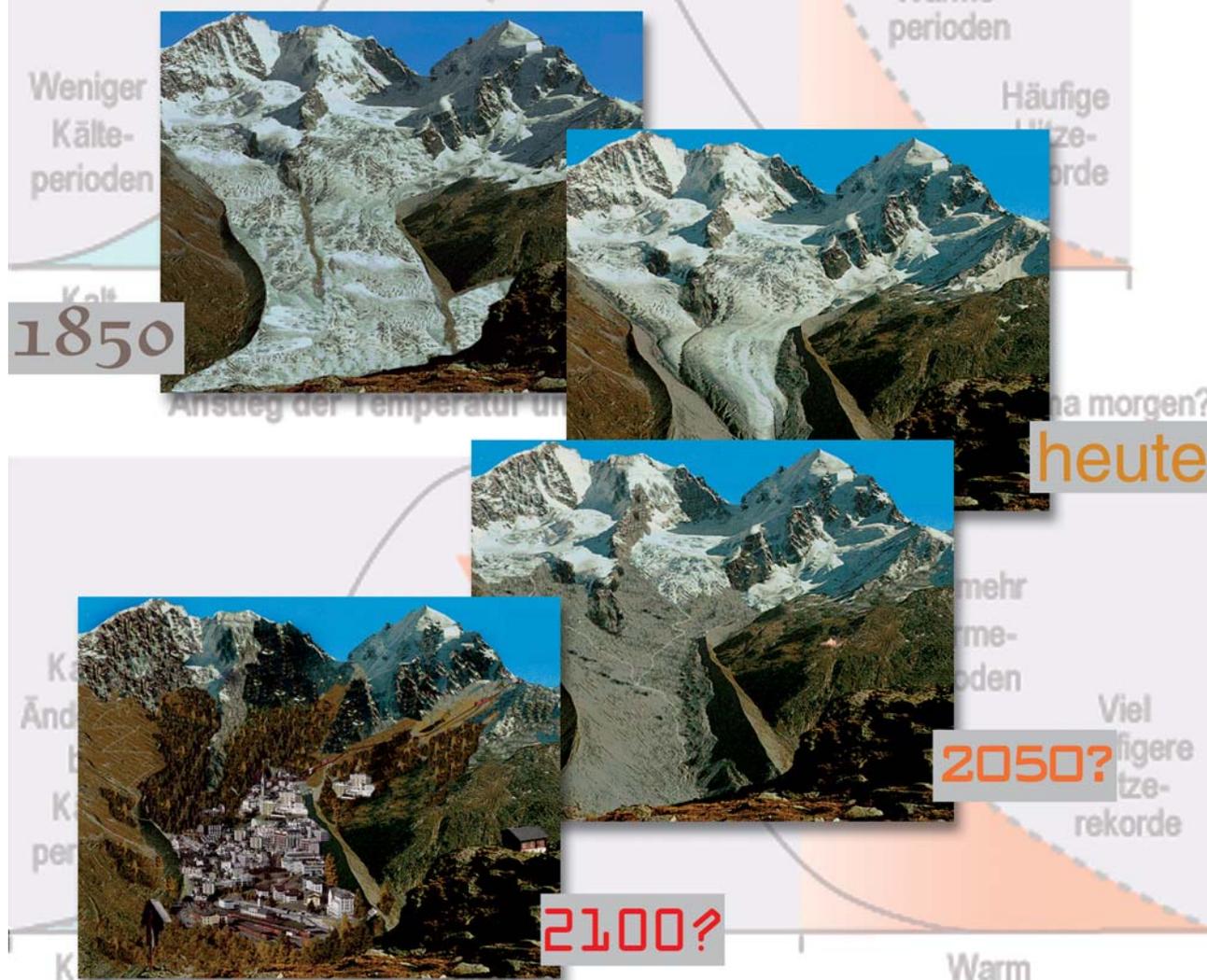




Numerische Klimamodelle – Was können sie, wo müssen sie verbessert werden?

