebnis zu erhalten. Dies kann z.B. eine Glattheitsbedingung sein oder die Forderung, dass die Abweichungen zu einem vorgegebenen Höhenprofil nicht allzu groß werden dürfen [2]. Auf diese Weise lassen sich Höhenprofile mit einer Höhenauflösung von bis zu 8 km für die stärksten Signaturen gewinnen.

### Messgeräte und geeignete Standorte

Das am IMK entwickelte Millimeterwellenradiometer MIRA2 misst im Frequenzbereich 268-280 GHz

und ist damit in der Lage, Ozon ( $O_3$ ), Chlormonoxid (ClO), Salpetersäure ( $HNO_3$ ) und Distickstoffoxid ( $N_2O$ ) im Höhenbereich von ca. 17-55 km zu messen. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, Gesamtsäulen des troposphärischen Wasserdampfgehaltes zu ermitteln. Da für die Messungen kein direktes Sonnenlicht benötigt wird, kann der Messbetrieb rund um die Uhr, auch während der Polarnacht, aufrecht erhalten werden. Da Millimeterwellenstrahlung Wolken nahezu ungehindert durchdringt, sind Messungen auch unter vergleichsweise ungünstigen Witterungsverhältnissen möglich. Trotzdem ist bei der Wahl eines Standortes sorgfältig auf trockene Witterung mit geringer Wasserdampfgesamt säule zu achten.

Die vom IMK für bodengebundene Messungen eingesetzten Fouriertransformations-Infrarotspektrometer (FTIR) sind kommerzielle Geräte der Firma Bruker und messen im Frequenzbereich  $700-5000\text{ cm}^{-1}$ , das entspricht etwa 21-150 THz. Aufgrund des im Vergleich zur Millimeterwellenradiometrie riesigen Frequenzbereiches können zahlreiche Spurengase gleichzeitig erfasst werden. Für die Messungen wird direktes Sonnenlicht benötigt, weshalb bei Dunkelheit oder Bewölkung der Messbetrieb ruht. Profile können je nach Spurengas im Höhenbereich von etwa 5-35 km gewonnen werden, von den Konstituenten mit schwacher Signatur werden Gesamtsäulen ermittelt.

Eines der Infrarotspektrometer des IMK wird in Kiruna in Nordschweden in Kooperation mit dem dort ansässigen Institutet för Rymdfysik (IRF, Schwedisches

Institut für Weltraumphysik) und der Universität Nagoya betrieben. Die Messungen werden durchgeführt im Rahmen des Network for the Detection of Stratospheric Change (NDSC), das der Messung langfristiger Trends zahlreicher anthropogen beeinflusster stratosphärischer Spurengase dient und durch Vernetzung zahlreicher Stationen eine möglichst globale Abdeckung anstrebt.

Neben der guten Infrastruktur bietet der Standort den für die Infrarotspektroskopie wichtigen Vorteil, dass die Polarnacht relativ kurz ist und dadurch der Messbetrieb Ende Januar wieder aufgenommen werden kann. Außerdem kommen durch die Lage im Lee des Skandinavischen Rückens durch den Föhneffekt häufig trockene Luftmassen über Kiruna zu liegen, wodurch eine ausreichend hohe Transparenz der Atmosphäre gewährleistet wird.

Weiterhin können an den Bergen Wellenbewegungen angeregt werden, die sich bis in die Stratosphäre ausbreiten. Diese sog. Leewellen können lokal zu einer Temperaturabsenkung und damit zur verstärkten Bildung von PSCs führen. Deshalb erweist sich der Messstandort Kiruna als günstig für die Untersuchung dieser für den anthropogenen Ozonabbau entscheidenden Wolkenform.

Aufgrund dieser Vorzüge wurden zwischen 1996 und 2001 auch insgesamt fünf Messkampagnen mit dem Millimeterwellenradiometer MIRA2 im Winter und Frühjahr am IRF durchgeführt. Die gleichzeitigen Messungen von FTIR und MIRA2 am gleichen Messstandort stellten die gefundenen Ergebnis-



Abb. 3: Links: Das Periskop von MIRA 2 (vorne) und der Sonnensucher des FTIR (hinten) auf dem Dach des IRF in Kiruna. Rechts: Der Messcontainer des FTIR auf Teneriffa. Beide Messstandorte bieten aufgrund der hohen Transparenz der Atmosphäre ausgezeichnete Voraussetzungen für bodengebundene Messungen.

se auf eine breitere Datenbasis und gaben durch Kombination der Datensätze ein detaillierteres Bild des stratosphärischen Geschehens [3]. Die linke Seite von Abb. 3 zeigt einen Blick auf das Dach des IRF. Im Vordergrund zu sehen ist das Periskop von MIRA2, weiter im Hintergrund der Sonnensucher des FTIR.

Ein weiteres Infrarotspektrometer wird vom IMK im Rahmen des NDSC in Kooperation mit der spanischen meteorologischen Gesellschaft am Izaña Observatorium auf Teneriffa betrieben. Dieser auf 2367 m ü. d. M. gelegene Standort bietet durch seine geringe Luftfeuchte und wolkenlosen Himmel an nahezu 80% aller Tage ausge-

zeichnete Voraussetzungen für Infrarotspektroskopie. Außerdem ermöglicht es Teneriffa als subtropischer Standort, Austauschprozesse zwischen den Tropen, in denen ein Großteil des stratosphärischen Ozons gebildet wird, und den mittleren Breiten zu untersuchen. Die rechte Seite von Abb. 3 zeigt den FTIR-Messcontainer auf Teneriffa.

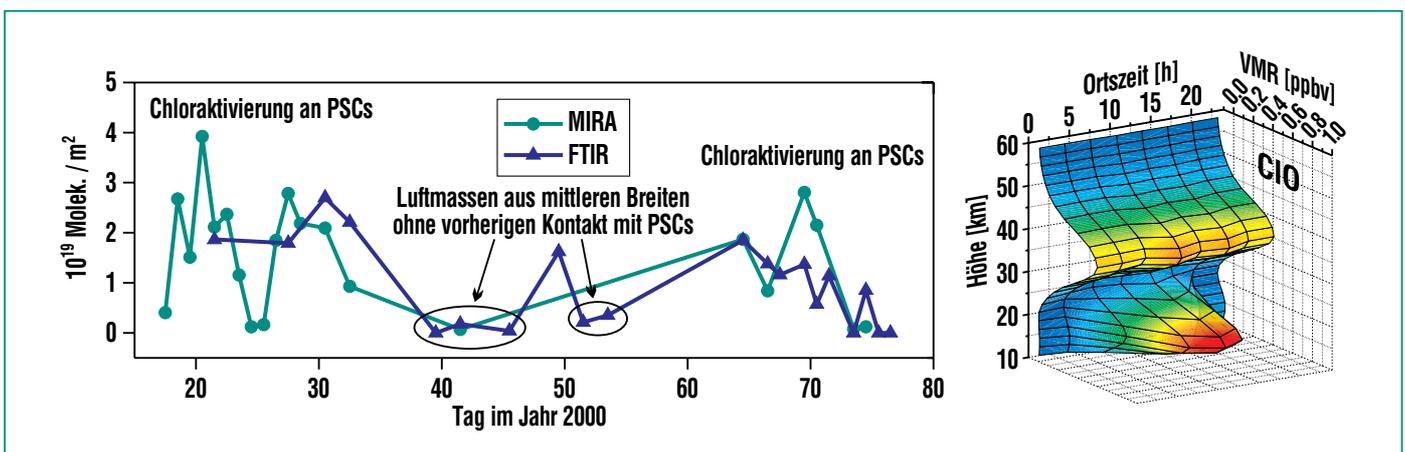


Abb. 4: CIO-Messungen von MIRA 2 und dem FTIR in Kiruna im Winter 1999/2000. Links: Gesamtsäulen von CIO um die Mittagszeit von Mitte Januar bis Mitte März 2000. Im Januar und März konnte an zahlreichen Tagen Chloraktivierung durch Kontakt der beobachteten Luftmassen mit PSCs gemessen werden. Mitte Februar wurden bevorzugt Luftmassen aus niedrigeren Breiten ohne vorherigen Kontakt mit PSCs beobachtet. Gegen Ende der Zeitreihe ist durch die verstärkte Bindung von CIO in Reservoirgasen die Tendenz zu niedrigeren Gesamtsäulen zu erkennen. Rechts: Sequenz der von MIRA 2 am 11. März 2000 gemessenen CIO-Profile. Deutlich zeigt sich der Tagesgang um 20 km Höhe aufgrund der Photolyse des bei Nacht gebildeten  $Cl_2O_2$ -Dimers durch die Sonneneinstrahlung.

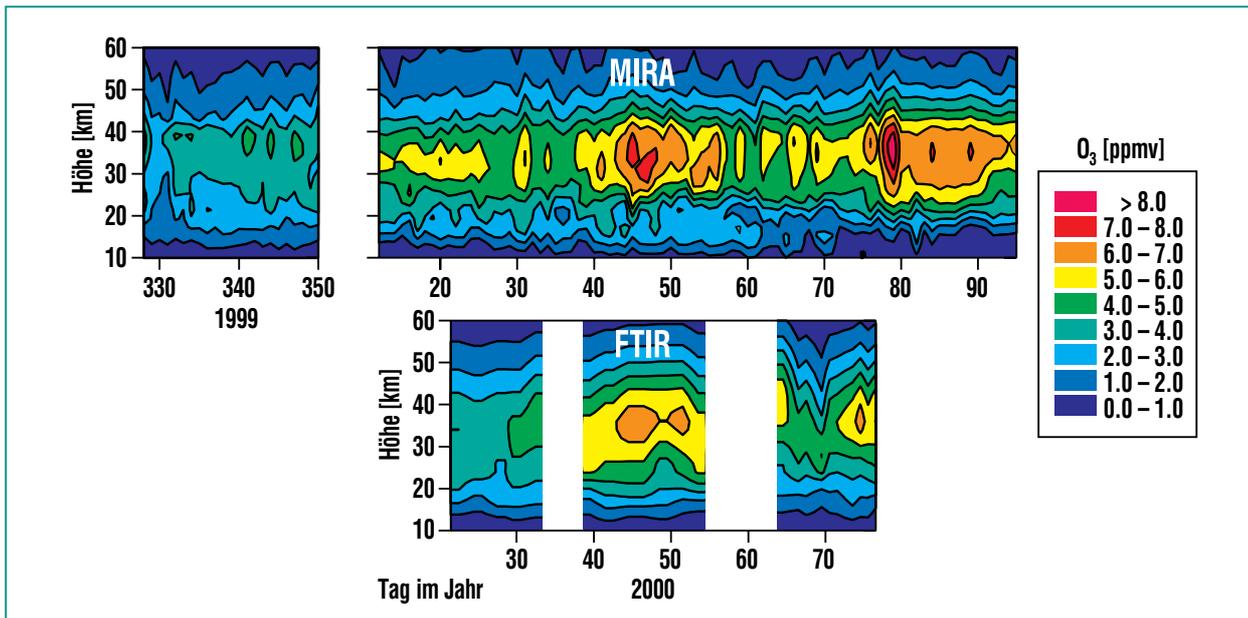


Abb. 5: Zeitliche Entwicklung von Ozon im Winter 1999/2000 über Kiruna, gemessen von MIRA 2 (oben) und dem FTIR (unten). Die starke Variabilität in der mittleren Stratosphäre bei etwa 35 km Höhe ist auf dynamische Effekte zurückzuführen. Der anthropogene Ozonabbau um 20 km Höhe ist in dieser Darstellung nur schwer zu erkennen.

### Messungen von ClO

Chlormonoxid (ClO) spielt eine Schlüsselrolle beim anthropogenen Ozonabbau, weshalb hier beispielhaft Messergebnisse dieses Spurengases vom Winter 1999/2000 in Kiruna gezeigt werden. Im linken Teil der Abb. 4 sind die jeweils um die Mittagszeit gemessenen Gesamtsäulen dargestellt, die eine im allgemeinen gute Übereinstimmung zwischen beiden Messgeräten zeigen. Die auftretenden Abweichungen sind im wesentlichen auf apparative Einflüsse wie z.B. Rauschen zurückzuführen. Die Ergebnisse zeigen Schwankungen des ClO-Gesamtsäulengehaltes aufgrund dynamischer und chemischer Einflüsse. Der rechte Teil der Abbildung zeigt die von MIRA 2 am 11. März 2000 gemessene Zeitreihe von ClO. Da MIRA 2 in der

Lage ist, mit einer zeitlichen Auflösung von etwa drei Stunden rund um die Uhr ClO zu messen, zeigt sich der typische Tagesgang um 20 km Höhe aufgrund der Bildung des Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-Dimers in der Nacht und seiner Photolyse am nächsten Morgen nach Sonnenaufgang [4].

### Messungen von Ozon

Abb. 5 zeigt die aus den Messungen beider Geräte gewonnenen Zeitreihen von Ozon. Deutlich sind die hauptsächlich durch dynamische Prozesse verursachten Konzentrationsschwankungen in der mittleren Stratosphäre zu erkennen. Da der anthropogene Ozonabbau in der unteren Stratosphäre in diesen Zeitreihen nur schwer zu erkennen ist, zeigt Abb. 6 die Ozonabbauprofile, die durch Mittelung der Profile von Januar und März, Korrektur um dynamische

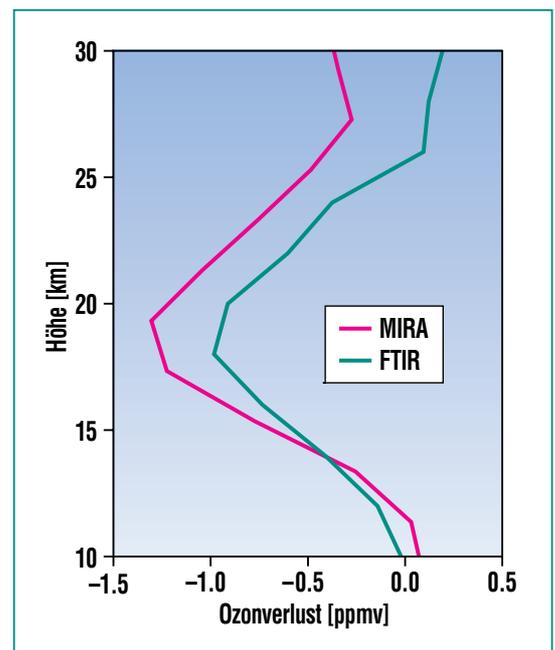


Abb. 6: Ozonverlust über Kiruna von Januar bis März 2000. Die Abweichungen zwischen beiden Kurven beruhen hauptsächlich auf der unterschiedlichen Höhenauflösung der verwendeten Messgeräte

---

---

Effekte und anschließende Differenzenbildung gewonnen wurden. Die Unterschiede zwischen beiden Kurven lassen sich mit der unterschiedlichen Höhenauflösung beider Messgeräte erklären. Es wird deutlich, dass sich der Ozonabbau hauptsächlich auf den Höhenbereich zwischen 15 und 25 km erstreckt. In der stratosphärischen Säule ergibt sich ein anthropogener Ozonverlust von fast 18 %.

### Ausblick

Die FTIR-Messungen in Kiruna und auf Teneriffa werden in Zukunft zur Satellitenvalidierung genutzt, z.B. für den am 1. März 2002 gestarteten ENVISAT. Weiterhin werden die beiden Infrarotspektrometer auch in Zukunft routinemäßig Messungen im Rahmen des NDSC an den bisherigen Standorten durchführen. Das Millimeterwellenradiometer MIRA 2

wird künftig dauerhaft auf dem Pico Espejo in Venezuela stationiert sein und dort ebenfalls der Validierung von ENVISAT dienen. Es wird angestrebt, diesen Standort als erste primäre tropische NDSC-Station zu etablieren.

### Literatur

- [1] P. J. Crutzen, F. Arnold,  
*Nature*, 324, 651-655, 1986.
- [2] M. Kuntz,  
*KfK-Bericht Nr. 5421*, 1993
- [3] G. Kopp, H. Berg, Th. Blumenstock,  
H. Fischer, F. Hase, G. Hochschild,  
M. Höpfner, W. Kouker,  
Th. Reddmann, R. Ruhnke,  
U. Raffalski, Y. Kondo,  
*akzeptiert zur Veröffentlichung im  
Journal of Geophysical Research*,  
2001
- [4] L. T. Molina, M. J. Molina,  
*J. Phys. Chem.*, 91, 433-436, 1987

# Bestimmung und Analyse der Temperatur von Landoberflächen aus Satellitendaten

F.-S. Olesen, F.-M. Götsche, IMK

## Einleitung

Die Erdoberfläche wird durch Absorption von Sonnenlicht erwärmt. Die aufgenommene Energie – bei dunklen Flächen ist es mehr als bei hellen – wird als fühlbare Wärme, durch Wasserverdunstung als latente Wärme, sowie als Wärmestrahlung zwischen 3,5 und etwa 100  $\mu\text{m}$  wieder abgegeben. Das Wettergeschehen wird wesentlich durch die je nach Landoberfläche verschieden starke Absorption und unterschiedliche Umwandlung der absorbierten Sonnenenergie angetrieben.

Die Landoberflächen-Temperatur (Land Surface Temperature = LST) kann von Radiometern auf geostationären Satelliten (z.B. METEOSAT) über Jahrzehnte großflächig erfasst werden. Da Radiometermessungen aber durch die Atmosphäre beeinflusst werden, sind für die Auswertung der Rohdaten aufwändige Strahlungs-Übertragungs-Rechnun-

gen (SÜR) unter Berücksichtigung der Temperatur- und Feuchtestruktur der Atmosphäre sowie des Emissionsvermögens der Landoberflächen nötig [7]. Um einige Größenordnungen schneller lässt sich die SÜR mit neuronalen Netzen (NN) durchführen. Ziel ist die Ableitung klimatologisch wichtiger Informationen wie z.B. des täglichen Temperaturhubs.

Weltweit finden tiefgreifende Veränderungen der Landnutzung statt. Die Landoberflächen-Temperaturen zusammen mit ebenfalls aus Satellitendaten abgeleiteten Vegetationsparametern erlauben eine objektive und flächendeckende Analyse des Oberflächenzustandes und seiner Veränderungen.

## Temperatur von Landoberflächen

LST können entweder mit Thermometern vor Ort gemessen oder von ferne aus der Intensität und

spektralen Verteilung der emittierten Wärmestrahlung abgeleitet werden. Die Messung vor Ort ist in der Praxis fast unmöglich, weil Landoberflächen nicht homogen sind, sondern z.B. aus Boden, Vegetation und der Luft dazwischen bestehen. Selbst in sehr einfachen Fällen, z.B. in der australischen Wüste, ist der mit direkten Temperaturmessungen verbundene Aufwand hoch [6]. Ein Radiometer integriert dagegen über die von beliebig strukturierten Flächen emittierte Strahlung. Allerdings wird vom Satelliten nur die Strahlung in einer Richtung gemessen, was eine Fehlerquelle sein kann. Auch die Atmosphäre zwischen der Oberfläche und dem Satelliten beeinflusst die Messung. Bei der Ableitung der LST müssen diese Fehlerquellen soweit wie möglich berücksichtigt werden. Die realen Bedingungen und das Prinzip der Atmosphärenkorrektur sind in Abb. 1 dargestellt.