Teil III: Modellierung der Klimaänderungen
durch den Menschen, 1. Teilheft



25 J. FEICHTER, U. LOHMANN Aerosole und Klima

1 Einleitung

Erste Untersuchungen zum möglichen Klimaeinfluss von Aerosolpartikeln wurden bereits in den 60er und 70er Jahren mit ein-dimensionalen Strahlungs-Konvektionsmodellen durchgeführt (z. B. CHARLSON und PILAT 1969; GRAßL 1973; CHYLEK und COAKLEY 1974; TWOMEY 1977). Mit einem globalen Zirkulationsmodell wurde die erste Abschätzung des direkten Effektes von Aerosolen auf Zirkulation und Temperaturverteilung von TANRE et al. (1984) unternommen. Da dabei die Meeresoberflächentemperatur fest vorgegeben wurde, konnte ein Temperatureffekt nur über Land simuliert werden. TANRE et al. (1984) fanden eine Abkühlung durch kontinentales Aerosol besonders über Wüstengebieten und eine Erwärmung über stark verschmutzten Gebieten und über Schneeflächen aufgrund des hohen Rußanteils im Aerosol. Mit Klimamodellen, d. h. mit gekoppelten Zirkulationsmodellen der Atmosphäre und des Ozeans, wurde meist nur der direkte Effekt anthropogener Schwefel-emissionen untersucht. Änderungen der wolkenoptischen Eigenschaften aufgrund der Zunahme von Partikeln in der Atmosphäre wurden bisher nur von einigen wenigen Gruppen abgeschätzt. Diese Abschätzungen legen einen schwächeren direkten (Einfluss auf solare und thermische Strahlung) als indirekten (Einfluss durch Änderungen der wolkenphysikalischen und optischen Eigenschaften) Effekt nahe, sind aber noch mit sehr großen Unsicherheiten behaftet. Im Folgenden wird jeder Abschnitt mit einer Beschreibung der relevanten Prozesse eingeleitet, um dann die Modellannahmen und -ergebnisse vorzustellen.

2 Physiko-chemische Eigenschaften des Aerosols

Das atmosphärische Aerosol ist definiert als die Gesamtheit aller in einem Luftvolumen befindlichen festen und flüssigen Partikel (Hydrometeore ausgenommen). Ein Aerosolgemisch enthält Partikel unterschiedlichster Form, Textur, chemischer Zusammensetzung und Größe. Könnte man diese Teilchenpopulation beobachten, stellte man fest, dass die Verteilung all dieser Eigenschaften nicht statisch ist, sondern ständigen Änderungen unterliegt. Partikel koagulieren, besonders rasch solche mit sehr kleinem Durchmesser, aufgrund Brown'scher Molekularbewegung oder sedimentieren aufgrund der Schwerkraft, wenn sie groß genug sind. Kleinste Fluktuationen der Temperatur und der Dampfdrücke bewirken, dass einige Spezies aus der Partikel- in die Gasphase übergehen oder aus der Gasphase nukleieren, d. h. neue Teilchen bilden.

Man wird sowohl feste als auch flüssige Partikel finden, letztere Lösungen verschiedener Spezies in Wasser. Die Anlagerung von Wasser an die vorhandenen Partikel wird bestimmt durch die relative Feuchte der Umgebungsluft, die Temperatur und die chemische Zusammensetzung der Partikel bzw. deren Wasserlöslichkeit oder Hygroskopizität. Chemische Umwandlungen in der Gas- und in der Flüssigphase ließen sich beobachten, deren Geschwindigkeit von der ionischen Zusammensetzung der Partikel beeinflusst wird, und Adsorption von Gasen an Partikeln und Desorption (TWOMEY 1977). Fügt man nun dem Aerosol z. B. Schwefelsäuregas zu, so werden nicht nur additiv einige Eigenschaften des Aerosols geändert, sondern es entsteht ein anderes Aerosol mit neuen Gleichgewichten. Da das Aerosol in dieser Komplexität weder der Beobachtung noch der modellhaften Beschreibung zugänglich ist, behilft man sich mit der Idealisierung und der Beschreibung integraler Größen.

Die Größe eines Partikels wird durch den Radius r oder den Durchmesser d angegeben, der einer Kugel mit gleichem Volumen wie das zu beschreibende Partikel zukäme. Die Verteilung der Teilchenanzahl auf bestimmte Größenbereiche $r+dr$ wird mittels semiempirischer logarithmischer Verteilungsfunktionen beschrieben (JUNGE 1955; CLARK und WHITBY 1967). Die „log-normal“ Verteilung, die von AITCHINSON und BROWN (1957) eingeführt wurde, gibt für viele Aerosolpopulationen die beobachteten Verteilungen am besten wieder. Die kleinsten Teilchen, die in einem Kondensationszähler erfasst werden können, weisen einen Radius von 1,6 nm auf (JAENICKE 1987). Die größten Teilchen, welche Transport über größere Entfernungen unterliegen, haben einen Radius von etwa 10 μm . Das Größenspektrum, das beschrieben werden muss, überstreicht also 5 Größenordnungen, von 10^{-9} bis 10^{-5} m. Partikel kleiner als 0,2 μm dominieren die Anzahldichte, Partikel mit einem Radius zwischen 0,05 und 1,0 μm die Aerosoloberfläche und damit auch die optischen Eigenschaften, und solche mit Radien zwischen 0,3 und 20 μm die Partikelmasse.