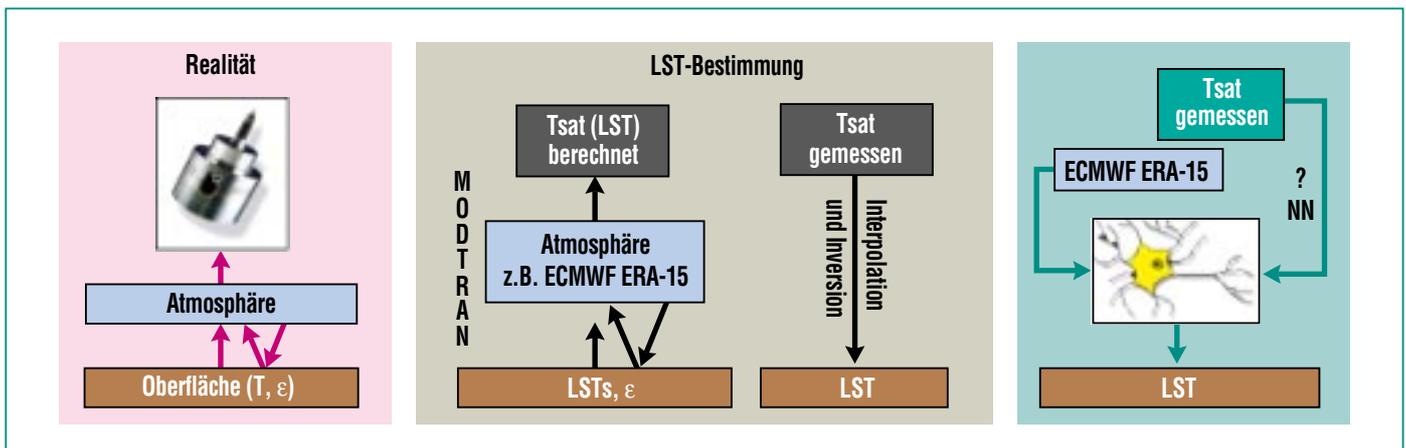


Abb. 1: Bestimmung der Land-Oberflächen-Temperatur (LST). Links die Realität bei wolkenfreien Bedingungen (keine Streuung): Die von der Oberfläche emittierte und reflektierte Strahlung wird auf ihrem Weg zum Satelliten von der Atmosphäre beeinflusst. In der Mitte die Bestimmung der LST mittels SÜR: Für angenommene LST und Emissionsvermögen ( $\epsilon$ ) wird die erwartete Strahlung am Satelliten berechnet. Durch Interpolation mehrerer Szenarien gelangt man zu der zur Strahlungsmessung passenden LST. Rechts: Kann die SÜR und die für die LST Bestimmung nötige Interpolation durch ein sehr schnelles neuronales Netz ersetzt werden? Siehe dazu Abb. 2.

## SÜR mit neuronalen Netzen

Bei der Ermittlung der LST muss der Einfluss der Atmosphäre auf die vom Satelliten gemessene Wärmestrahlung durch SÜR z.B. mit dem Computerprogramm MODTRAN berücksichtigt werden. Neuronale Netze (NN) bewältigen diese Aufgabe fast ohne Verlust an Genauigkeit, aber sehr viel schneller [4]. Das mit dem „Stuttgart Neural Network Simulator“ [10] simulierte NN ist ein „Feed-Forward“ Netz, in dem die Neuronen nur von einer Schicht zur nächsten durch Gewichte verbunden sind. Es hat eine Eingabeschicht, 2 Zwischenschichten („hidden layer“) und eine Ausgabeschicht.

Für das Training eines NN sind grundsätzlich größere, repräsentative Datensätze nötig, die für die Eingabegrößen (hier: Zustand der Atmosphäre und einige Bodenparameter) die korrekten Zustände der Ausgabeneuronen (hier LST) enthalten. Aus repräsentativen, atmosphärischen Temperatur- und Feuchteprofilen des TIGR-Datensatzes wurden mit MODTRAN erwartete Messungen am Satelliten berechnet und diese anschließend zum Belernen des NN verwendet, wobei die Gewichte rückwärts bis zur Eingabeschicht angepasst werden [8]. Die Qualität des Netzes wird anhand von Validierungsdaten ermittelt, die den Trainingsdaten zufällig entnommen und nicht zum Belernen verwendet wurden (siehe Abb. 2).

Die „beste“ Topologie wurde mit Hilfe des „evolutionären“ Algorithmus ENZO [1] vermittelt. Dabei wird eine Population von Netzen durch „Evolutionprozesse“ verändert, trainiert, und anschließend Nachkommen der tauglichsten Netze für die nächste Generation erzeugt.

Um das NN an realen Bedingungen zu prüfen, wurden SÜR mit MODTRAN für Analysen des Vorhersagemodells des ECMWF von 1996 durchgeführt. Das NN erreichte einen mittleren Fehler von 0,31°C und ist dabei sehr schnell: Ein Monat CPU-Zeit für MODTRAN schrumpft auf 5 Minuten für das NN (siehe Abb. 2), was klimatologische Anwendungen ermöglicht.

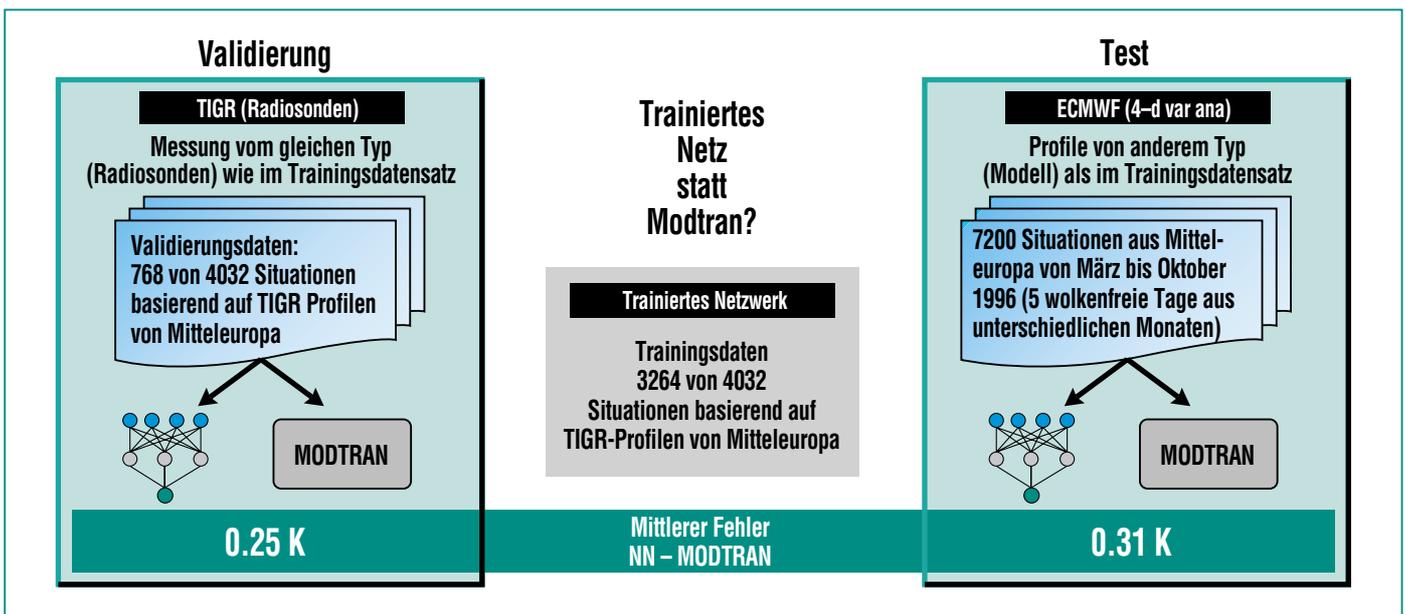
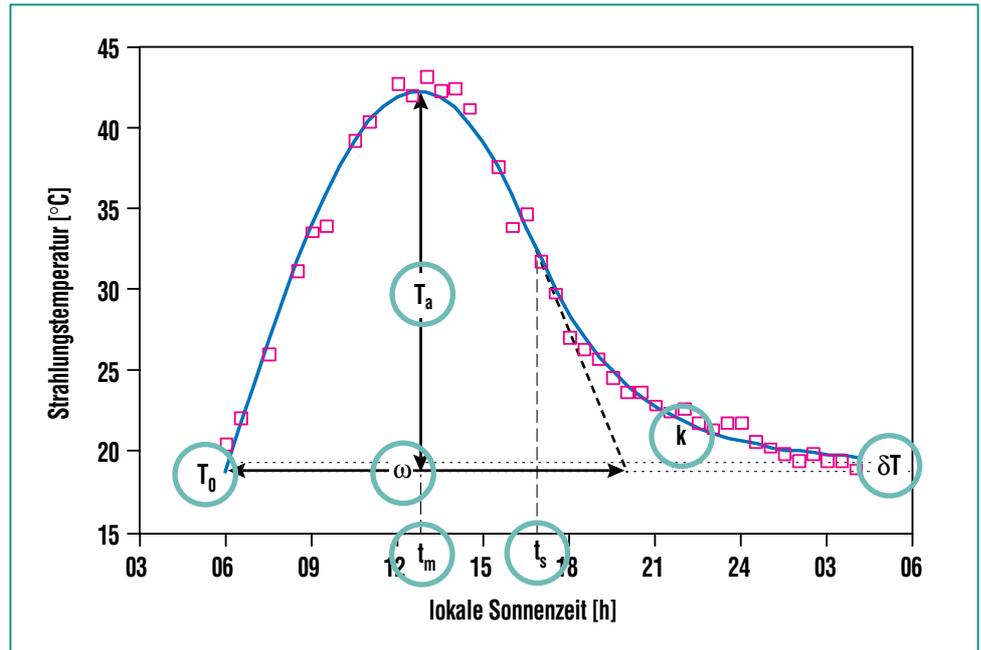


Abb. 2: Validierung und Test des NN. Das Netz wurde mit 3264 Situationen trainiert. Jede Situation ist eine Kombination aus Temperatur- und Feuchteprofil sowie angenommenen Werten für LST-Emissionsvermögen und Weg durch die Atmosphäre. Links die Abweichung der Ausgabe des Netzes von den Sollwerten, also der SÜR mit MODTRAN für den Validierungsdatensatz: Das NN ist in der Lage, MODTRAN-Rechnungen für Radiosonden mit der vorgegebenen Genauigkeit zu ersetzen. Rechts ein Test für das mit Radiosondenprofilen trainierte NN mit Profilen aus ECMWF-Analysen. Der Test zeigt, dass das NN die MODTRAN-Rechnungen mit einer Abweichung von 0,31 K bei einem Geschwindigkeitsvorteil von ca. 10.000 ersetzen kann.

## Modellierung des Tagesganges der LST

Die aus IR-Satellitenmessungen abgeleitete Landoberflächen-Temperatur liefert wegen der Wolkenbedeckungen ein in Zeit und Raum lückenhaftes Bild, aus dem lückenlose Datenfelder und Zeitreihen berechnet und aussagekräftige Oberflächentemperaturen abgeleitet werden müssen. Das hierzu verwendete Modell [3] approximiert den Verlauf der Strahlungstemperatur bei andauerndem Sonnenschein durch eine cos-Funktion, während die nächtliche Abkühlung durch eine Exponential-Funktion angenähert wird (Abb. 3). Um die fünf freien Parameter für Zeiträume von 10 Tagen oder einem Monat zu berechnen, werden repräsentative Maximum- und Median-Werte der LST für jeden Bild- und Zeitpunkt bestimmt. Die Anpassung der Parameter ist wenig anfällig gegen Ausreißer, weil ein M-Schätzer verwendet wird. Die Parameter des Modells werden zunächst an die unkorrigierten Strahlungstemperaturen und dann unter Festhalten einiger Parameter an die verfügbaren LST angepasst. So ist es möglich, lückenlose LST mit der 30 Minuten-Auflösung von METEOSAT zu berechnen, auch wenn nur zu vier Zeitpunkten des Tages die atmosphärischen Profile verfügbar sind (ECMWF). Damit eröffnet sich die Möglichkeit, die thermischen Parameter (siehe Abb. 3, z. B. Tagesamplitude, nächtliche Abkühlungskurve, Zeitpunkt der Höchsttemperatur) zusammen mit weiteren Bodeneigenschaften nach verschiedenen Gesichtspunkten zu analysieren [9].



**Abb. 3: Modellierung des Tagesganges der Strahlungstemperatur.** Für die Zeit des Sonnenscheins wird eine cos-Funktion angepaßt, während die Temperaturabnahme mit einer Exponential-Funktion beschrieben wird. Die 7 Modellparameter sind in Tab. 1 erklärt. In gleicher Weise lassen sich LST modellieren.

$T_0$	Starttemperatur am Morgen	Anpassung an Messung
$T_a$	Amplitude	Anpassung an Messung
$T_m$	Zeitpunkt des Maximums	Anpassung an Messung
$\omega$	Sonnenscheindauer	Aus astronomischen Daten
$t_s$	Sonnenundergang (Start der e-Funktion)	Anpassung an Messung
$k$	Abklingkonstante in der Nacht	Aus Stetigkeitsbedingung
$\delta T$	die Temperaturdifferenz am Ende des Modell-Tages	Anpassung an Messung

**Tab. 1: Bedeutung der Parameter des Modells zur Beschreibung des Tagesganges der Temperatur.** Zur Stabilisierung der Anpassung der Parameter wurde die Stetigkeit und Differenzierbarkeit des Modells am Übergang von cos zur Exponential-Funktion als zusätzliche Zwangsbedingung angenommen. Unter dieser Annahme kann die Abklingkonstante berechnet werden. Ferner wurde die Sonnenscheindauer aus astronomischen Daten berechnet. Die verbleibenden 5 Parameter werden den Messungen angepaßt.

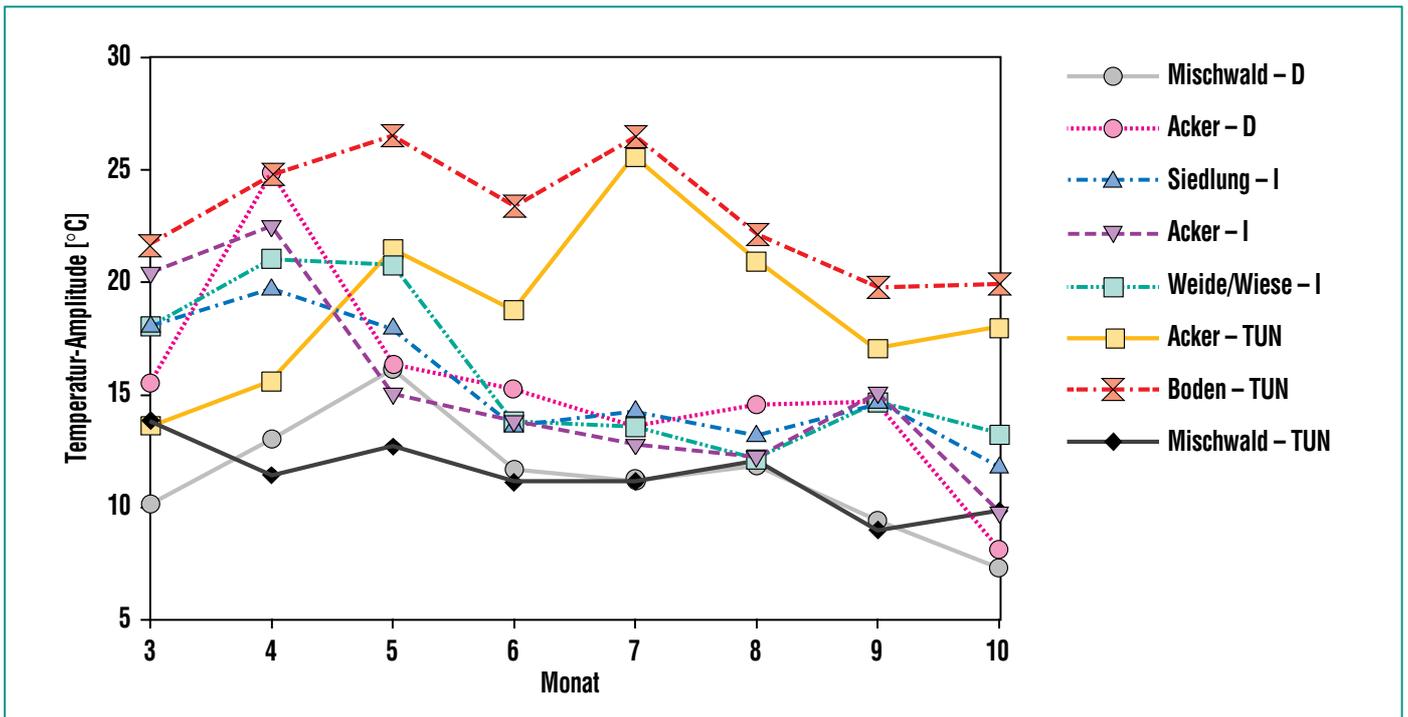


Abb. 4: Die Amplitude der Landtemperatur von März bis Oktober 1996 für verschiedene Oberflächen in Deutschland (D), Italien (I) und Tunesien (TUN). Oberflächentypen: Mischwald, Ackerfläche, Siedlung, Weide/Wiese, nackter Boden.

In Abb. 4 sind Temperatur-Amplituden für einige Landoberflächen-Klassen in Abhängigkeit der Jahreszeit aufgetragen. Sie sind kaum vom saisonalen Verlauf des Sonnenstandes abhängig. Stark ausgeprägt ist dagegen die Antwort auf Änderungen des Bewuchses, wie die Klasse landwirtschaftlich genutzte Fläche („crop-land“) in Tunesien zeigt: Sie verhält sich im Juli nach der Ernte fast wie vegetationsloser Boden („bare ground“). Bemerkenswert ist, dass der Mischwald („mixed forest“) in Tunesien und Deutschland annähernd die gleiche Amplitude zeigt. Für alle Oberflächen in Italien fällt die Amplitude vom Frühjahr zum Sommer ab.

### Ausblick

Eine langfristige und großflächige Messung der Landoberflächen-Temperatur ist mit METEOSAT und MSG (Meteosat Second Generation) möglich. Die Korrektur des atmosphärischen Einflusses erfolgt mit NN so schnell, dass über 20 Jahre archivierte METEOSAT-Daten zur klimatologischen Analyse der LST auf kontinentalem Maßstab verwendet werden können. Zusammen mit den aus NOAA-AVHRR-Satellitendaten abgeleiteten Entwicklung des Bewuchses [5] ist eine sonst nicht erreichbare langfristige und horizontal relativ hoch auflösende Analyse möglicher Wüstenbildung und sonstiger Bodenverän-

derungen erreichbar. Die Kombination der NOAA-AVHRR und METEOSAT/MSG-Daten wird so einen wichtigen Beitrag zur Diskussion von Klimaänderungen infolge veränderter Landnutzung liefern [2].

## Literatur

- [1] H. Braun, T. Ragg, (1996), *Internal report. Fakultät für Informatik, Universität Karlsruhe. 1996,21. University of Karlsruhe, Institute for logic, complexity, and deduction systems, Germany.*
- [2] F.-M. Götttsche, F.-S. Olesen, P. Dash, 2002, *Advances in Space Research (submitted).*
- [3] F.-M. Götttsche, F.-S. Olesen, (2001), *Remote Sens. Environ., 76(3): 338-349.*
- [4] F.-M. Götttsche, F.-S. Olesen, (2002), *Remote Sens. Environ., 80(1): 157-164.*
- [5] D. Koslowsky, 1996, *Freie Universität Berlin, Meteorologische Abhandlungen, Verlag von Dietrich Reimer, Neue Folge Serie A, Monographien, Band 9, Heft 1, 135 Seiten. Berlin, 1995.*
- [6] A. J. Prata, 1994, *J. Geophys. Res. Vol. 99, No. D6, p. 13,025-13,058 (94JD00409)*
- [7] H.Reutter, F. S. Olesen, H. Fischer, (1994), *Int. J. Remote Sens., 15: 95-104.*
- [8] M. Riedmiller, H. Braun, (1993), *Proc. of the IEEE Int. Conf. on Neural Networks (ICNN 93), San Francisco, USA, 1: 586-591.*
- [9] S. Schädlich, F.-M. Götttsche, F.-S. Olesen, (2001), *Remote Sens. Environ., 75(1): 39-46.*
- [10] A. Zell, (1994): *Simulation neuronaler Netze, Buch, Oldenbourg-Verlag, München, Germany.*

# Simulation konvektiver Mischwolken

A. Seifert, K. D. Beheng, IMK

## Einleitung

Wolken und Niederschlag sind ein wesentlicher Bestandteil des Wetter- und Klimageschehens: Sie steuern den atmosphärischen Wasserkreislauf, beeinflussen maßgeblich den Strahlungshaushalt und wirken bei der Ausbreitung und Umsetzung von Schadstoffen mit.

Gleichzeitig sind Wolken ein hochkomplexes physikalisches System: Sie bestehen aus Myriaden Wassertropfen und Eisparkeln unterschiedlicher Größe und Form, bei deren Entstehung und Wachstum viele physikalische Prozesse zusammenwirken.

Numerische Atmosphärenmodelle, wie sie heutzutage in der Wettervorhersage und Klimamodellierung eingesetzt werden, können auf Grund der groben räumlichen Auflösung nur ausgedehnte Schichtwolken gut erfassen und damit deren weitere Entwicklung verlässlich vorhersagen. Kleineräumige konvektive Wolken wie z.B. Gewitter können von solchen Modellen nicht aufgelöst werden. Um trotzdem zu einem besseren Verständnis von Wolken und deren Effekten zu gelangen, werden häufig spezielle, so genannte wolkenauflösende Simulationsmodelle, eingesetzt.

## Das Atmosphärenmodell KAMM2

Um konvektive Wolken im Detail zu simulieren, ist ein numerisches Atmosphärenmodell erforderlich, das die Strömungs- und Thermodynamik der Atmosphäre auf einem hochaufgelösten Rechengitter, d.h. mit einer horizontalen Ma-

schensweite von 1 km oder weniger, berechnen kann (zum Vergleich: Wettervorhersagemodelle haben ca. 10 km, Klimamodelle über 100 km Maschenweite). Mit dem Karlsruher mesoskaligen Atmosphärenmodell KAMM2 verfügt das IMK über ein solches Modell.

Der Anspruch, Wolken mit einem solchen Modell realitätsnah erfassen zu können, erfordert, die verschiedenen Wolken- und Niederschlagspartikelarten sowie ihre Wachstums- und Wechselwirkungsprozesse möglichst genau zu modellieren. Während die Gleichungen der Hydro- und Thermodynamik seit langem bekannt sind – diese sind nichts anderes als die Navier-Stokes-Gleichung und die Hauptsätze der Thermodynamik –, ist die Formulierung von Gleichungen, die die zeitliche und räumliche Entwicklung der Wolken- und Niederschlagspartikel beschreiben, nicht endgültig gelöst. Dabei ist auch zu beachten, dass eine zu detaillierte Behandlung der Wolkenprozesse zu einem Rechenaufwand führen kann, der auch heute noch den schnellsten Großrechner überfordert. Hier muss also ein Kompromiss zwischen physikalischer Genauigkeit und erträglichem Rechenaufwand gefunden werden.

Eine Realisierung dieses Kompromisses stellt das in KAMM2 eingesetzte Wolkenchema dar [1, 2]. Es umfasst 5 Partikelarten: kleine Wolkentropfen, Regentropfen, Wolkeneis in Form von kleinen Eiskristallen (z.B. hexagonale Plättchen, wie sie in hohen Atmosphärenschichten auftreten), Schnee und Graupel. Was die Eispartikel angeht, ist die Berücksichtigung von nur 3 Arten eine relativ grobe Vereinfachung: Die in der Meteorologie verwendete Klassifikation von Magono und Lee [3] kennt ca. 80 verschiedene Eisparkelarten.

Die Größenverteilung jeder Partikelart wird lediglich durch die ersten beiden Momente der Größenverteilungsfunktion (2-Momenten-Verfahren), die Anzahl- und die Massendichten, charakterisiert. Zur Prognose der zeitlichen und räumlichen Entwicklung der Wolken- und Niederschlagspartikel werden die zugehörigen Bilanzgleichungen numerisch gelöst, wobei nicht weniger als 34 physikalische Prozesse berücksichtigt werden.

Abb. 1 zeigt schematisch die zahlreichen Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Partikelarten. In konvektiven Mischwolken mit Temperaturen  $T < 0^\circ\text{C}$ , die aus einer Mischung von unterkühlten Tropfen und Eisparkeln bestehen, ist die wichtigste Partikelart Graupel. Graupelkörner entstehen prinzipiell durch zwei unterschiedliche Prozesswege: Zum einen bilden sich durch Nukleation und Kondensation Wassertropfen, die dann zu Regentropfen anwachsen können (Autokonversion, Akkreszenz). Die bei tiefen Temperaturen gefrierenden Regentropfen bereifen und wandeln sich zu Graupel um. Zum anderen können bei tiefen Temperaturen aber auch durch Nukleation und Deposition direkt kleine Wolkeneisparkel entstehen, die dann entweder durch Einsammeln von Wolkentropfen bereifen und Graupel bilden oder aber zunächst zu Schneeflocken aggregieren, die dann ebenfalls be-

Abb. 1 zeigt schematisch die zahlreichen Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Partikelarten. In konvektiven Mischwolken mit Temperaturen  $T < 0^\circ\text{C}$ , die aus einer Mischung von unterkühlten Tropfen und Eisparkeln bestehen, ist die wichtigste Partikelart Graupel. Graupelkörner entstehen prinzipiell durch zwei unterschiedliche Prozesswege: Zum einen bilden sich durch Nukleation und Kondensation Wassertropfen, die dann zu Regentropfen anwachsen können (Autokonversion, Akkreszenz). Die bei tiefen Temperaturen gefrierenden Regentropfen bereifen und wandeln sich zu Graupel um. Zum anderen können bei tiefen Temperaturen aber auch durch Nukleation und Deposition direkt kleine Wolkeneisparkel entstehen, die dann entweder durch Einsammeln von Wolkentropfen bereifen und Graupel bilden oder aber zunächst zu Schneeflocken aggregieren, die dann ebenfalls be-

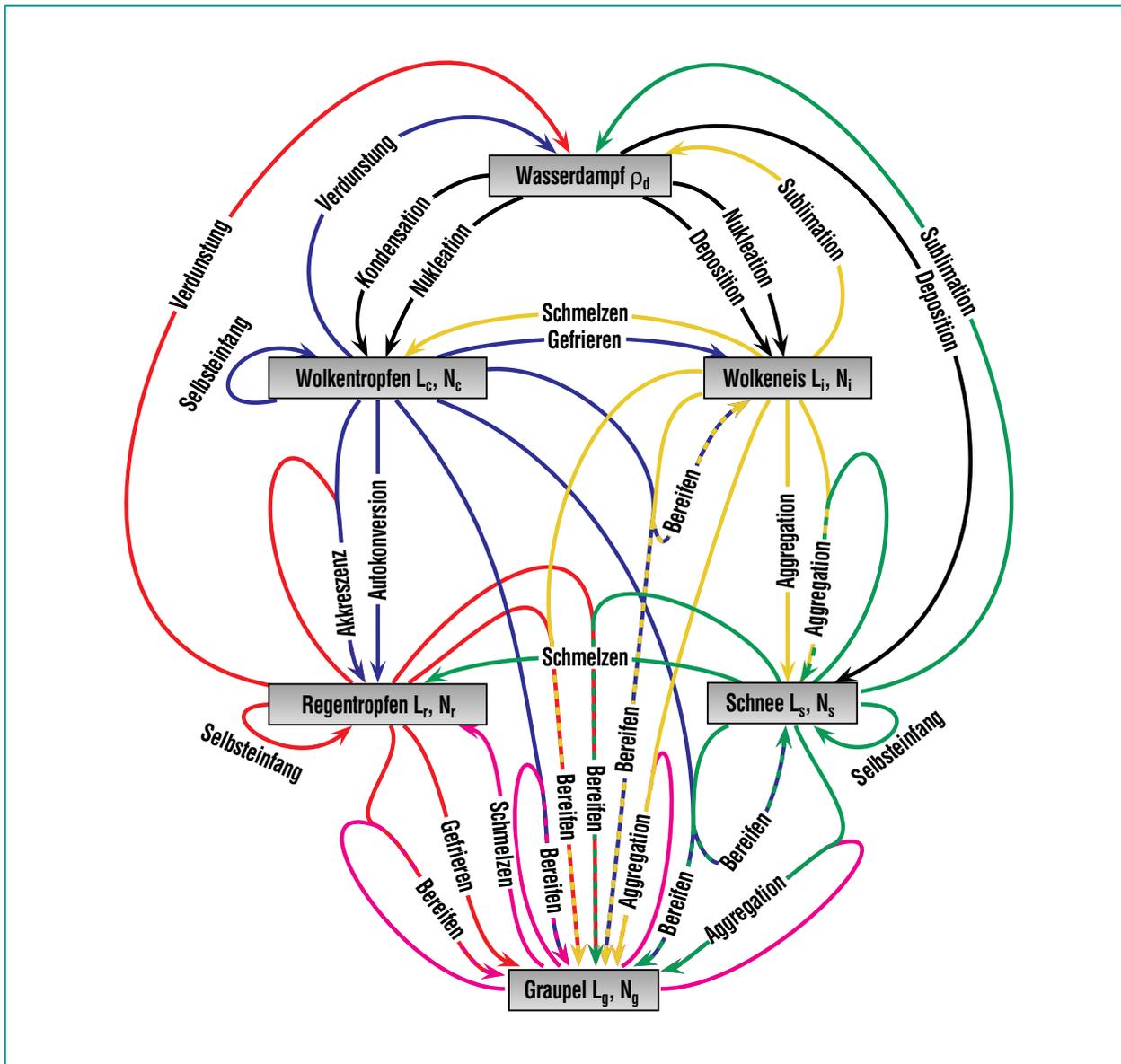


Abb. 1: Schematische Darstellung der wolkenmikrophysikalischen Wechselwirkungen bei Berücksichtigung der Partikelklassen Wolken- und Regentropfen, Wolkeneis, Schnee und Graupel. Auto-konversion, Akkreszenz und Selbsteinfang sind spezielle Koagulations-/Aggregationsprozesse.

reifen. Welcher der beiden Prozesswege – Wolkentropfen → Regentropfen → Graupel oder Wolkeneis → (Schneeflocken) → Graupel – in der Natur dominiert, ist bislang nicht geklärt.

Außer den wolkenmikrophysikalischen Prozessen bestimmen

auch die Strömungs- und Thermodynamik der Atmosphäre das Einsetzen und die Entwicklung von Niederschlag. Hierbei ist eine wichtige Größe für die Instabilität der Atmosphäre gegen vertikale Umlagerungen die so genannte konvektiv verfügbare potentielle Energie (engl: convective avail-

ble potential energy = CAPE). Schwere Gewitter treten dann auf, wenn die CAPE Werte über ca. 1000 J/kg erreicht. Innerhalb der Wolken wird die CAPE in kinetische Energie umgewandelt und es entstehen Aufwinde mit Windgeschwindigkeiten von bis zu 40 m/s.

## Simulation eines Einzelgewitters

Gewitter, wie sie bei ruhigem, feucht-warmem Sommerwetter beobachtbar sind, durchlaufen ty-

pischerweise drei Entwicklungsstadien: In der Entstehungsphase bildet sich ein großer Gewitterturm, der sich bis in 10-12 km Höhe erstreckt und in dem das schnelle Wachstum großer Parti-

kel beginnt, die während der Reife- phase als Hagel, Graupel oder Regen den Boden erreichen. Danach löst sich das Gewitter rasch auf (Dissipationsphase). Dieser Lebenszyklus dauert für ein typisches Sommergewitter 45 bis 90 Minuten.

Mit dem Atmosphärenmodell KAMM2 kann dieser Entwicklungszyklus berechnet werden. Dazu wird eine feucht-warme, potentiell instabile Atmosphäre betrachtet ( $CAPE > 1200 \text{ J/kg}$ ), in der eine am Boden vorgegebene Temperaturstörung Konvektion auslöst. Der Zustand einer so entstehenden Gewitterwolke nach einer Simulationszeit von 18 min bzw. 36 min ist in Abb. 2 dargestellt. Die Vertikalschnitte zeigen die Massendichten der verschiedenen Hydrometeorarten sowie die Niederschlagsrate am Boden. Nach 18 min hat sich eine Cumuluswolke ausgebildet, deren Wolkenobergrenze ca. 8 km Höhe erreicht. Sie enthält Wolkentropfen (blau) und Regentropfen (rot), die durch Koagulation entstanden sind, sowie im oberen Teil Graupel (magenta), der aus gefrorenen Regentropfen entsteht. Nach 36 Minuten ist ein voll ausgebildeter Cumulonimbus entstanden, der bis in etwa 10 km Höhe reicht. Man erkennt im obersten Teil deutlich den aus Wolkeneis (gelb) bestehenden Amboss, während die dominante Hydrometeorart im Kernbereich der Graupel ist, der sich sowohl durch Gefrieren von Regentropfen als auch durch Bereifen von Wolkeneis bildet. Unterhalb von 4 km Höhe schmelzen die Graupelpartikel. Der Niederschlag am Boden besteht in erster Linie aus Regen – jedoch erreicht

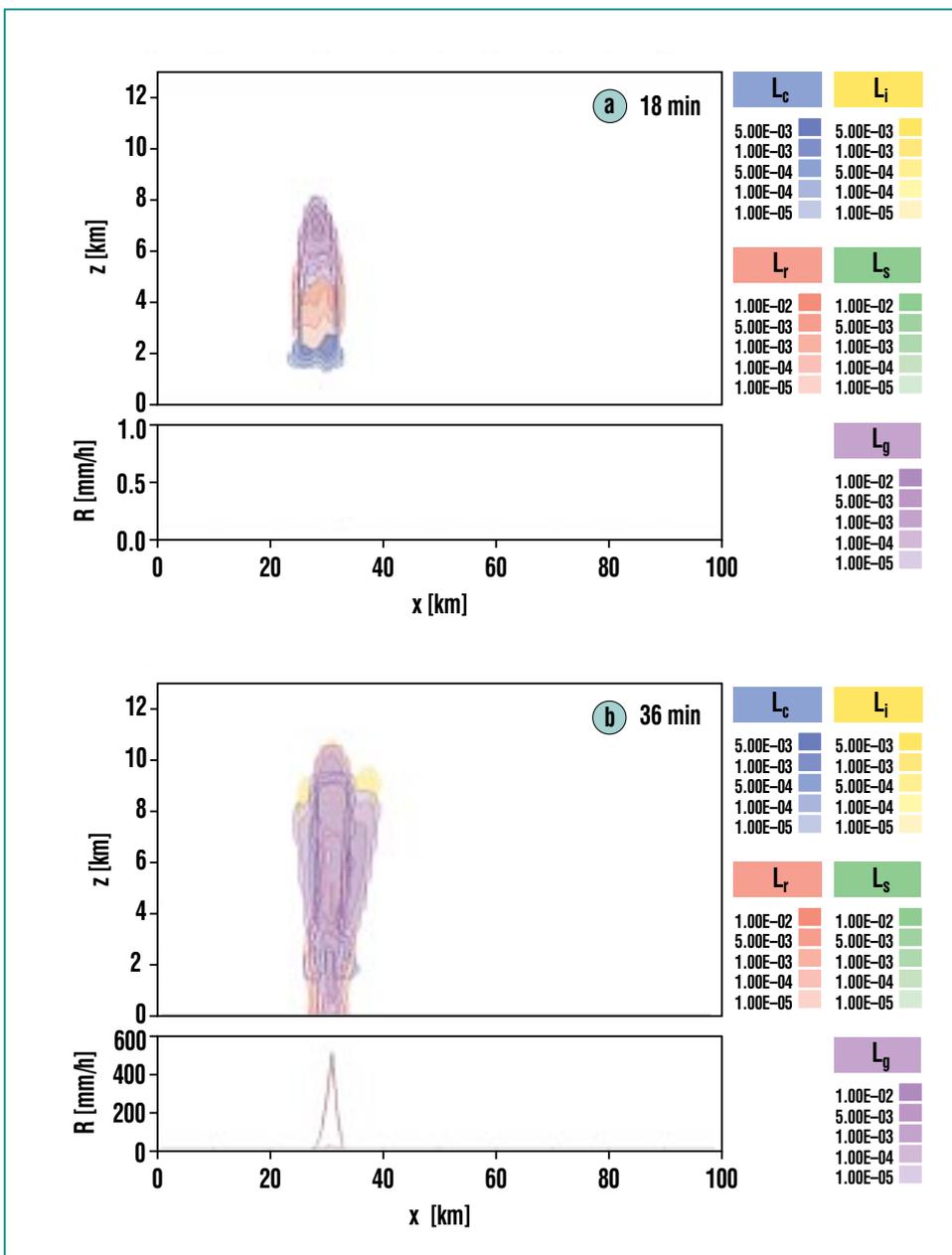


Abb. 2: Massendichten  $L$  der Hydrometeore in  $\text{kg/m}^3$  (Vertikalschnitt) und Niederschlagsrate  $R$  am Boden in  $\text{mm/h}$  nach 18 Minuten bzw. 36 Minuten ( $L_c = \text{blau} = \text{Wolkentropfen}$ ,  $L_r = \text{rot} = \text{Regentropfen}$ ,  $L_i = \text{gelb} = \text{Wolkeneis}$ ,  $L_s = \text{grün} = \text{Schnee}$ ,  $L_g = \text{magenta} = \text{Graupel}$ ).

auch ein Teil des Graupels, der hier als Hagel zu interpretieren ist, den Erdboden. Die Niederschlagsrate dieses Schauers beträgt bis zu 500 mm/h; derart hohe Niederschlagsraten treten allerdings nur für sehr kurze Zeit und in einem eng begrenzten Gebiet auf.