Partikel werden entweder aus der Gasphase durch Nukleation gebildet, wie z. B. Sulfat, Nitrat, Ammonium und organische Verbindungen, oder werden wie Seesalz als flüssige oder wie Stäube und Ruß als feste Partikel in die Atmosphäre emittiert. Letztere werden als Primärpartikel, erstere als Sekundärpartikel bezeichnet. Dämpfe kondensierbarer Spezies bilden neue Partikel (homogene Nukleation) oder kondensieren an vorhandenem Aerosol (heterogene Nukleation). Die

Nukleationsrate hängt von der Übersättigung und dem Angebot an vorhandenen Partikeln bzw. der Partikeloberfläche ab. Die homogene Nukleation erfordert sehr hohe Dampfdrücke, so dass, da auch in Reinluft immer einige Partikel vorhanden sind, die heterogene Nukleation dominiert. Homogene Nukleation kann aber bereits bei sehr niedrigem Dampfdruck stattfinden, wenn zwei oder mehrere Dämpfe miteinander kondensieren (Konukleation). Das ist z. B. bei Schwefelsäuregas der Fall, das bevorzugt zusammen mit Wasserdampf und Ammoniak als ternäre Mischung oder nur zusammen mit Wasserdampf als binäre Mischung nukleiert. Da Konukleation bereits bei Dampfdrücken unterhalb des Sättigungsdampfdruckes der einzelnen Komponenten erfolgt, binden Aerosolpartikel Wasser auch bei einer relativen Feuchte unterhalb von 100 %. Bei 80 % relativer Feuchte der Umgebungsluft und einer Temperatur von 298 K wächst das Volumen eines Schwefelsäuretröpfchens um den Faktor 5,5, das eines Ammoniumbisulfattröpfchens um den Faktor 3,4, verglichen zum Partikelvolumen bei 0 % relativer Feuchte (ADAMS et al. 1999). Durch homogene Nukleation gebildete Teilchen sind mit Radien von etwa 10 nm (Nukleationsmode) relativ klein. Partikel im Nukleationsmode unterliegen Brown'scher Bewegung und tendieren dazu, sich zu vereinigen, wenn sie miteinander oder mit größeren Partikeln kollidieren. Diesen Prozess nennt man Koagulation und er bestimmt die Lebensdauer von kleinen Partikeln, die in der Größenordnung von Stunden liegt. Eine ähnliche Lebensdauer zeigen Partikel größer als 10 µm aufgrund der Sedimentation durch die Schwerkraft. Die längste atmosphärische Verweildauer weisen Partikel im Größenbereich 0,1 bis 1 µm auf (Akkumulationsmode). Ihre Verweildauer beträgt in der unteren Troposphäre wenige Tage, in der oberen Troposphäre bis zu 4 Wochen und in der Stratosphäre 1 bis 3 Jahre. In der Troposphäre ist Auswaschen durch Niederschlag die dominante Senke, in der Stratosphäre dagegen Abwärts-transport und Sedimentation.

WHITBY (1978) führte basierend auf Beobachtungen und theoretischen Studien das Konzept der trimodalen Beschreibung einer Aerosolpopulation ein, wobei er zwischen zwei Feinpartikelmoden (auch als Submikrometermode bezeichnet) mit einem Durchmesser $d < 2 \mu\text{m}$, und einem Grobpartikelmode, mit $d > 2 \mu\text{m}$, unterscheidet. Da die Volumentransferrate von kleineren zu größeren Teilchen durch heterodisperse Koagulation für Teilchen $d > 0,5 \mu\text{m}$ stark abnimmt, führt Partikelwachstum aufgrund aerosoldynamischer Prozesse zu Durchmessern nicht größer als 1 µm. Grobpartikel wie Staub und Seesalz werden mechanisch generiert und unterscheiden sich daher von Feinmode-Partikeln nicht nur in ihrer Größenverteilung, sondern auch in ihrer chemischen Zusammensetzung. Feinpartikel weisen eine bimodale Verteilung auf, den Nukleations- oder Aitken-Mode, der durch Nukleation aus der Dampfphase entsteht, und den Akkumulations-Mode, der durch Koagulation und Wachstum aus Kondensa-

tion entsteht. Teilchen im Akkumulations-Mode streuen am effizientesten kurzwellige Strahlung und bilden den größten Anteil an Wolkenkondensationskernen.

Abschätzungen des Klimaeffektes der wichtigsten anthropogenen Aerosol-Komponenten Ruß und Sulfat beruhen bisher auf dem so genannten „bulk-approach“, d. h. es wird die raum-zeitliche Verteilung der Partikelmasse mit globalen Chemie-Transport-Modellen berechnet. Aerosolmikrophysikalische Prozesse werden nicht explizit berücksichtigt und es wird angenommen, dass die Masse der Partikel im Akkumulations-Mode vorliegt. Um die Quellen von Seesalz und Mineralstaub hingegen realistisch zu simulieren, ist ein größenabhängiger Ansatz notwendig. In der Literatur finden sich drei verschiedene Ansätze, Partikelpopulationen zu beschreiben:

1. Die Form der Verteilung der Partikelpopulation wird vorgeschrieben (z. B. log-normale Verteilung) und einzelne Momente der Verteilung wie Partikelmasse, Teilchenzahl und Breite der Verteilung werden prognostisch für mehrere Moden berechnet (z. B. SCHULZ et al. 1998).
2. WRIGHT et al. (2000) berechnen die ersten sechs Momente einer modalen Partikelverteilung und benötigen dadurch keine a-priori Annahmen bezüglich der Form der Verteilung.
3. Die Partikelpopulation wird in Größenklassen unterteilt, in so genannte „bins“, die durch ihre Breite dr charakterisiert sind. Für jede dieser Klassen wird die Partikelanzahl berechnet (SCHULZ et al. 1998; TIMMRECK und GRAF 2000).

Jede dieser Methoden parameterisiert Prozesse, die die Anzahl der Teilchen verändern, wie die Nukleation und Koagulation von Teilchen, und solche, die die Partikelmasse beeinflussen, wie Kondensation an Partikeln.

3 Quellen

Während die meisten Treibhausgase aufgrund ihrer langen atmosphärischen Verweildauer in der Troposphäre gut durchmischt sind, weist das Aerosol eine hohe räumliche und zeitliche Variabilität auf. Grund dafür sind die vielfältigen und kleinräumigen Quell- und Senkenprozesse. Der Zusammenhang zwischen Quellstärke und der daraus resultierenden Zusammensetzung und Menge des Aerosols ist sehr komplex. Partikel werden entweder direkt in die Atmosphäre eingebracht (Primärpartikel) oder bilden sich aus gasförmigen Vorläufersubstanzen in der Atmosphäre (Sekundärpartikel). Der Eintrag von Primärpartikeln wie Mineralstaub oder Seesalz sowie deren Größenverteilung wird von der Stärke des bodennahen Windes und von der Textur des Bodens kontrolliert. Kondensierbare Dämpfe entstehen in der Atmosphäre durch chemische Umwandlungen von Schwefel- und Stickstoffverbindungen oder organischen Kohlenwasserstoffen in der Gas- und in der Flüssigphase. Die Rate, mit der diese Dämpfe zu Partikeln kondensieren, hängt vom

Dampfdruck der betreffenden Substanz, von der Feuchte und Temperatur der Umgebungsluft und der Oberfläche bereits vorhandener Partikel ab. Die Ausbeute an Sekundärpartikeln variiert somit mit der Konzentration verschiedener Oxidantien und verschiedenen meteorologischen Parametern und ist nicht nur von der Quellstärke, sondern auch von Ort und Zeit der Ausbringung abhängig. Optische Eigenschaften und die Fähigkeit einzelner Partikel, als Wolkenkondensationskern aktiviert zu werden, sind durch Partikelgröße und chemische Zusammensetzung bestimmt. Dieselben Partikeleigenschaften beeinflussen wiederum die atmosphärische Verweildauer des Aerosols, indem sie die Effizienz der wichtigsten Senke, das Auswaschen durch Niederschlag, mitbestimmen. Partikel-Quellen weisen also eine hohe zeitliche und räumliche Variabilität auf. Eine Abschätzung der Beiträge einzelner Quellen zum atmosphärischen Aerosolgehalt und dessen klimarelevanter Eigenschaften ist nur mittels numerischer Modelle möglich.