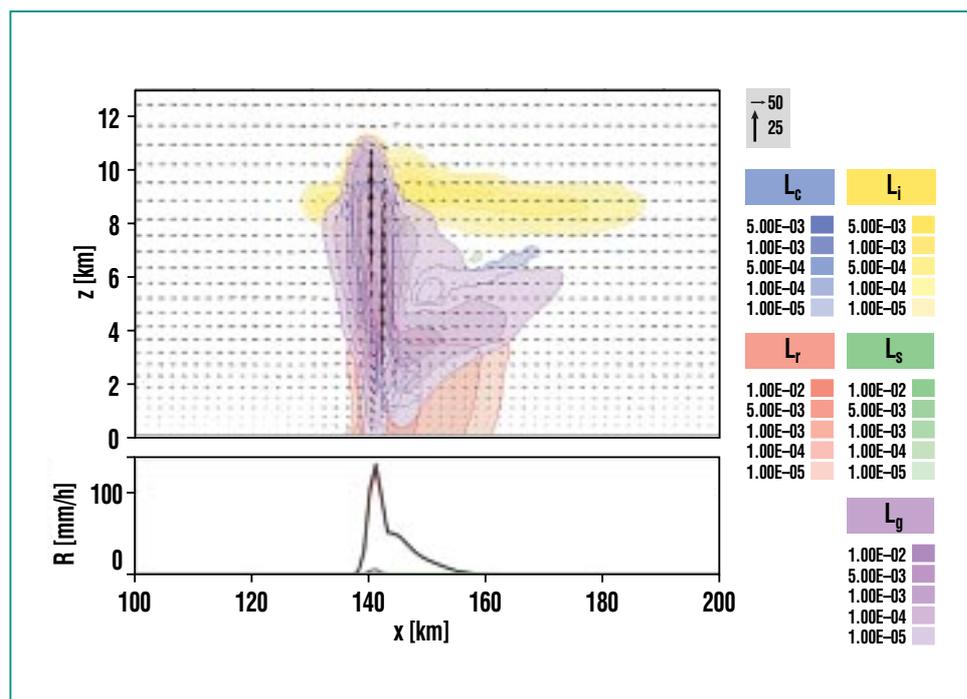
### Der Einfluss der Windgeschwindigkeit auf die Entwicklung von Gewittern

Bei Windstille oder niedrigen Windgeschwindigkeiten läuft die Entwicklung von Gewitterzellen wie oben beschrieben ab. Treten in der mittleren und oberen Troposphäre hohe Windgeschwindigkeiten von über 20 m/s auf, so können demgegenüber Gewitter entstehen, die sehr viel langlebiger sind und als Superzellengewitter bezeichnet werden. Erfahrungsgemäß können intensive Superzellengewitter lokal zu katastrophalen Schäden durch extrem hohe Regenraten und Niederschlagsmengen sowie durch bodennahe Windböen führen. Die Entwicklung von Superzellen unter derartigen Starkwindbedingungen kann ebenfalls mit KAMM2 berechnet werden. Abb. 3 zeigt einen Vertikalschnitt durch eine voll ausgebildete Superzelle bei einer vorgegebenen CAPE von 2300 J/kg und einer Windscherung von 20 m/s zwischen Boden und 5 km Höhe. Die zusätzlich eingezeichneten Windvektoren lassen ein starkes Aufwindgebiet in der Wolke deutlich erkennen. In diesem Bereich der Wolke werden große Mengen von Wasserdampf und Hydrometeoriten nach oben transportiert. Der

maximale Aufwind beträgt etwa 20 m/s. Charakteristisch für Superzellen ist der weit ausgedehnte Amboss, der aus kleinen Eiskristallen besteht und die Obergrenze der Wolken darstellt; er hat sich in diesem Fall mit dem Wind über 60 km ausgebreitet. Der aus dieser Wolke ausfallende Niederschlag besteht hauptsächlich aus Graupel. Unterhalb des konvektiven Aufwindgebiets treten die höchsten Niederschlagsraten von über 100 mm/h auf.

Als Ursache für die dynamische Stabilität und damit die Langlebigkeit der Superzellengewitter wirken nach heutigem Wissenstand zwei Mechanismen zusammen: Zum einen führt die Überlagerung des Horizontalwindes, der mit der Höhe zunimmt, mit dem Vertikal-

windfeld, das durch die aufsteigende Luft entsteht, zu einer Rotationsströmung im Aufwindbereich. Dadurch entsteht eine helikale, d.h. schraubenartige Strömung, die eine hohe Stabilität besitzt. Zum anderen bewirkt die Windscherung, dass der Aufwindbereich des Gewitters nicht exakt senkrecht steht, sondern geneigt ist. Deswegen fällt der Niederschlag nicht direkt in den Aufwindbereich, so dass sich die Kaltluft, die durch Verdunstung von Regentropfen entsteht, nur auf einer Seite des Aufwindes bildet und weiterhin feucht-warme Luft in den Aufwindbereich nachfließen kann – das Gewitter wird also nicht, wie im Fall einer windschwachen Atmosphäre, von der Energie- und Feuchteversorgung abgeschnitten.



**Abb. 3: Massendichten  $L$  der Hydrometeore in  $\text{kg/m}^3$  (Vertikalschnitt) und Niederschlagsrate  $R$  am Boden in  $\text{mm/h}$  ( $L_c$  = blau = Wolkentropfen,  $L_r$  = rot = Regentropfen,  $L_i$  = gelb = Wolkeneis,  $L_s$  = grün = Schnee,  $L_g$  = magenta = Graupel). Die Pfeile stellen den Windvektor in  $\text{m/s}$  dar.**

## Der Einfluss von Aerosolpartikeln auf Gewitter

Wie bereits erwähnt, entstehen Wolkentropfen in der Atmosphäre meist durch heterogene Nuklea-

tion, d.h. kleinste Aerosolpartikel (Kondensationskerne) wachsen bei wasserdampf-übersättigter Luft zu kleinen Tropfen. Die Anzahl der entstehenden Wolkentropfen hängt deshalb empfindlich von der Anzahl und Zusammen-

setzung der Kondensationskerne ab. So findet man in maritimen Luftmassen, die nur wenige, aber große NaCl-Aerosolpartikel enthalten, niedrige Anzahldichten von relativ großen Wolkentropfen (ca.  $100/\text{cm}^3$ ), während in kontinentalen Luftmassen, in denen die Anzahl mineralischer und sulfathaltiger Aerosolpartikel hoch ist, die Konzentration von Wolkentropfen ebenfalls hoch ist (ca.  $500/\text{cm}^3$ ), die Tröpfchen aber relativ klein sind. Das komplexe Zusammenspiel zwischen atmosphärischem Aerosol und Wolkenentwicklung ist bislang nicht hinreichend genau verstanden (siehe Artikel von Möhler und Beheng in diesem Heft) und ist insbesondere in Klimamodellen nur unzureichend berücksichtigt. Mit dem Atmosphärenmodell KAMM2 konnte nun erstmals der Einfluss der Aerosolpartikel auf die Gewitterentwicklung direkt simuliert werden.

Als Beispiel für den Einfluss der Aerosolpartikel auf die Entwicklung konvektiver Wolken soll ein so genanntes Multizellensystem betrachtet werden. Multizellensysteme sind Gewitterkomplexe, die durch die mit dem Niederschlag einhergehenden bodennahen Sturmböen immer neue konvektive Einzelzellen initiieren. Abb. 4 zeigt die Ergebnisse zweier Simulationen von Multizellensystemen, wie sie sich bei einer CAPE von  $2300 \text{ J/kg}$  ausbilden. Dargestellt sind Seiten- und Aufrisse der Maximalwerte der so genannten Radarreflektivität Z, also des Signals, das von einem Radar, das die Wolke abtastet, empfangen würde. Die Signalstärke (in dBZ) ist eine Maß für Massen-

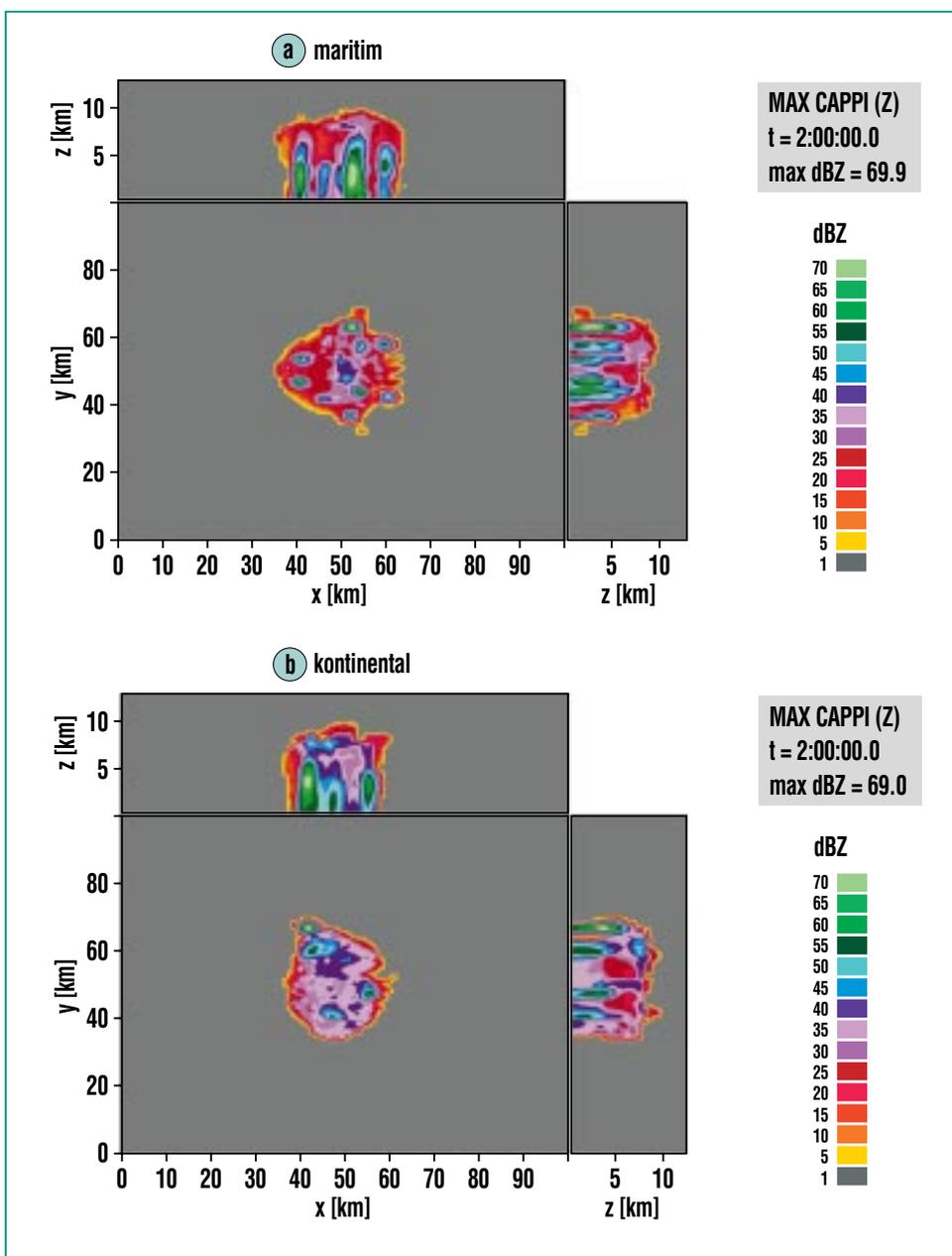


Abb. 4: Radarreflektivität in dBZ, berechnet aus Modelldaten und dargestellt als Seiten- und Aufriss der Maximalwerte für maritime (a) und kontinentale (b) Bedingungen nach 120 Minuten Simulationszeit.

dichte und Größe der Hydrometeore.

Der einzige Unterschied zwischen den beiden Simulationen besteht in den Annahmen über die Art und Anzahl der Aerosolpartikel: Abb. 4a unterstellt maritime, Abb. 4b kontinentale Bedingungen. Unter maritimen Bedingungen bilden sich viele intensive konvektive Zellen (Radarreflektivität > 40 dBZ). Im kontinentalen Fall entstehen hingegen deutlich weniger und schwächere Zellen, was dazu führt, dass insgesamt nur ca. halb soviel Niederschlag den Boden erreicht. Die Intensität eines Multizellensystems hängt demnach empfindlich von der Anzahl und den Eigenschaften der atmosphärischen Aerosolpartikeln ab.

### Zusammenfassung und Ausblick

Die Niederschlagsbildung – insbesondere in konvektiven Wolken – ist ein hochkomplexer und auch heute noch nicht in allen Details verstandener Prozess. Da direkte Messungen in solchen Wolken gewöhnlich sehr schwierig durchzuführen sind, ist die numerische Simulation auf der Basis realitätsnaher physikalischer Modelle ein probates Mittel, um die grundlegenden Mechanismen, ihre Wechselwirkung und Sensitivität zu untersuchen. Es zeigt sich, dass in Abhängigkeit von den atmosphärischen Bedingungen wie z.B. der vertikalen Windscherung und der Aerosoleigenschaften die Wolkenentwicklung und -dynamik

unterschiedlich verläuft. Die neu entwickelten Methoden werden in den nächsten Jahren in Wettervorhersage- und Klimamodelle einfließen.

### Literatur

[1] A. Seifert, Dissertation, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe / Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, 2002

[2] A. Seifert, K.D. Beheng, Atmos. Res., 59-60, 265-281, 2001

[3] C. Magono, C. Lee, J. Fac. Sci., Ser. 7, 2, 312-335, 1966

# Aerosole und Wolken

O. Möhler, K. D. Beheng, IMK

## Einleitung

Erfahrene Wetterbeobachter erkennen an Hand von Wolkenformen Wetteränderungen, Meteorologen entwickeln komplexe Computermodelle zur Vorhersage des Niederschlags und Klimaforscher untersuchen den Einfluss kleinster Veränderungen der Wolkenbedeckung auf das regionale und globale Klima. Wolken mit unterschiedlichsten Erscheinungsformen sind ein wesentlicher Bestandteil des Wettergeschehens, des Wasserkreislaufs und des Klimas. Ihr Auftreten ist offenbar eng mit der atmosphärischen Dynamik, insbesondere den vertikalen Luftbewegungen, gekoppelt. Weitaus verborgener vollzieht sich der nicht minder wichtige Einfluss von mikroskopisch kleinen Partikeln, sogenannten Aerosolpartikeln, auf die Bildung und die Eigenschaften von Wolken. Ohne die mit bloßem Auge nicht einzeln erkennbaren Aerosolpartikel aus natürlichen und anthropogenen Quellen gäbe es keine Wolken in der Atmosphäre. Um die Wirkungen von Wolken quantitativ zu beschreiben und mögliche künftige Veränderungen mit Hilfe von Modellen vorherzusagen, ist es wichtig, die Prozesse der Wolkenentstehung und Niederschlagsbildung genau zu verstehen. Hierzu trägt das IMK mit mehreren experimentellen und theoretischen Arbeiten bei, die in dem vorliegenden und weiteren Artikeln in diesem Heft beschrieben werden.

## Wie entstehen Wolken?

Wolken entstehen in der Atmosphäre immer dann, wenn sich feuchte Luftmassen abkühlen und

der Partialdruck des Wasserdampfs den Sättigungspartialdruck erreicht oder übersteigt [1, 2]. Der Partialdruck ist ein Maß für die Feuchtigkeit der Luft, die der Atmosphäre durch Verdunstung am Erdboden und über dem Meer zugeführt wird. Das in Prozent umgerechnete Verhältnis zwischen dem tatsächlichen Partialdruck und dem Sättigungspartialdruck ist die relative Luftfeuchte. Der Sättigungswert hängt sehr stark von der Temperatur ab (Clausius-Clapeyron-Gleichung). So muss feuchte Luft mit einer Temperatur von 20°C und einer relativen Feuchte von 50%, in der also ein Wasserdampfpartialdruck von 11,7 hPa herrscht, um ca. 9°C abgekühlt werden, bis der Wasserdampfdruck seinen Sättigungswert annimmt. Sobald die Temperatur dann unter 10,7 °C fällt, kondensiert der überschüssige Wasserdampf an vorhandenen löslichen und unlöslichen Aerosolpartikeln (sogenannten Kondensationskernen) und es entstehen Wolken- oder Nebeltröpfchen. Erfahrungsgemäss entstehen bei demselben Wasserdampfangebot relativ viele, aber kleine Tröpfchen, wenn viele Kondensationskerne vorhanden sind wie z. B. über den Kontinenten. Im Gegensatz dazu bilden sich über den Meeren relativ wenige, aber große Tröpfchen. Bei gleicher Menge an kondensierbarem Wasserdampf erscheinen Wolken mit vielen kleinen Tröpfchen im Mittel heller als solche mit weniger großen Tröpfchen, reflektieren dadurch mehr Sonnenlicht (Albedo-Effekt) und haben einen stärkeren kühlenden Einfluss auf das Klima. Die Konzentration der Wolkenröpfchen ist auch eine wichtige Größe für die

komplexen Mechanismen, die zur Bildung von Niederschlag führen [3].

Da die Lufttemperatur in der Regel mit der Höhe stark abnimmt, bilden sich in größeren Höhen Wolken bei Temperaturen unter dem Gefrierpunkt. Eine Besonderheit ist dabei, dass Wolkenröpfchen, die aus reinem Wasser bestehen, bis zu einer Temperatur von etwa -35°C unterkühlt flüssig bleiben und erst bei tieferen Temperaturen spontan gefrieren. Diese starke Unterkühlung entsteht durch Energiebarrieren bei der Bildung der festen Eisoberfläche und bei der Diffusion von Wassermolekülen in die geordnete Eisstruktur. Enthalten die Tröpfchen gelöste Stoffe, z.B. Schwefelsäure, nimmt die Gefrieretemperatur gleich großer Tröpfchen weiter ab. Außerdem nimmt mit abnehmender Temperatur die Differenz zwischen dem Sättigungspartialdruck von Wasserdampf über unterkühltem Wasser und über Eis zunächst zu. Es gibt also einen Bereich, in dem die Atmosphäre bezüglich Eis übersättigt und bezüglich flüssigem Wasser untersättigt ist. Abb. 1 zeigt schematisch diesen Bereich der Eisübersättigung, in dem kleinste Eisteilchen durch Aktivierung von Aerosolpartikeln, so genannten Eiskeimen, entstehen können.