Tab. 25-1 gibt einen Überblick über die wichtigsten Aerosolvorläufersubstanzen und -komponenten sowie deren Produktionsmechanismen und Quellstärken. Die angegebenen Werte sind repräsentativ für Mitte der 80er Jahre und basieren zum Teil auf Emissionsinventaren, die für die globale Modellierung ausgearbeitet wurden. Gasförmige Emissionen von Schwefel- und Stickstoffverbindungen stammen zu 70-80 % aus anthropogenen Quellen wie Verfeuerung fossiler Brennstoffe, Biomassenverbrennung durch Brandrodung und Verwendung von Feuerholz und Landwirtschaft. Flüchtige Kohlenwasserstoffe (VOC = volatile organic carbon) werden zu etwa 40 % aus anthropogenen Quellen freigesetzt, zum überwiegenden Teil aber aus natürlichen Quellen wie der Vegetation. Erhebliche Mengen an Ruß und Kohlenwasserstoffen werden bei der Verfeuerung fossiler Brennstoffe und der Verbrennung von Biomasse als Primärpartikel emittiert.

Den stärksten Beitrag zum atmosphärischen Aerosolgehalt leisten aber Primärpartikel aus windgetriebenen Quellen wie Mineralstaub vornehmlich aus Wüstengebieten und Seesalz aus Gischtproduktion über den ausgedehnten Gebieten der Ozeane. In welchem Ausmaß der Eintrag von Mineralstaub in die Atmosphäre auch von menschlichen Aktivitä-

ten wie z. B. Wüstenbildung durch Überweidung und Winderosion von Äckern als Folge verschiedener Ackerbautechniken beeinflusst ist, kann derzeit noch nicht quantifiziert werden.

	NH	SH	Global	Spannbreite ¹
<i>Stickoxide</i>				
Fossile Brennstoffe	19,9	1,1	21,0	
Luftverkehr	0,43	0,03	0,46	
Biomassenverbrennung	3,3	3,1	6,4	
Böden	3,5	2,0	5,5	
Bearbeitete Böden			2,2	0 - 4
Unbearbeitete Böden			3,2	3 - 8
Blitze	4,4	2,6	7,0	2 - 12
<i>Ammoniak</i>				
Haustiere	17,5	4,1	21,6	
Ackerbau	11,5	1,1	12,6	
Anthropogen	2,34	0,31	2,6	
Biomassenverbrennung	3,5	2,2	5,7	
Fossile Brennstoffe und Industrie	0,29	0,01	0,3	
Unbearbeitete Böden	1,36	1,07	2,4	
Wildtiere	0,10	0,02	0,1	
Marine Biosphäre	3,65	4,50	8,2	
<i>Schwefeldioxid</i>				
Fossile Brennstoffe und Industrie	68	8	76	
Luftverkehr (1992)	0,04	0,003	0,04	
Biomassenverbrennung	1,2	1,0	2,2	
Vulkane	6,3	3,0	9,3	
<i>DMS und H₂S</i>				
Marine Biosphäre	11	13	24	
Terrestrische Biosphäre	0,6	0,4	1,0	0,4 - 5,6
<i>Flüchtige organische Substanzen VOC</i>				
Anthropogen			109	
Terpene (Vegetation)	67	60	127	

Tab. 25-1a: Quellstärke verschiedener Aerosolvorläufersubstanzen in Tg N, S bzw. C pro Jahr (1 Tg = 1 Teragramm = 10¹² g) (IPCC 2001).

	NH	SH	Global	Spannbreite ¹
<i>Organisches Material (0-2 µm)</i>				
Biomassenverbrennung	28,3	26,0	54,3	45 - 80
Fossile Brennstoffe	28,4	0,4	28,8	10 - 30
<i>Ruß (0-2 µm)</i>				
Biomassenverbrennung	2,9	2,7	5,6	5 - 9
Fossile Brennstoffe	6,5	0,1	6,6	6 - 8
Luftverkehr	0,005	0,0004	0,006	
Industriestäube			100	
Biogen (0-2 µm)			50	10 - 100
<i>Seesalz</i>				
d < 1 µm	23	31	54	18 - 100
d = 1-16 µm	1420	1870	3290	1000 - 6000
Total	1440	1900	3340	1000 - 6000
<i>Mineralstaub</i>				
< 1 µm	90	17	107	
1-2 µm	240	50	290	
2-20 µm	1470	280	1750	
Total	1800	350	2150	1000 - 3000

Tab. 25-1b: Emission von Primärpartikeln in Tg pro Jahr (IPCC 2001).

¹ Die Spannbreite gibt nur die in der Literatur vorgefundenen Zahlen wieder, stellt aber keine Abschätzung der Unsicherheiten dar.

Modellrechnungen zeigen, dass von den emittierten gasförmigen Schwefelspezies 47 % (Mittelwert 11 verschiedener Modelle) in Sulfat umgewandelt werden und damit zur Partikelbildung oder der Anlagerung an vorhandene Partikel zur Verfügung stehen. Die Ausbeute an Nitrat von Stickoxiden (NO_x) beträgt 45 %, die von VOCs nur 7 % (IPCC 2001). Damit tragen Sekundärpartikel in weitaus geringerem Ausmaß als Primärpartikel zum atmosphärischen Aerosolgehalt bei. Da die Masse der Primärpartikel von Mineralstaub und Seesalz dominiert wird, übertrifft die aus natürlichen Quellen stammende Partikelmasse bei weitem die von anthropogenen Quellen freigesetzte. Trotzdem üben Sulfat- und Rußpartikel aufgrund ihrer Fähigkeit, sehr effizient Strahlung zu streuen, oder wie im Falle von Ruß auch zu absorbieren, einen größeren Einfluss auf die optischen Eigenschaften des Aerosols aus. Grund dafür ist vor allem die unterschiedliche Größenverteilung. So liegt die Hauptmasse der Sulfat- und Rußteilchen im Akkumulationsmode, die Staub- und Seesalzteilchen aber im Grobmode vor. Die in Tab. 25-1 angegebenen Abschätzungen der natürlichen Quellen sind mit großen Unsicherheiten behaftet. Quellen aus Biomassenverbrennung sowie der Eintrag von Mineralstaub weisen zudem eine große interannuelle Variabilität auf.

4 Senken

Aerosol wird durch Trocken- und Nassdeposition aus der Atmosphäre entfernt. Die beiden Prozesse bestimmen also die atmosphärische Verweildauer der einzelnen Aerosol- und Aerosolvorläufer-Spezies und damit den Aerosolgehalt der Atmosphäre. Als Trockendeposition bezeichnet man die Ablagerung von Gasen und Partikeln an der Erdoberfläche und die Aufnahme durch Vegetation. Reaktive Gase reagieren an der Oberfläche oder gehen in Lösung an Wasseroberflächen oder in einer dünnen Wasserhaut, wenn der Boden oder die Pflanzen mit Wasser benetzt sind. Die Deposition von löslichen Gasen ist an Wasseroberflächen sehr effizient, wenn die gelöste Substanz wie z. B. SO₂ in der Flüssigphase dissoziiert und durch chemische Reaktionen abgebaut wird. Die Depositionsrate

hängt auch vom Säuregehalt des Bodens ab und davon, ob die betreffende Substanz im Boden mikrobiell abgebaut wird. Gase können auch durch die Spaltöffnung von Pflanzen aufgenommen oder an der Blattoberfläche abgelagert werden. Die Effizienz dieses Prozesses hängt davon ab, ob die Pflanze die betreffende Substanz abbaut und damit einen Gradienten zwischen Atmosphäre und dem Inneren der Pflanze aufrechterhält. Neben der Bodenbeschaffenheit bestimmt der Transport zur Rezeptorfläche durch turbulenten Austausch und durch molekulare Diffusion in der laminaren Grenzschicht die Effizienz der Deposition. Die Deposition von Partikeln ist neben turbulentem Austausch stark von der Mikrostruktur der Rezeptoroberfläche und der Größe der Partikel beeinflusst. Abb. 25-1 zeigt die Abhängigkeit der Trockendepositionsgeschwindigkeit von dem Partikelradius. Der Prozess der Brown'schen Diffusion dominiert die Deposition von Partikeln mit einem Radius kleiner als 0,1 µm, Teilchen größer als 1 µm werden durch Impaktion an Elementen der Oberflächen abgeschieden und unterliegen aufgrund der Schwerkraft der Sedimentation.

Die Nassdeposition stellt den Prozess der Aufnahme von Gasen und Partikeln in Wolkentröpfchen und die nachfolgende Entfernung durch Niederschlagsprozesse dar. Wir unterscheiden zwei Prozesse: 1. „in-cloud scavenging“ ist die Inkorporierung von Gasen oder Partikeln in Wolkentröpfchen und 2. „below-cloud scavenging“ ist die Aufnahme von Gasen oder Aerosolen bzw. der Einfang von Wolkentröpfchen, die chemische Beimengungen inkorporiert haben, durch fallende Hydrometeore. Erreichen die Hydrometeore den Erdboden, sind die inkorporierten Substanzen endgültig aus der Atmosphäre entfernt, verdunsten sie vorher, werden die Substanzen wieder freigesetzt. Da ein großer Teil des Niederschlags verdunstet, führt dieser Prozess zu einem raschen Abwärtstransport und einer Anreicherung der freigesetzten Substanzen in den darunter liegenden Schichten. Lösliche Gase wie SO₂ werden in Wolken- oder Regentropfen entsprechend dem Henry'schen Gesetz gelöst. Das Gesetz von Henry gibt an, wie viel der Substanz sich im Gleichgewicht in der Gasphase befindet und wie viel in der Flüssigphase. Die Einstellzeit, bis ein solches Gleichgewicht erreicht ist, ist für kleine Tröpfchen sehr kurz, für Regentropfen hingegen so lang, dass man nicht vom Erreichen des Gleichgewichts ausgehen kann (WARNECK 1988). Gefrorene Wolkentröpfchen und Schnee inkorporieren Gase nur, wenn sich die Temperatur in der Nähe des Gefrierpunktes befindet und der Hydrometeor mit einer dünnen Wasserschicht überzogen ist.