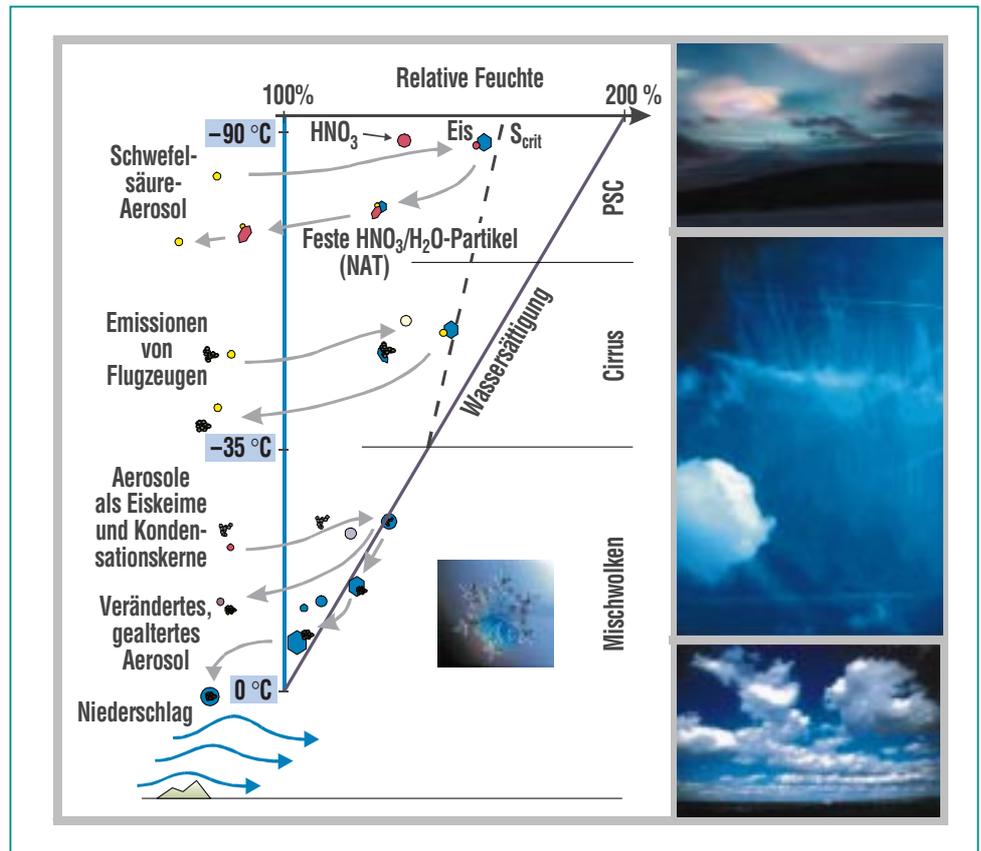
Die untere und mittlere Troposphäre mit Temperaturen zwischen 0°C und -35°C ist der Bereich der Mischwolken, in denen Tröpfchen und Eispartikel gemeinsam existieren können. Für die Entstehung von kleinsten Eispartikeln werden verschiedene Mechanismen verantwortlich

gemacht: der Kontakt von Eiskeimen mit unterkühlten Tröpfchen, direkte Deposition von Wasserdampf auf Aerosolpartikeln und die Aktivierung durch Partikel, die in unterkühlten Tröpfchen inkorporiert sind. Die genauen Entstehungsmechanismen für kleinste Eispartikel sind weitgehend ungeklärt. Die Eispartikel wachsen durch Deposition auf Kosten der unterkühlten Tröpfchen (Bergeron-Findeisen-Prozess) oder durch Bereifen [3].

Die obere Troposphäre mit Temperaturen unterhalb von  $-35^{\circ}\text{C}$  ist der Bereich der reinen Eiswolken, der sogenannten Cirren. Die in Abb. 1 eingezeichnete Linie der Flüssigwassersättigung ist hier durch die Extrapolation der Eigenschaften unendlich verdünnter Lösungen definiert. Eispartikel in Cirren bilden sich beispielsweise durch Gefrieren von Schwefelsäuretröpfchen bei hoher Eisübersättigung (gestrichelte Linie in Abb. 1) oder direkt auf festen Aerosolpartikeln (Ruß aus Flugzeugtriebwerken oder mineralische Partikel). Die Bildungsmechanismen von Wolken in der polaren Stratosphäre, der kältesten Region der Atmosphäre, werden in einem eigenen Artikel in diesem Heft beschrieben [4].

### Wolkenexperimente im Labor

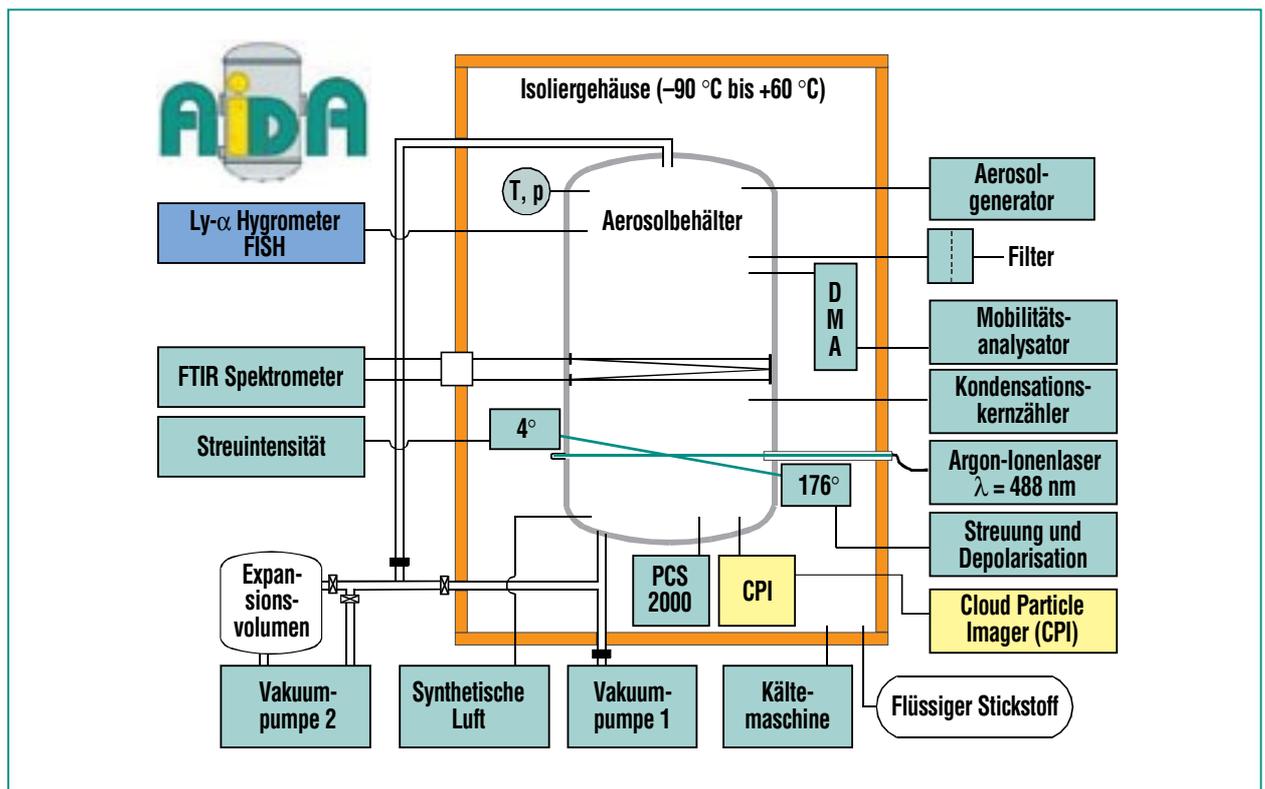
Mit der Aerosol- und Wolkenkammer AIDA (Aerosol-Interaktionen und Dynamik in der Atmosphäre) betreibt das IMK-AAF eine Versuchsanlage, in der Abkühlraten und Eisübersättigungen von Wolken simuliert werden, so dass ins-



**Abb. 1: Bildungsmechanismen und Erscheinungsformen der Wolken hängen sehr stark von der Temperatur und damit von der Höhe ab. Das Schema zeigt einen Höhengchnitt durch die Atmosphäre, in der die Temperatur mit der Höhe abnimmt. Auslöser für die Wolkenbildung sind in der Regel aufsteigende Luftmassen, die sich auf Grund des mit der Höhe abnehmenden Luftdrucks ausdehnen und dabei stark abkühlen. Da kalte Luft weniger Wasserdampf speichern kann, nimmt die relative Luftfeuchtigkeit zu. Entscheidend für die Wolken- und Niederschlagsbildung sind dabei die Werte der Eissättigung (vertikale Linie) und der Wassersättigung, deren Differenz mit abnehmender Temperatur zunimmt. Bis zu einer Temperatur von etwa  $-35^{\circ}\text{C}$  entstehen Mischwolken aus unterkühlten Wassertröpfchen und Eisparkeln, bei tieferen Temperaturen reine Eiswolken, sogenannte Cirren.**

besondere die Entstehung von Eisparkeln und deren physikalische Eigenschaften untersucht werden können. Der Versuchsbehälter (Volumen  $84\text{ m}^3$ ) befindet sich in einem Isoliergehäuse (Abb. 2), das wie ein riesiger Kühlschrank durch Verdampfen von flüssigem Stickstoff auf Temperaturen bis  $-90^{\circ}\text{C}$  homogen gekühlt

werden kann. Die Innenwände des Versuchsbehälters werden mit Eis beschichtet, um bei einer nahezu homogenen Temperaturverteilung eine relative Eisfeuchte von nahezu 100% zu erreichen. Übersättigte Bedingungen entstehen, ähnlich wie in Wolken, durch Abkühlung mittels adiabatischer Expansion. In Wolken, die in der



**Abb. 2: Schema und Instrumentierung der AIDA-Versuchsanlage für die Untersuchung von Aerosol- und Wolkenprozessen.**

Atmosphäre beispielsweise in aufsteigenden Luftmassen gebildet werden, ist diese Expansion eine Folge der Druckabnahme mit der Höhe. Im Versuchsbehälter werden ähnliche Druckabnahmen durch starkes Pumpen erreicht. Das Behältervolumen wird dabei von einem Ventilator homogen durchmischt. Zu Beginn der Expansionsphasen werden Abkühlraten bis zu  $-4\text{ °C/min}$  erreicht. Die Temperatur der 2 cm dicken Aluminiumwände bleibt dabei nahezu unverändert. Durch zunehmenden Wärmefluss von der Behälterwand in das gleichmäßig expandierende und abkühlende Volumen nähert sich die Abkühlrate nach etwa 15 Minuten dem Wert null, d.h., die Temperaturdifferenz zwischen Wand und Gas

erreicht einen nahezu konstanten Wert. Nach Beendigung des Pumpens nähert sich die Gastemperatur innerhalb von etwa 20 min wieder der Wandtemperatur.

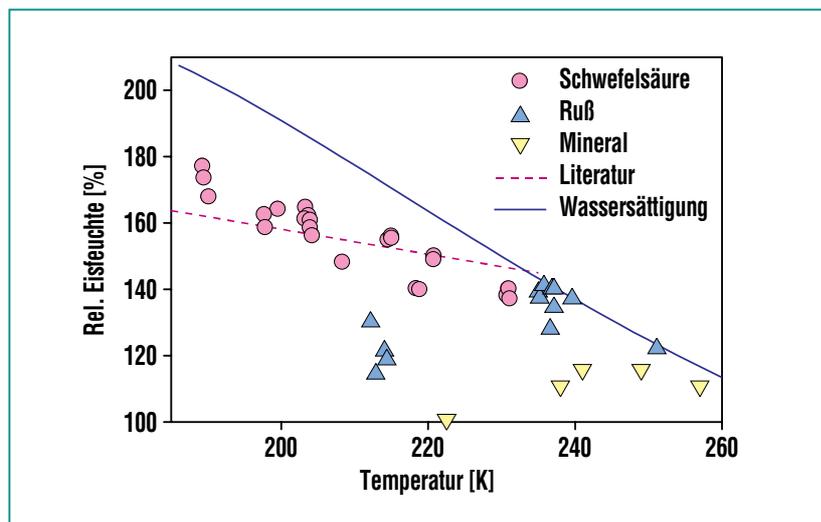
Die starke Temperaturabnahme lässt die relative Eisfeuchte mit einer Rate von etwa  $50\text{ %/min}$  ansteigen. Die Wasserkonzentration wird dabei mit hoher Empfindlichkeit und zeitlicher Auflösung mit dem Fluoreszenz-Hygrometer FISH des Forschungszentrums Jülich gemessen. Sobald eine kritische Eisübersättigung erreicht ist, bilden sich an der Oberfläche von vorher zugegebenen festen Aerosolpartikeln kleine Eiskristalle, die innerhalb von wenigen Sekunden zu optisch detektierbaren Eispartikeln anwachsen. Eine für

den empfindlichen Nachweis der Eispartikel neu entwickelte Messapparatur besteht aus einem Argon-Ionenlaser, dessen polarisiertes Licht quer durch die Aerosolkammer in eine Strahlfalle geleitet wird. Zwei Detektoren messen unter den Streuwinkeln  $4^\circ$  und  $176^\circ$  die Intensität von Laserlicht, das im Zentrum des Aerosolbehälters an Partikeln gestreut wird. Bei  $176^\circ$  wird zudem die Depolarisation, also die anteilige Veränderung der ursprünglichen Polarisationsrichtung des Streulichts gemessen, die eindeutig die Entstehung von nicht-sphärischen Eiskristallen zeigt.

Abb. 3 zeigt die für verschiedene Aerosoltypen gemessenen Gefrierfeuchten als Funktion der

Temperatur. Homogenes Gefrieren von weniger als einen Mikrometer großen Schwefelsäuretröpfchen wurde etwa entlang einer Linie gefunden, die auch für Lösungströpfchen anderer Zusammensetzung erwartet wird [5, 6]. Ähnlich große Rußpartikel und mineralische Partikel wirken bereits bei geringerer relativer Feuchte als Eiskeime. Bei Temperaturen oberhalb von  $-35^{\circ}\text{C}$  sind reine Rußpartikel erst bei Überschreiten der Wassersättigung als Eiskeime aktiv, wohingegen mineralische Partikel bereits deutlich unterhalb der Wassersättigung Eis bilden.

In der Atmosphäre findet man häufig keine reinen Partikel sondern Mischungen aus Ruß, Mineralstaub, Schwefelsäure, Ammoniumsulfat oder organischem Material. Deshalb wird in weiteren Experimenten die Eiskeimaktivität von Mischpartikeln und beschichteten Partikeln untersucht. Für die Messung optischer Eigenschaften



**Abb. 3: Kritische relative Feuchte für die spontane Bildung von Eis in flüssigen Schwefelsäurepartikeln (homogene Eiskernung) im Vergleich mit Literaturwerten [6] (gestrichelte Linie) sowie für die heterogene Eiskernung an festen Rußpartikeln und mineralischen Partikeln.**

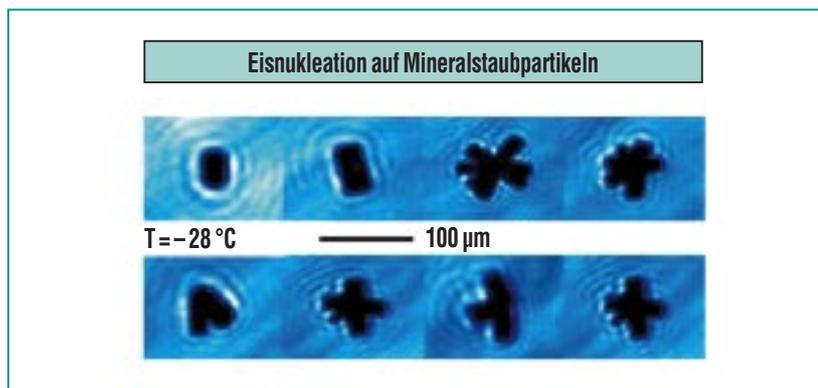
wurden derartige Partikel bereits im AIDA-Labor hergestellt [7].

Weitere Instrumente messen beispielsweise Anzahl, Größe und optische Eigenschaften von Aerosolpartikeln und Eiskristallen oder die Form von größeren Eiskristallen.

Die Wachstumsrate der Eiskristalle hängt stark vom Wasserdampfpartialdruck und damit von der Temperatur ab. Die maximale Größe ist bei gegebener Konzentration der Eiskristalle durch den verfügbaren Wasserdampf begrenzt. Abb. 4 zeigt

Messgröße	Gerät (Hersteller bzw. Herkunft)
Anzahlkonzentration von Aerosolpartikeln	Kondensationskernzähler (TSI)
Größenverteilung von Aerosolpartikeln	Mobilitätsanalytoren (TSI, z.T. modifiziert für die Anwendung bei reduziertem Druck und tiefen Temperaturen)
Anzahl und Größe von Eiskristallen	Optischer Partikelzähler PCS2000 (Palas)
Anzahl und Form von Eiskristallen	Cloud Particle Imager CPI des UMIST, Manchester (SPECinc, USA)
Streuung und Depolarisation von Aerosol- und Eiskristallen	Eigener Aufbau mit Argon-Ionenlaser bei 488 nm und in situ Detektionsoptiken unter $4^{\circ}$ und $176^{\circ}$ Streuwinkel.
Aerosolextinktionsspektren im Infrarotbereich von 1.7 bis 13 $\mu\text{m}$	FTIR Spektrometer IFS66v (Bruker) mit Whitezelle für maximal 254 m Lichtweg innerhalb des Aerosolbehälters
Wasserkonzentration	Frostpunktspiegel (MBW); Ly- $\alpha$ -Hygrometer FISH des ICG-1, Forschungszentrum Jülich

**Tab. 1: Messinstrumentierung der AIDA-Versuchsanlage für Eiskernungsexperimente.**



**Abb. 4: Bilder von Eiskristallen, die bei einer Temperatur von  $-28^{\circ}\text{C}$  auf mineralischen Partikeln entstanden sind (die Bilder wurden freundlicherweise von UMIST in Manchester, England, zur Verfügung gestellt).**

Schattenbilder von Eispartikeln, die bei einer Temperatur von  $-28^{\circ}\text{C}$  und einer Eisübersättigung von 20 % auf mineralischen Partikeln nukleiert sind und im Aerosolbehälter bei eisübersättigten Bedingungen zu Größen von 50 bis  $100\ \mu\text{m}$  anwuchsen. Diese Messungen wurden in Kooperation mit der Universität Manchester

(UMIST) mit dem CPI-Gerät (von „Cloud Particle Imager“) durchgeführt, das normalerweise auf Forschungsflugzeugen eingesetzt wird. Die einzelnen Kristalle zeigen die für den Temperaturbereich von  $-20^{\circ}\text{C}$  bis  $-30^{\circ}\text{C}$  typische Säulenstruktur mit flachen Enden. Bei noch tieferen Temperaturen treten zunehmend hexagonale

Säulen mit spitzen Enden (sogenannte „bullets“) auf, die in einigen AIDA-Experimenten ebenfalls beobachtet wurden.

Die AIDA-Ergebnisse werden direkt in die mathematische Beschreibung der Eisbildungsprozesse, wie sie in numerischen Modellen zur Niederschlagsbildung benötigt werden, einfließen. Auf diese Weise wird der anfängliche Eisgehalt von Mischwolken, von dem die nachfolgende Entwicklung von Niederschlag wesentlich abhängt, realistisch erfasst. Eine weitere Anwendung der umfangreichen AIDA-Datensätze in Verbindung mit Prozessmodellen betrifft die Frage, bei welchen Bedingungen sich optisch dünne oder optisch dicke Cirren bilden, die je nach Temperatur und Beschaffenheit der Erdoberfläche einen erwärmenden oder kühlenden Einfluss auf das Klima haben.