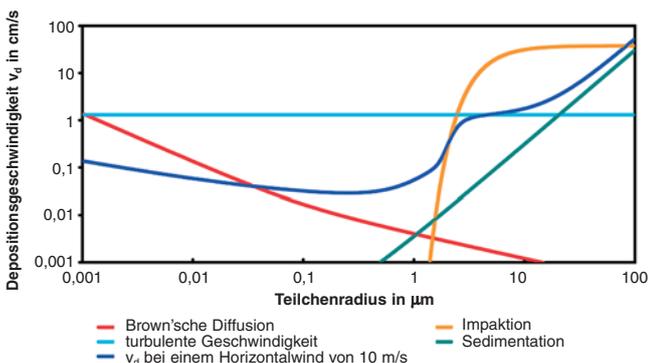


Abb. 25-1: Depositionsgeschwindigkeit verschiedener Senkenprozesse in Abhängigkeit von der Partikelgröße.

Aerosolpartikel dienen als Wolkenskondensationskerne und besonders Partikel mit einem Radius größer als 0,2 µm werden daher sehr wirksam in Wolkentröpfchen aufgenommen. Da größere Partikel mehr zur Aerosolmasse beitragen als die kleineren, werden etwa 80-99 % der Aerosolmasse in einer Wolke inkorporiert.

riert, aber nur 10-90 % der Aerosolpartikel (FLOßMANN, pers. Mitt.). Nicht in Wolkentropfen aufgenommene Teilchen werden als „interstitielles Aerosol“ bezeichnet. Diese Partikel können von Wolkentropfen durch Impaktion eingefangen werden. Dieser Prozess ist allerdings nicht besonders effizient. Unterhalb der Wolkenbasis hingegen ist es der einzige Mechanismus, der Aerosolpartikel aus der Atmosphäre entfernt (below-cloud scavenging). TANNER et al. (1997) berichten basierend auf Messungen im Südwesten von China, dass über Gebieten mit starken Schwefelquellen etwa 70 % des Sulfats im Niederschlag durch Impaktion unterhalb der Wolke aufgenommen wurde.

Eine einfache Methode, den Prozess der Trockendeposition in Modellen zu beschreiben, ist die Annahme einer Depositionsgeschwindigkeit, deren Größe vom Partikeltyp und der Beschaffenheit der Rezeptorfläche abhängt und die durch Messungen bestimmt wird. Der Fluss zum Boden hin ist damit

$$F_d = V_d \rho_{\text{air}} m,$$

wobei ρ_{air} die Luftdichte und m das Massenmischungsverhältnis des untersten Modellniveaus sind. Eine realistischere Beschreibung des Depositionsprozesses geben die so genannten „resistance Ansätze“ wieder, die analog zum Ohm'schen Gesetz der Elektrizität den Depositionsfluss als die Summe dreier reziproker Widerstände, den turbulenten, den laminaren und den durch die Bodenbeschaffenheit gegebenen, beschreiben (WESELY 1989; GANZEVELD et al. 1998). Das Auswaschen von Partikeln durch Wolkenbildung und Niederschlag wird entsprechend dem Grad der Komplexität der wolkenphysikalischen Prozesse beschrieben und variiert daher von Modell zu Modell. Der einfachste Ansatz schreibt eine höhenabhängige Auswaschrate vor, der komplexeste berücksichtigt die Aktivierung der Partikel zu Wolkenkondensationskernen sowie die wolkenmikrophysikalischen Prozesse (GHAN et al. 1993; LOHMANN et al. 2000). Vergleiche von Modellen, die den atmosphärischen Schwefelkreislauf simulieren, zeigen, dass Unterschiede bei der Parameterisierung der Auswaschprozesse derzeit den größten Unsicherheitsfaktor bei der Berechnung des Sulfatgehalts darstellen. Berechnete Sulfatgehalte der Atmosphäre variieren um einen Faktor 2 bis 3 (RASCH et al. 2000; ROELOFS et al. 2001). Da Sulfat zu den am besten untersuchten Spezies gehört, dürften Abschätzungen anderer Spezies mit noch größeren Unsicherheiten behaftet sein.