## Literatur

- [1] K. D. Beheng, U. Wacker, *Promet – Meteorologische Fortbildung, Heft 1/2-93, Selbstverlag des Deutschen Wetterdienstes, 1-56, 1993.*
- [2] K. D. Beheng, U. Wacker, *Promet – Meteorologische Fortbildung, Heft 3-93, Selbstverlag des Deutschen Wetterdienstes, 65-96, 1993.*
- [3] A. Seifert, K. D. Beheng, *Nachrichten 2003 (dieses Heft).*
- [4] O. Möhler, H. Oelhaf, *Nachrichten 2003 (dieses Heft).*
- [5] O. Möhler, 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, U. Schurath, *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 211-223, 2003.
- [6] T. Koop, B. P. Luo, A. Tsias, T. Peter, *Nature*, **406**, 611-614, 2000.
- [7] K.-H. Naumann, H. Saathoff, M. Schnaiter, R. Wagner, *Nachrichten 2003 (dieses Heft).*

# Nanopartikel mit großer Wirkung – Spurensuche auf dem Weg zur stratosphärischen Ozonzerstörung

O. Möhler, H. Oelhaf, IMK

## Hintergrund

Die Ozonschicht umspannt in einer Höhe von etwa 15 bis 30 km den gesamten Erdball. Sie schützt die Biosphäre vor schädigenden UV-Strahlen, die Hautkrebs auslösen und das Pflanzenwachstum beeinträchtigen. 1985 entdeckten britische Wissenschaftler [1] das sogenannte „Ozonloch“. Dabei handelt es sich um einen vorübergehenden nahezu vollständigen Abbau der Ozonschicht über der Antarktis in den Monaten August bis Oktober, der sich in manchen Jahren bis nach Australien und Südamerika auswirkt. Über der Arktis kommt es dagegen nur in Wintern mit besonders tiefen Temperaturen zu einem periodischen Ozonabbau, der ähnlichen Mechanismen folgt wie die Entstehung des „Ozonlochs“ über der Antarktis.

Als Verursacher des Ozonlochs wurden ausschließlich vom Menschen erzeugte chemische Verbindungen, sogenannte Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe (FCKW), enttarnt, deren Herstellung daher 1986 im Montrealer Protokoll international stark eingeschränkt bzw. ganz verboten wurde. Dennoch wird der alljährliche Ozonabbau noch lange nahezu unvermindert weitergehen, weil die sehr stabilen Ozonkiller erst nach Jahrzehnten wieder aus der Atmosphäre verschwinden werden.

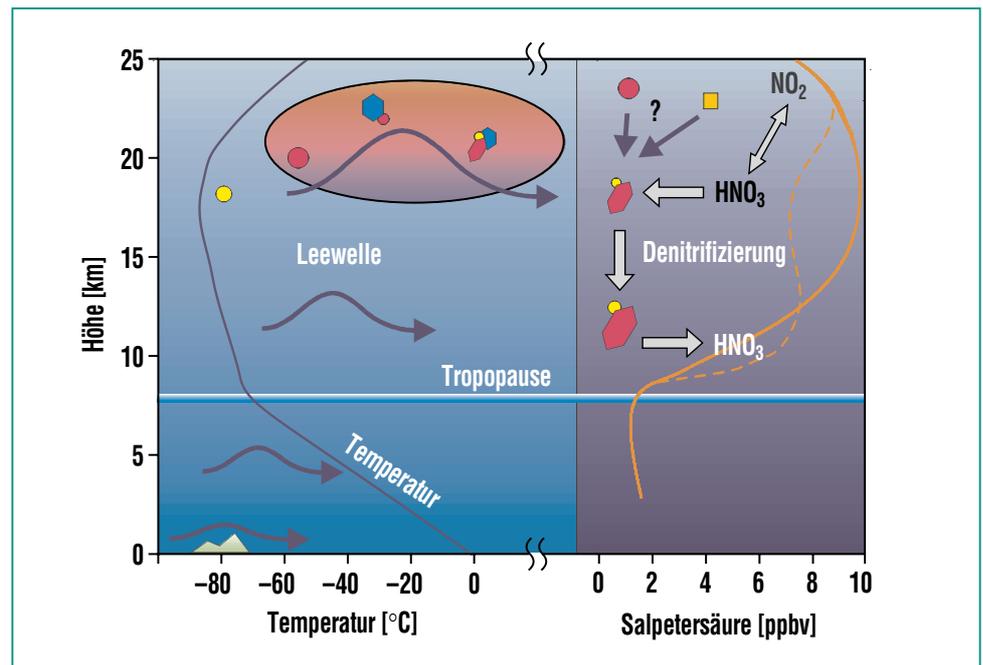
„Ozonlöcher“ entstehen nur in Ausnahmesituationen, weil die FCKWs zwar den „Ozonkiller“ Chlor freisetzen, dieses aber seine Ozon zerstörende Wirkung erst in Gegenwart von polaren stratosphärischen Wolken, sogenann-

ter PSCs (von „polar stratospheric clouds“), voll entfalten kann. Voraussetzung für die Bildung von PSCs sind extrem tiefe Temperaturen, die nur über den Polargebieten der Erde und auch dort nur während der Wintermonate vorkommen. Da die Temperaturen über den Polargebieten infolge der globalen Klimaänderung wahrscheinlich absinken, könnte sich die Erholung der Ozonschicht weiter verzögern.

## Mechanismen der Ozonzerstörung

Die Voraussetzungen für die Bildung von PSCs und damit für die chemische Ozonzerstörung entstehen im polaren Winter, wenn die stratosphärische Luft in einem nahezu geschlossenen Wirbel um

den Pol zirkuliert. Über der Antarktis kühlt dabei der gesamte Polarwirbel bis unter  $-90^{\circ}\text{C}$  ab, so dass sich ausgedehnte PSCs bilden. Die PSC-Partikel dienen als Mikroreaktoren für die chemische Umwandlung harmloser Chlor-Reservoirverbindungen ( $\text{HCl}$ ,  $\text{ClONO}_2$ ) in Chlormoleküle. Diese werden am Ende der Polarnacht vom Sonnenlicht in Chloratome gespalten, die Ozon ( $\text{O}_3$ ) zerstören und dabei Chlormonoxid ( $\text{ClO}$ ) bilden. Da aus  $\text{ClO}$  über weitere chemische Reaktionsschritte wieder Chloratome entstehen, wird in einem katalytischen Kreisprozess so lange Ozon zerstört, bis der Katalysator  $\text{ClO}$  durch Reaktion mit  $\text{NO}_2$  als Reservoirverbindung  $\text{ClONO}_2$  unschädlich gemacht wird. Dieser Erholungsprozess wird verzögert, wenn aus ir-



**Abb. 1:** In der polaren Stratosphäre über der Arktis entstehen PSC-Partikel überwiegend in Leewellen. Von festen Partikeln gebundene Salpetersäure wird durch Sedimentation entfernt, so dass später weniger  $\text{NO}_2$ -Moleküle als „Abfangjäger“ für  $\text{ClO}$  zur Verfügung stehen. Dadurch wird die Lebensdauer von  $\text{ClO}$  verlängert und die chemische Ozonzerstörung dauert länger.

gend einem Grunde zu wenig  $\text{NO}_2$  für die Reaktion mit  $\text{ClO}$  zur Verfügung steht.

Die gleichen Prozesse finden auch in der arktischen Stratosphäre statt, allerdings ist der Polarwirbel dort deutlich instabiler. Er erwärmt sich häufig durch Einmischen von Luft aus mittleren Breiten, so dass über der Arktis nur selten ausgedehnte Schichten der temperaturempfindlichen PSCs vorkommen. Häufiger bilden sich PSCs in stehenden Wellen, sogenannten Lee-Wellen, die durch Auslenkung starker Bodenwinde an Gebirgshindernissen entstehen (Abb.1). In der Aufstiegsphase einer Leewelle kühlen die Luftmassen stark ab und bilden unterhalb von  $-80^\circ\text{C}$  durch Aufnahme von Wasserdampf und  $\text{HNO}_3$  in das stets vorhandene Schwefelsäure-Aerosol PSCs aus flüssi-

gen Partikeln. Wenn die Temperatur deutlich unter  $-85^\circ\text{C}$  sinkt, wachsen in den PSC-Tröpfchen Eiskristalle heran, die als irisierende Perlmutterwolken sichtbar sind. In der Absinkphase der Leewelle erwärmt sich die Luft wieder, und die Eispartikel verdampfen. Wenn die Temperatur nicht über  $-78^\circ\text{C}$  ansteigt, können dabei feste Kristallverbindungen aus Wasser- und Salpetersäuremolekülen im Verhältnis 3:1 (Salpetersäure-Trihydrat = NAT) bzw. 2:1 (Salpetersäure-Dihydrat = NAD) entstehen, die aussedimentieren und dadurch Salpetersäure aus der betreffenden Höschicht entfernen. Dieser Prozess, der Denitrifizierung genannt wird (Abb. 1), verzögert das Ende des katalytischen Ozonabbaus, weil weniger Salpetersäure als photochemische Quelle für  $\text{NO}_2$

zur Verfügung steht und somit das  $\text{ClO}$  seine zerstörerische Wirkung länger ausüben kann. Bis heute ist jedoch nicht ganz klar, unter welchen Bedingungen welche Salpetersäurehydrate entstehen. Derartige Prozesse werden am IMK mit dem Ballonexperiment MIPAS-B und Laborexperimenten an der AIDA-Versuchsanlage (Abb. 2) untersucht.

### Das Ballonexperiment MIPAS-B

Das ballongetragene MIPAS-B Instrument (Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung – Ballonversion) ist ein gekühltes IR-Fourierspektrometer (Abb. 2), das am IMK für die Fernerkundung einer Vielzahl ozon- und klimarelevanter Spurengase entwickelt wurde [2, 3].

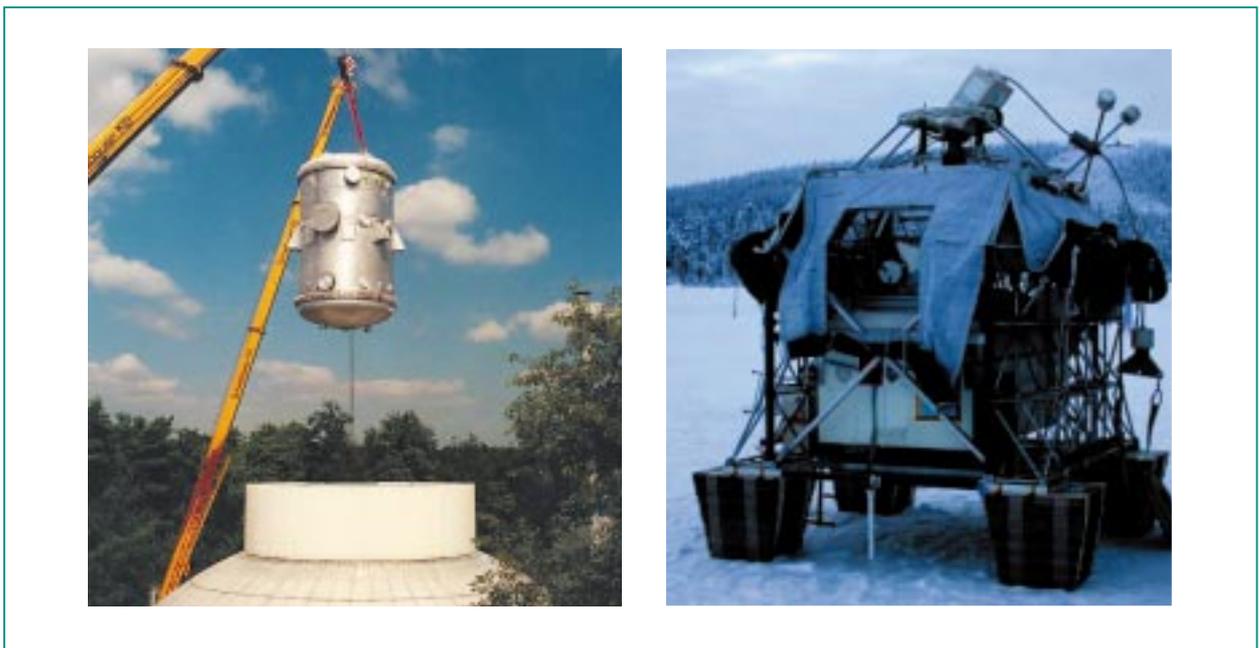


Abb. 2: Offene Fragen der Ozonzerstörung werden am IMK mit Labor- und Feldexperimenten untersucht. Das linke Foto zeigt den AIDA-Aerosolbehälter (Volumen  $84 \text{ m}^3$ ) bei Einbringen in die Versuchshalle. Das rechte Foto zeigt die Ballongondel des MIPAS-B-Experiments, die in ESRANGE, Nordschweden, für den Start in die polare Stratosphäre vorbereitet wird.

Es diente auch als Prototyp des in-  
zwischen auf dem ESA-Satelliten  
Envisat betriebenen MIPAS-  
Gerätes. MIPAS-B wird vom Bo-  
den aus per Funkverbindung  
überwacht und interaktiv gesteu-  
ert. Nach Abschluss der Messun-  
gen sinkt die Ballongondel mittels  
Fallschirmen zu Boden und wird  
geborgen. MIPAS-B wurde in den  
letzten 12 Jahren bei vielen eu-  
ropäischen Messkampagnen zur  
Untersuchung von Ozonabbau-  
prozessen eingesetzt. Die gleich-  
zeitige Messung von mehr als 20  
Spurengasen mit hoher Genauig-  
keit und vertikaler Auflösung ist ei-  
ne besonders wertvolle Voraus-  
setzung für den Test von numeri-  
schen Chemie-Transport-Model-  
len wie zum Beispiel das am IMK  
betriebene KASIMA Modell [4].

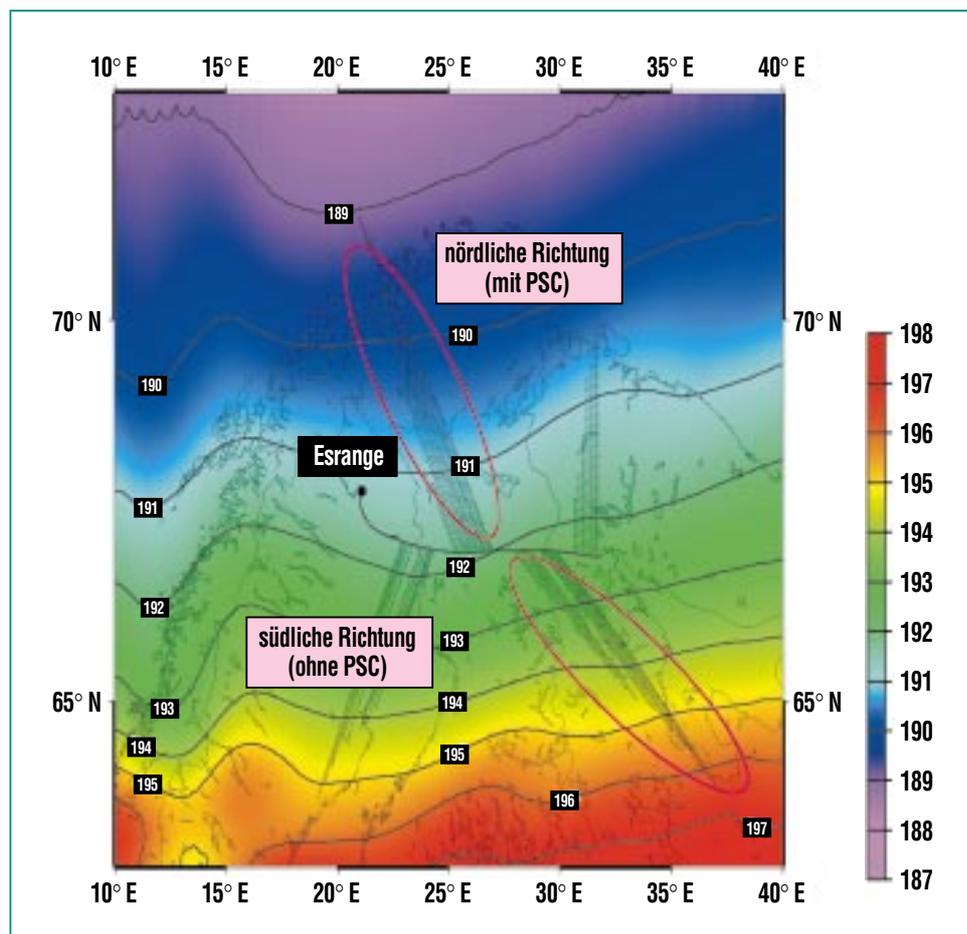
Am 11. Januar 2001 fand am Po-  
larkreis ein Messflug unter sehr  
ungewöhnlichen Bedingungen  
statt: die Ballontrajektorie führte  
entlang der Grenze einer ausge-  
dehnten PSC-Schicht (Abb. 3).  
Dabei konnten zum direkten Ver-  
gleich mit nördlicher Blickrichtung  
Spektren dieser PSCs aufgenom-  
men werden, während Spektren  
mit Blickrichtung Süd wolkenfreie  
Referenzspektren lieferten. Die  
PSC-Schicht hatte eine Höhen-  
ausdehnung von etwa 19 bis  
26 km, wobei die tiefsten von  
MIPAS-B ermittelten Temperatu-  
ren im Kern der Wolke  $-86^{\circ}\text{C}$   
erreichten. Damit wurden weltweit  
erstmals hochaufgelöste, breitban-  
dige IR-Spektren innerhalb von  
PSCs gewonnen, die es erlauben,  
die Aufteilung von Spurenstoffen  
zwischen der Gas- und Partikel-  
phase (chemische Partitionierung)  
sowie den Einfluss der optischen  
und mikrophysikalischen Eigen-

schaften auf atmosphärische IR-  
Spektren zu studieren.

Die Auswertung der gemessenen  
Spurengasprofile hat gezeigt [5],  
dass innerhalb der PSCs bis zu  
70% des  $\text{HNO}_3$  aus der Gasphase  
entfernt und in die Wolkenpartikel  
aufgenommen waren (Abb. 4).  
Außerhalb der Wolke war die  
 $\text{HNO}_3$ -Konzentration hoch, was  
darauf hindeutet, dass noch keine  
Denitrifizierung stattgefunden hat-  
te. Diese Ergebnisse sind konsis-  
tent mit Modellrechnungen der  
Partitionierung von  $\text{HNO}_3$ , sofern  
man annimmt, dass es sich um

flüssige Partikel gehandelt hat.  
Die Annahme von NAT-Partikeln  
würde gegenüber der Messung ei-  
ne viel zu starke Verarmung von  
gasförmigem  $\text{HNO}_3$  ergeben  
(Abb. 4).

Flüssige oder feste Wolkenteil-  
chen können im Infrarot-Bereich  
Licht streuen, absorbieren und  
emittieren, und zwar abhängig von  
der Lichtwellenlänge und von dem  
Partikelgehalt an Sulfat, Nitrat  
oder Wasser. Die Absorption  
durch Partikel hat im Gegensatz  
zur Absorption von Gasen eine  
eher breitbandige Struktur (siehe



**Abb. 3:** Bei einem MIPAS-B-Messflug entlang der Grenze einer PSC-Schicht konnten Messungen innerhalb (nördliche Richtung) und außerhalb (südliche Richtung) von PSCs direkt verglichen werden.

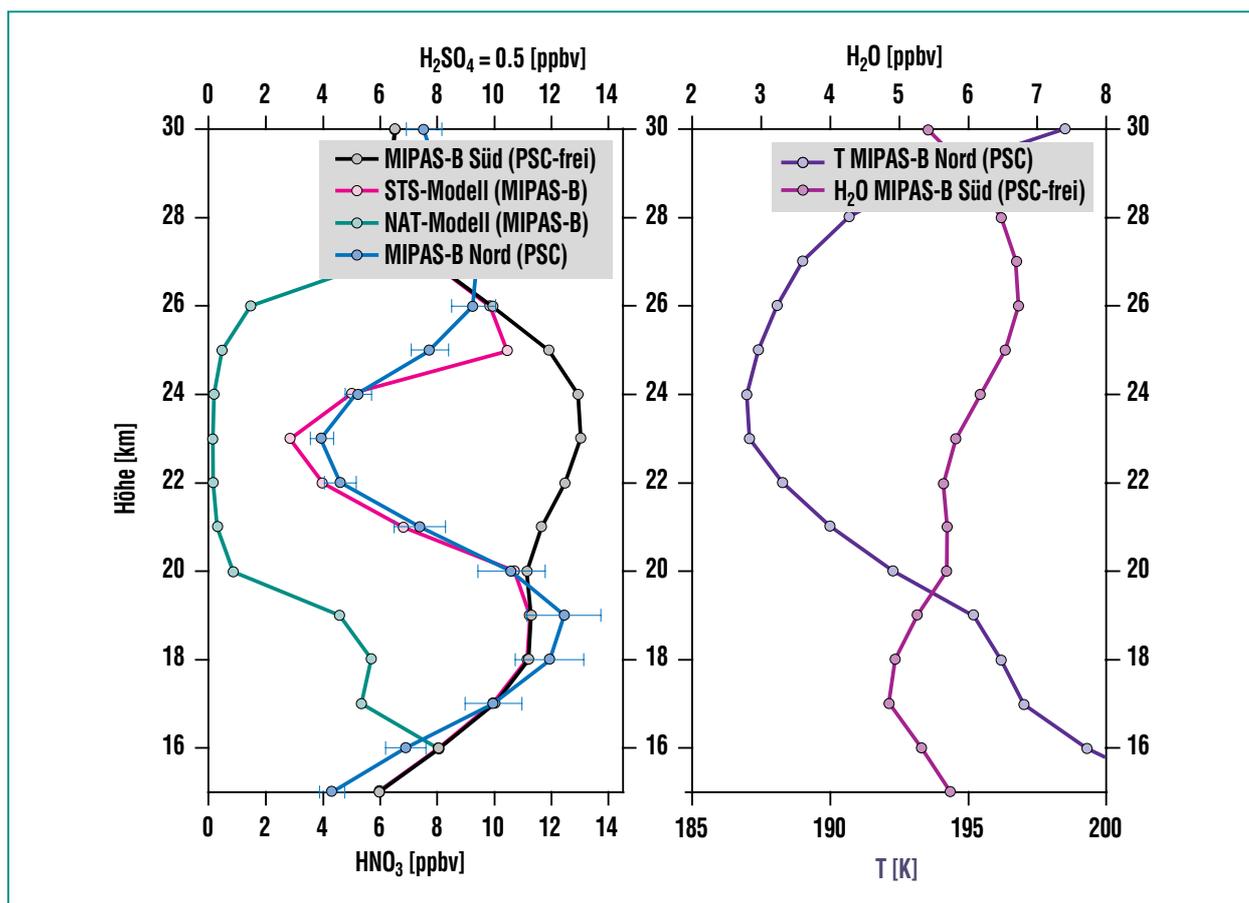


Abb. 4: Von MIPAS-B gemessene Höhenverteilung von Temperatur und  $\text{HNO}_3$  innerhalb sowie  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{O}$  außerhalb der PSCs im Vergleich zu Gleichgewichtsrechnungen unter der Annahme von festen (NAT-Modell) bzw. flüssigen (STS-Modell) Partikeln. Zwischen etwa 20 und 26 km war ein großer Teil der Salpetersäure in Teilchen aufgenommen worden. Die Verarmung von gasförmigem  $\text{HNO}_3$  ist konsistent mit der Annahme von flüssigen Partikeln.

Abb. 5), zeigt sich also überwiegend in Form einer Verschiebung der Basislinie der Spektren. Für die Auswertung der PSC-Signaturen in den Spektren wurde das am IMK entwickelte Strahlungsprogramm KOPRA um ein Mie-Streuprogramm erweitert [6]. Die gemessenen Atmosphärenspektren lassen auf flüssige Partikel schließen, die überwiegend aus Sulfat, Nitrat und Wasser bestehen und einen Radius größer als etwa  $1 \mu\text{m}$  haben, was wiederum die Ergebnisse aus den  $\text{HNO}_3$ -

Messungen und den Modellrechnungen stützt (Abb. 4). Aus den Spektren wurde auch das Volumen der PSC-Partikel pro Einheitsluftvolumen ermittelt, das eine wichtige Bestimmungsgröße für die Rate der Chloraktivierung und damit die Stärke des Ozonabbaus ist. Unter bestimmten Bedingungen kann aus den MIPAS-B-Messungen auch die für die Denitrifizierung entscheidende Größe von PSC-Partikeln ermittelt werden.

### Polarer Winter im Forschungszentrum

1997 wurde am Forschungszentrum Karlsruhe die Versuchsanlage AIDA zur Untersuchung von Aerosolprozessen in Betrieb genommen. Der  $84 \text{ m}^3$  fassende Versuchsbehälter (Abb. 2) befindet sich in einer Isolierbox, in der er gleichmäßig auf bis zu  $-90^\circ\text{C}$  abgekühlt werden kann. Für die chemische und physikalische Charakterisierung von Aerosolen stehen verschiedene Analysetechni-

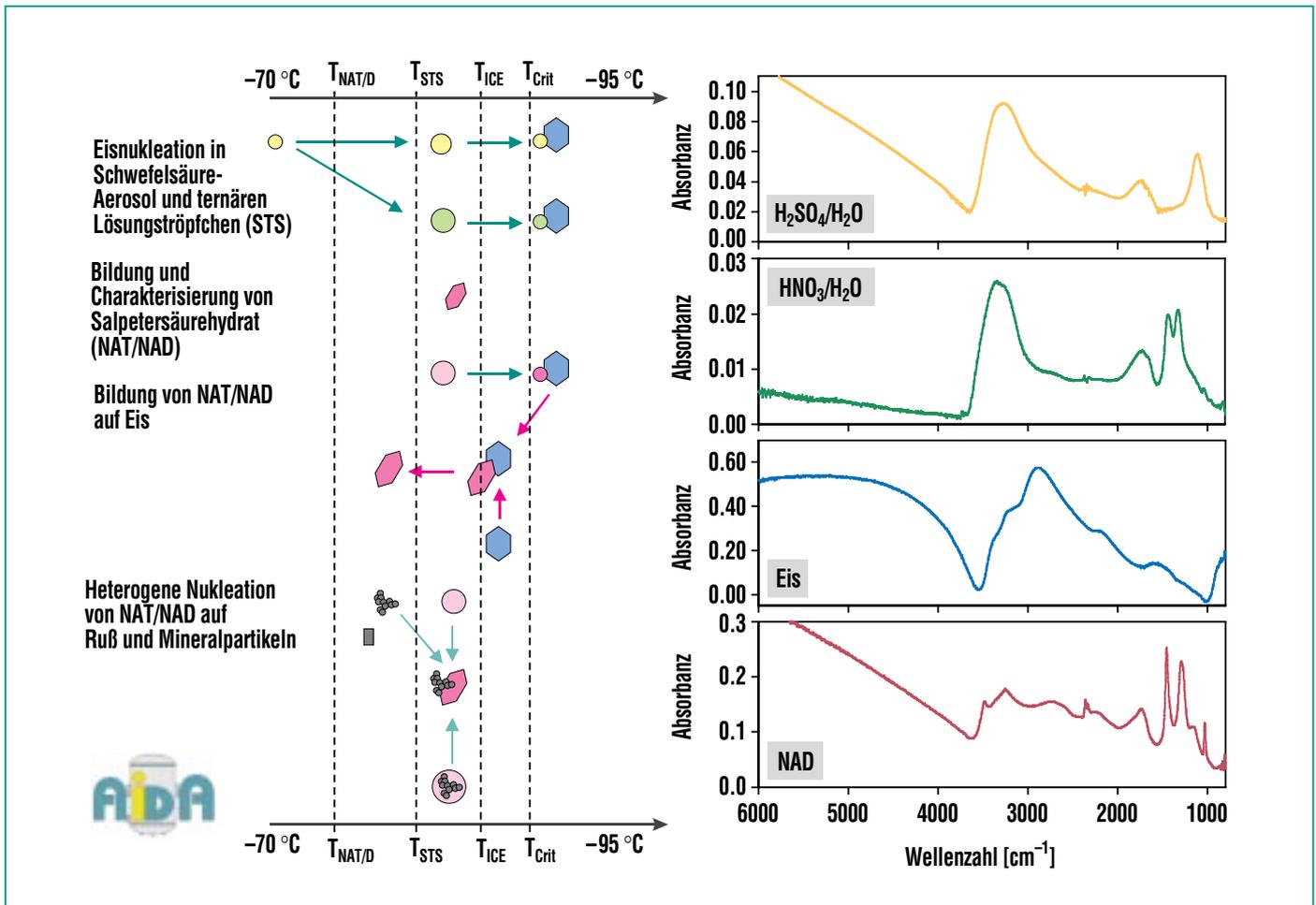


Abb. 5: In AIDA werden Bildungsmechanismen polarer stratosphärischer Wolken (PSCs) untersucht (linkes Schema). Verschieden zusammengesetzte PSC-Partikel können an Hand ihrer FTIR-Spektren identifiziert werden (rechter Teil der Abbildung).

ken zur Verfügung, die hier nicht im Einzelnen beschrieben werden können (siehe [7], Tab. 1). Z.B. werden in AIDA, ähnlich wie mit dem MIPAS-B-Instrument, Infrarotspektren gemessen, die Aufschluss über die chemische Zusammensetzung, Phase, Konzentration und Größe der Aerosolpartikel geben.

Abb. 5 gibt einen Überblick über die PSC-Prozesse, die bislang in AIDA untersucht wurden. Gestrichelte Linien markieren die Maximaltemperaturen, bis zu denen

bestimmte Partikelphasen bei stratosphärischen Bedingungen noch thermodynamisch stabil sind. Für die Bildung von Eis bzw. NAD/NAT durch einen Phasenübergang flüssig/fest oder gasförmig/fest sind allerdings noch deutlich tiefere Temperaturen erforderlich. In einer ersten Experimentserie wurde die Entstehung von Eiskristallen in flüssigen Partikeln aus Schwefelsäure (gelb) bzw. Schwefelsäure-Salpetersäure-Mischungen (grün) untersucht [7, 8]. Danach folgten Experimen-

te zur Charakterisierung von NAD-Partikeln. Die Bildung des thermodynamisch stabileren NAT ist offenbar stark gehemmt, denn es konnte in AIDA bislang nicht erzeugt werden. Es gibt aber experimentelle Hinweise, dass sich NAD oder NAT auf festen Aerosolpartikeln bildet. Feste Partikel von einigen Nanometern Durchmesser entstehen z.B., wenn kleine Meteore in einer Höhe von etwa 100 km verglühen.

Neben den Bildungsmechanismen zeigt Abb. 5 Infrarotspektren

der zugehörigen PSC-Partikel. Der kontinuierliche Anstieg der Absorbanz oberhalb von etwa  $3500\text{ cm}^{-1}$  ist Folge der zunehmenden Lichtstreuung, die u.a. von der Partikelgröße abhängt. Bei kleineren Wellenzahlen dominieren Absorptionsbanden, die für die Zusammensetzung der Partikel charakteristisch sind und deren Identifizierung ermöglichen.

Mit dem Ballonexperiment MIPAS-B und Experimenten in AIDA trägt das IMK zur Aufklärung von Prozessen bei, die zur stratosphärischen Ozonzerstörung führen. Die in nationale und internationale Forschungsprogramme eingebetteten Arbeiten sollen im Rahmen des HGF-Programmthemas „Atmosphäre und Umwelt“ fortgesetzt werden, wobei die

Wechselwirkung mit globalen Klimaänderungen im Vordergrund stehen wird.

## Literatur

- [1] J. C. Farman, B. G. Gardiner, J. D. Shanklin, *Nature* 315, 207, 1985.
- [2] H. Fischer, H. Oelhaf, *Appl. Opt.*, 35, 16, 2787-2796, 1996.
- [3] Friedl-Vallon et al., *eingereicht an Appl. Opt.*, 2003.
- [4] W. Kouker, T. Reddman, R. Ruhnke, *Nachrichten Heft 4/2002*
- [5] G. Wetzel, H. Oelhaf, M. Chipperfield, J. Evans, F. Lefèvre, R. Ruhnke, M. Höpfner, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, A. Lengel, G. Maucher, H. Nordmeyer, H. Fischer, *6th Europ. Symp. Strat. Ozone, Göteborg, 2-6 Sept., 2002.*
- [6] M. Höpfner, H. Oelhaf, G. Wetzel, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, A. Lengel, G. Maucher, H. Nordmeyer, N. Glatthor, G. Stiller, T.v. Clarmann, H. Fischer, C. Kröger, T. Deshler, *Geophys. Res. Lett.*, 29(8), 1278, doi: 10.1029/2001GL014443, 2002.
- [7] O. Möhler, K.-D. Beheng, *dieses Heft.*
- [8] O. Möhler, 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, U. Schurath, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 211-223, 2003.

# Klimawirksamkeit und Chemie atmosphärischer Rußaerosole – Untersuchungen in der AIDA-Anlage

K.-H. Naumann, H. Saathoff, M. Schnaiter, R. Wagner, IMK

## Einleitung

Jährlich werden weltweit durch natürliche oder anthropogene Verbrennungsprozesse ca. 12-14 Millionen Tonnen Kohlenstoff als Bestandteil fester Partikel in die Atmosphäre emittiert, überwiegend in Form von Ruß. Während die meisten Aerosolkomponenten die Atmosphäre abkühlen, indem sie die Reflektivität der Erde erhöhen, tragen rußhaltige Partikel als starke Absorber von Sonnenlicht zu deren Aufheizung bei. Der Anteil von luftgetragener Ruß an der globalen Erwärmung könnte nach neuesten Abschätzungen substantiell sein und wird möglicherweise nur noch von Kohlendioxid übertroffen [1]. Großangelegte internationale Feldmesskampagnen wie das *Indian Ocean Experiment* [2] oder die *Mediterranean Intensive Oxidant Study* [3] sowie neuere Modellrechnungen [4, 5] deuten darauf hin, dass Rußemissionen in dramatischer Weise das regionale Klima verändern können. So scheinen beispielsweise die in den letzten 20 Jahren verstärkt auftretenden Trockenperioden im Nordosten Chinas und die sommerlichen Überflutungen im Südosten des Landes auf eine durch erhöhten Rußausstoß im südlichen Asien bedingte Störung des regionalen hydrologischen Zyklus zurückzuführen zu sein. Als Folge ihrer atmosphärischen Verweilzeit von bis zu 10 Tagen können lokal emittierte Rußpartikel jedoch auch weiträumig transportiert und somit global klimawirksam werden. Im Kyoto-Protokoll von 1997 noch unberücksichtigt, wird deshalb eine weltweite Reduktion der Rußemissionen aus Biomassever-

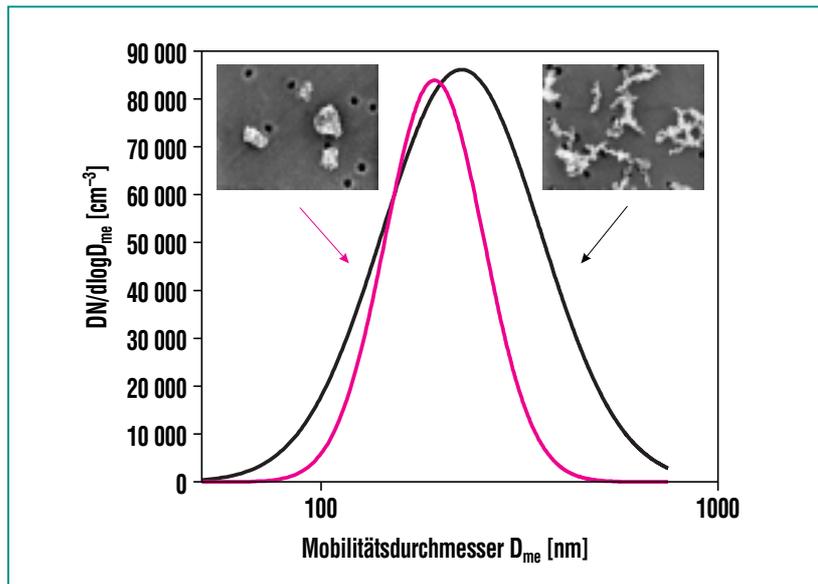
brennung, Industrie und Verkehr als nach gegenwärtigem Kenntnisstand potentiell aussichtsreichste Maßnahme zur Verlangsamung der globalen Erwärmung diskutiert [5], die zugleich mit einer Verminderung der durch die Inhalation von Rußpartikeln bedingten gesundheitlichen Risiken einherginge.

Wie die Erfahrung zeigt, bedarf es zur Durchsetzung wirksamer Klimaschutzmaßnahmen eines breiten politischen Konsens. Die notwendige Akzeptanz kann aber nur über wissenschaftlich solide, glaubwürdige Prognosen und überzeugende Konzepte auf der Basis realitätsnaher, umfassend validierter regionaler und globaler Klimamodelle erreicht werden. Eine detaillierte Beschreibung des Einflusses von Aerosolen auf das Klima ist in diesem Zusammenhang unerlässlich. Angesichts unseres noch immer begrenzten Wissens um die dynamischen, chemischen und optischen Eigenschaften komplexer atmosphärischer Aerosolsysteme wird dieser Anspruch von der gegenwärtigen Generation von Modellen jedoch nur unzureichend erfüllt. Insbesondere den rußhaltigen Aerosolen wird deshalb gegenwärtig eine hohe wissenschaftliche Priorität zugemessen. Vor diesem Hintergrund fanden Ende 1999 und Anfang 2002 an der AIDA-Versuchsanlage (AIDA: Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere) des IMK zwei umfangreiche Messkampagnen unter Beteiligung nationaler und internationaler Partner statt, die der Untersuchung der strukturellen, dynamischen und optischen Eigenschaften von reinem Rußaerosol,

Mischungen von Ruß- und Salzpartikeln sowie mit Sulfat und organischem Material beschichteten Rußpartikeln gewidmet waren. Weiterhin wurden in den vergangenen Jahren heterogene chemische Wechselwirkungen reaktiver Spurengase mit Rußaerosol intensiv studiert, um deren in der Literatur postulierten Einfluss auf die atmosphärische Chemie zu quantifizieren. Diese Aktivitäten wurden von fortlaufenden Laboruntersuchungen, theoretischen Arbeiten und Modellentwicklungen begleitet, ohne die ein umfassendes Verständnis der in der AIDA-Kammer ablaufenden Prozesse und die Übertragung der gewonnenen Resultate in Klimamodelle nicht möglich wäre. Anhand dreier ausgewählter Schwerpunkte soll dieser Artikel einen Einblick in die Arbeiten zur Rußaerosolthematik vermitteln, die seit der Inbetriebnahme von AIDA im Mai 1997 im Rahmen der Verbundprojekte EUROTRAC II und BMBF-AFS durchgeführt wurden.

## Das Aerosolmodell COSIMA

Frisch entstandene Rußpartikel sind häufig Agglomerate aus Kügelchen von 5-50 nm Durchmesser, die eine sehr lockere, verzweigte Struktur und damit eine wesentlich größere Oberfläche als massengleiche kompakte Spezies besitzen (Abb. 1). Ihre Aerodynamik unterscheidet sich wesentlich von der kompakter Kügelchen. So ist die Sinkgeschwindigkeit erheblich geringer und damit die atmosphärische Verweilzeit entsprechend höher, während Transport von reaktiven Spurengasen zur Oberfläche und Wachs-



**Abb. 1: Struktur frisch emittierter und gealterter Graphitfunkenruß-Partikel. Die durch Beschichtung induzierte Kompaktierung ist in den elektronenmikroskopischen Aufnahmen deutlich erkennbar und kann anhand der Verschiebung der gemessenen Größenverteilung quantifiziert werden.**

tum durch Koagulation stark beschleunigt sind. Um diese Effekte adäquat zu erfassen, wurde das Computersimulationsprogramm COSIMA entwickelt und anhand von AIDA-Experimenten verifiziert. Es beschreibt die Dynamik irregulär strukturierter Agglomerate mit den Mitteln der statistischen Mechanik auf der Basis fraktaler Skalengesetze. Der zentrale Aspekt dieses Konzeptes ist einfach zu verstehen. Bei homogenen kugelförmigen Teilchen hängen Größen wie Masse, Oberfläche oder Stoßquerschnitt von ganzzahligen Potenzen des Durchmessers ab. So ist beispielsweise die Masse proportional zur dritten Potenz des Durchmessers,  $m \sim d^3$ . Für in Verbrennungsprozessen entstandene Agglomerate findet man jedoch häufig  $m \sim d^D$  mit  $1 \leq D \leq 3$ , wobei  $D$  keineswegs ganzzahlig sein muss. Bei Vorlie-

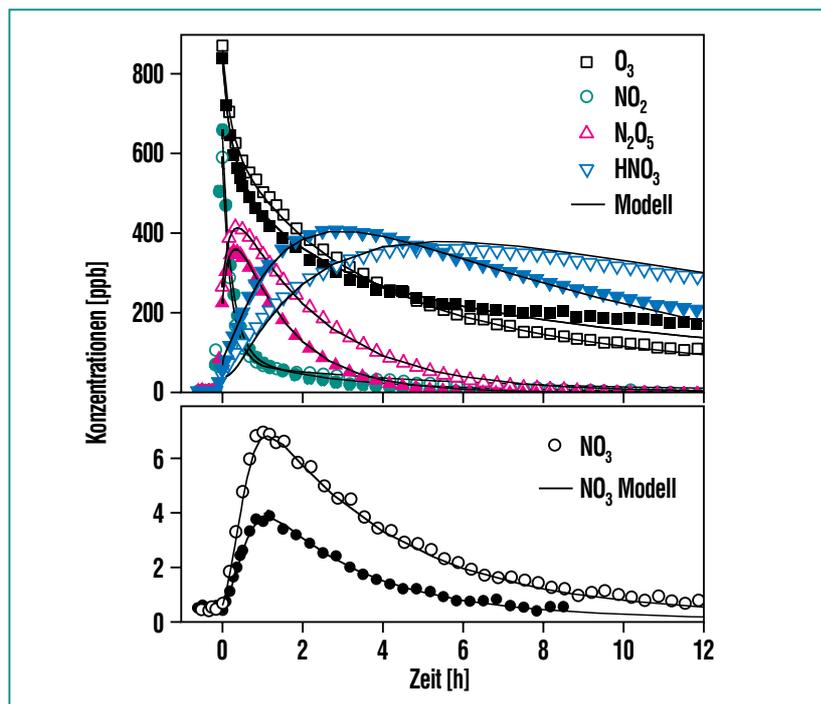
gen selbstähnlicher Strukturen nennt man  $D$  die fraktale Dimension. Skalenbeziehungen in Potenzen von  $D$  korrelieren dann geometrische, dynamische und optische Kenngrößen. Durch Vergleich simulierter und gemessener Zeitverläufe für Massen- und Anzahlkonzentration sowie der Größenverteilung des jeweiligen Aerosols wurde  $D$  zu  $1.9 \pm 0.2$  für Dieselruß und zu  $2.0 \pm 0.1$  für Graphitfunkenruß, den man wegen seiner hervorragenden Reproduzierbarkeit in vielen Labors als Modellruß verwendet, bestimmt. Über die Beschreibung der Aerosoldynamik hinaus ist  $D$  auch ein zentraler Parameter für die Berechnung der Extinktion und des Streuvermögens von Agglomeratpartikeln und damit ihres Einflusses auf die Strahlungsbilanz der Atmosphäre.

### Wechselwirkung von Ruß mit reaktiven Spurengasen

In zahlreichen Laborstudien wurde gezeigt, dass heterogene Umsetzungen von reaktiven Spurengasen an der großen Oberfläche frischer Rußpartikel zunächst sehr effizient ablaufen können. Extrapoliert man diese anfänglichen Umsatzraten auf das atmosphärische Langzeitverhalten, so sagen Modellrechnungen einen signifikanten Rußeffect auf die Chemie der Troposphäre und der Stratosphäre voraus, der sich hauptsächlich in direkten Ozonverlusten sowie in einer Verschiebung des Budgets stickstoffhaltiger Spurengase durch Reduktion von Stickstoffdioxid und Salpetersäure manifestiert. Dieser Befund erregte großes Interesse, da so die Resultate von Chemie-Transport-Modellen in wesentlich bessere Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Feldmessungen gebracht werden konnten. Jedoch sind solche Extrapolationen mit großen Unsicherheiten behaftet, da die atmosphärische Verweilzeit der Rußpartikel lang genug ist, um chemische und physikalische Alterungsprozesse wirksam werden zu lassen, die zu einer Passivierung der Oberfläche führen könnten. Daher erschien es wünschenswert, die Hypothese eines direkten Rußeffectes auf die Atmosphärenchemie experimentell und theoretisch zu überprüfen.

In der großvolumigen AIDA-Kammer, deren grundlegende technische Ausstattung in [6] beschrieben ist, konnten erstmals die Wechselwirkungen von  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $NO_3$ ,  $N_2O_5$ ,  $HO_2/HNO_4$  und  $HNO_3$

mit luftgetragenem Ruß über atmosphärisch relevante Zeiträume von bis zu 7 Tagen untersucht werden. Abb. 2 zeigt den Verlauf eines typischen Experiments, welches mit einer Mischung von Ozon und Stickstoffdioxid gestartet wurde. Anhand der Zeitverläufe der Spurengaskonzentrationen in Abwesenheit von Ruß werden zunächst die Wandverluste bestimmt und das Modell der homogenen Gasphasenchemie überprüft. Mit Hilfe von COSIMA können dann aus gemessenen Konzentrations-Zeitverläufen in Gegenwart von Ruß Reaktionswahrscheinlichkeiten abgeleitet werden, die ein Maß für den reaktiven Anteil der Stöße eines Spurengases mit der Partikeloberfläche darstellen. Im Falle des Abbaus von Ozon zeigte sich so, dass nur ein Monolagenäquivalent schnell umgesetzt werden kann. Danach sinkt die Reaktionswahrscheinlichkeit auf den sehr niedrigen Wert von  $10^{-6}$ . Mit einer Zeitkonstante von 12 Stunden erfolgt schließlich eine vollständige Passivierung der Rußoberfläche [7]. Für alle untersuchten Spezies konnte gezeigt werden, dass die atmosphärisch relevanten Langzeit-Reaktionswahrscheinlichkeiten tatsächlich um 2 bis 4 Größenordnungen unter den für frischen Ruß bestimmten Initialwerten liegen [7, 8]. Auf der Basis dieser Befunde durchgeführte Computersimulationen belegen nunmehr, dass, von Szenarien extremer Luftverschmutzung abgesehen, der Abbau von Spurengasen an Rußaerosol für die Chemie der Atmosphäre praktisch bedeutungslos ist [8].

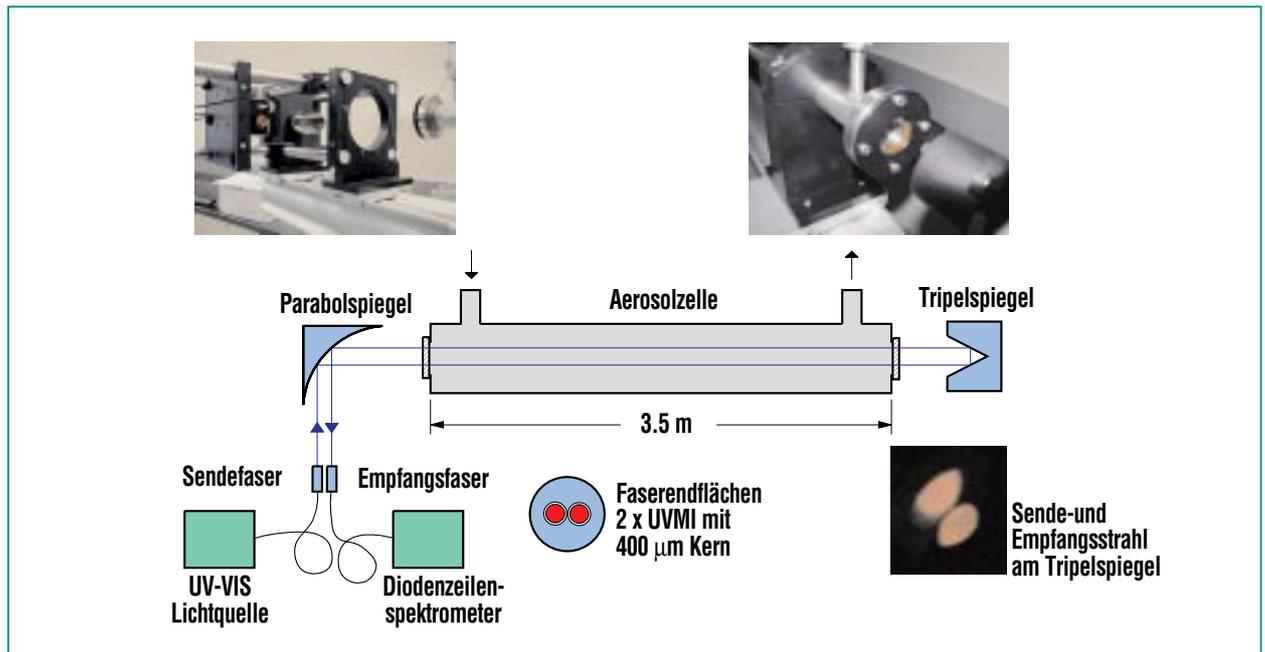


**Abb. 2: Vergleich gemessener Zeitverläufe der Konzentrationen reaktiver Spurengase (ohne Ruß: offene Symbole; mit Ruß: gefüllte Symbole) mit dem Ergebnis der COSIMA-Modellrechnung (Linien).**

### Einfluss von atmosphärischen Alterungsprozessen auf Struktur und optische Eigenschaften von Rußpartikeln

Wenngleich heterogene chemische Prozesse an der Oberfläche von Ruß unbedeutend für die Atmosphärenchemie sind, erhöhen sie gleichwohl die Benetzbarkeit der Partikel und damit deren Potenzial, als Kondensationskeime für Wolkentröpfchen zu agieren. Verteilt sich eine vorgegebene Wassermenge auf eine größere Zahl von Tröpfchen, so erhöht sich das Rückstreuvermögen der Wolke, während ihre Fähigkeit zum Ausregnen abnimmt. Andererseits können Rußpartikel in hoher

Konzentration ihre Umgebung durch Lichtabsorption soweit aufheizen, dass Wolken verdampfen und mehr Strahlung zur Erde gelangt. Durch Inkorporation in Tröpfchen, aber auch durch Beschichtung mit Ammoniumsulfat, -nitrat oder mit schwerflüchtigen organischen Substanzen kann sich das Absorptionsvermögen der Rußkerne vervielfachen. Gleichzeitig nehmen die Partikel eine kompaktere Form an (s. Abb. 1), wodurch sich ihre atmosphärische Verweilzeit verkürzt. Dieses komplexe nichtlineare System von Aerosolprozessen und sein Einfluss auf das Klima ist allein durch Feldstudien und Fernerkundungsmethoden nicht aufzuklären. Hier können realitätsnah angelegte Aerosolkammerunter-



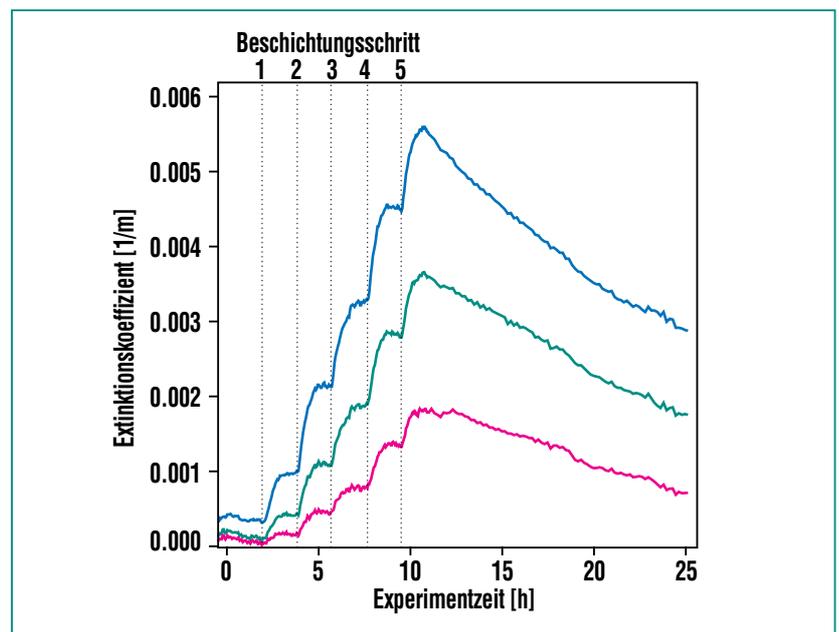
**Abb. 3: Schema einer neuartigen Apparatur zur Messung der Extinktionsspektren luftgetragener Partikel.**

suchungen, die im Gegensatz zu Feldmessungen unter wohldefinierten Bedingungen durchgeführt werden, kombiniert mit Laborexperimenten und Modellstudien einen wertvollen Beitrag zur Verbesserung der Prognostizierbarkeit des Aerosoleinflusses auf das Klima leisten.

Zur Untersuchung der optischen Aerosoleigenschaften kommen in der AIDA-Anlage neben kommerzieller Messtechnik auch Eigenentwicklungen zum Einsatz. Als Beispiel sei in Abb. 3 der Aufbau einer Extinktionszelle veranschaulicht, mit der die Extinktionsspektren luftgetragener Partikel im Wellenlängenbereich zwischen 200 und 1000 nm vermessen und durch Modifikation der Partikelstruktur oder der chemischen Zusammensetzung induzierte Veränderungen empfindlich detektiert werden können. Abb. 4

zeigt den zeitlichen Verlauf des Extinktionskoeffizienten von Graphitfunkenruß während eines Al-

terungsexperimentes, in dem die Partikel in mehreren Stufen *in situ* mit schwerflüchtigen Ozonolyse-



**Abb. 4: Zeitliche Veränderung der Extinktion von Graphitfunkenruß-Aerosol durch wiederholtes Beschichten mit organischem Material (blau: 450 nm; grün: 550 nm; rot: 700 nm)**

produkten des natürlich vorkommenden Kohlenwasserstoffes  $\alpha$ -Pinen beschichtet wurden. Die Ausbildung einer neuen Lage lichtstreuenden organischen Materials wird jeweils von einem beträchtlichen Anstieg der Extinktion begleitet. Durch Vergleich von Extinktions- und Streulichtmessungen erweist sich jedoch, dass sich auch das Absorptionsvermögen in etwa verdoppelt, obwohl die organische Schicht selbst nahezu kein Licht absorbiert. Andererseits wird bei der Koagulation von Ruß mit trockenen Ammoniumsulfatpartikeln, die nicht zur Ausbildung geschlossener Beschichtungen führt, keine nennenswerte Erhöhung der Lichtabsorption beob-

achtet. Diese für die Strahlungsbilanz der Atmosphäre bedeutsamen Zusammenhänge konnten in der AIDA-Kammer erstmals detailliert an luftgetragenen Partikeln untersucht werden.

### Zusammenfassung

In der Versuchsanlage AIDA des IMK wurden seit 1997 umfassende Studien zur Charakterisierung der strukturellen, aerosoldynamischen und optischen Eigenschaften von luftgetragendem Ruß sowie zur heterogenen Chemie reaktiver Spurengase an der Oberfläche von Rußpartikeln durchgeführt. Unterstützt durch Laborexperimente und Simulationsrechnun-

gen mit dem Prozessmodell CO-SIMA konnten so vielfältige Erkenntnisse gewonnen werden, die eine wissenschaftlich fundiertere Behandlung des Einflusses von Rußaerosol im Rahmen von regionalen und globalen Klimasimulationen erlauben. Die in der AIDA-Rußkampagne 1999 gemeinsam mit nationalen und internationalen Partnern gewonnenen Ergebnisse wurden in 9 ausführlichen Publikationen dokumentiert, die demnächst in einer Spezialausgabe des *Journal of Aerosol Science* erscheinen werden.

### Literatur

- [1] W. L. Chameides, M. Bergin, *Science* 297, 2214 (2002), und darin zitierte Literatur
- [2] J. Lelieveld et al., *Science* 291, 1031 (2001)
- [3] J. Lelieveld et al., *Science* 298, 794 (2002)
- [4] S. Menon, J. Hansen, L. Nazareno, Y. Luo, *Science* 297, 2250 (2002)
- [5] M. Z. Jacobson, *J. Geophys. Res.* 107, 4410 (2002)
- [6] H. Bunz et al., *Nachrichten - Forschungszentrum Karlsruhe* 29, 173 (1997), siehe auch <http://imk-aida.fzk.de/facility/>
- [7] S. Kamm, O. Möhler, K.-H. Naumann, H. Saathoff, U. Schurath, *Atmos. Env.* 33, 4651 (1999)
- [8] H. Saathoff, K.-H. Naumann, N. Riemer, S. Kamm, O. Möhler, U. Schurath, H. Vogel, B. Vogel, *Geophys. Research Lett.* 28, 1957 (2001)