5 Klima- und umweltrelevante Auswirkungen des Aerosols

5.1 Direkter und semi-direkter Effekt

Solare Strahlung mit Wellenlängen zwischen 0,3 bis 3 μm wird beim Eindringen in die Atmosphäre an den

Aerosolpartikeln gestreut und absorbiert. Im terrestrisch-infraroten Spektralbereich ($> 3 \mu\text{m}$) können die Streuvorgänge an Aerosolpartikeln, da die Abmessungen der Partikel klein gegenüber der Wellenlänge sind, vernachlässigt werden. In diesem Spektralbereich spielen die Absorption und die daraus resultierende thermische Emission allein eine maßgebliche Rolle. Diesen Einfluss der Aerosole auf die Strahlungsflüsse bezeichnet man als den direkten Effekt. Klimateffekte des Aerosols werden häufig als Strahlungsantrieb angegeben; das ist die Änderung der kurz- und langwelligen Strahlungsflüsse an der Obergrenze der Troposphäre oder am Atmosphärenoberrand aufgrund des Aerosoleinflusses bei sonst unveränderter Meteorologie. Der Strahlungsantrieb kann berechnet werden, wenn die raum-zeitliche Verteilung, Größenverteilung und Zusammensetzung des Aerosols bekannt sind. Abschätzungen der Klimateffekte des Aerosols erfordern eine Berücksichtigung aller Rückkoppelungsprozesse und können nur mit gekoppelten Modellen, die die Komponenten Atmosphäre, Ozean, See-Eis und Aerosolchemie und -physik beschreiben, durchgeführt werden.

Zur Abschätzung des Aerosoleinflusses auf das Strahlungsfeld bedarf es der Kenntnis folgender Parameter: Streueffizienz, Einfachstreueralbedo und Asymmetrieparameter und deren Abhängigkeit von der Wellenlänge, sowie Partikelwachstum in Abhängigkeit von der Umgebungsfeuchte. Diese Parameter können, sofern die chemische Zusammensetzung und die Größenverteilung der Aerosolpartikel bekannt ist, mittels Mie-Streuungsberechnungen abgeleitet werden. Da diese Mie-Rechnungen sehr rechenzeitaufwendig sind, können die optischen Eigenschaften nicht innerhalb eines globalen Modells berechnet werden, sondern müssen vorberechnet und tabelliert oder durch Näherungslösungen approximiert werden.

Abschätzungen des globalen direkten Aerosolstrahlungsantriebs beruhen bisher nur auf Modellberechnungen, die die raum-zeitliche Verteilung der Massen verschiedener Aerosolkomponenten simulieren. Intensive Eigenschaften des Aerosols wie Größenverteilung und optische Eigenschaften werden für jede Aerosolkomponente als konstant vorgegeben. Eine Übersicht des mittleren globalen Strahlungsantriebs durch verschiedene Aerosolkomponenten, wie sie von einer Reihe von globalen Modellen berechnet wurde, findet sich in Tab. 25-2. Die Werte für Ruß in Tab. 25-2 beinhalten sowohl den Strahlungsantrieb von elementarem Kohlenstoff (BC) als auch den von als Primärpartikeln freigesetztem organischen Kohlenstoff. BC ist ein sehr effizienter Absorber von kurzwelliger Strahlung und kompensiert teilweise den abkühlenden Effekt von streuendem Aerosol. Globale Mittelwerte stellen allerdings kein sehr aussagekräftiges Maß für den Aerosoleffekt dar, da aufgrund der verschiedenen Verteilungen der Aerosolkomponenten lokal meist keine Kompensation eintritt, sondern sich ein komple-

Referenz	Aerosolkomponente	W/m ²
IPCC 2001	Sulfat anthropogen	-0,3 bis -0,4
IPCC 2001	Ruß von fossilen Brennstoffen	+0,1 bis +0,4
IPCC 2001	Ruß von Biomassenverbrennung	-0,2
FEICHTER et al. 1997	Sulfat natürlich	-0,2
TEGEN u. LACIS 1996	Mineralstaub	-0,6 bis +0,4
WINTER u. CHYLEK 1997	Seesalz	-2,0

Tab. 25-2: Summe des kurz- und langwelligen mittleren globalen Strahlungsantriebs aufgrund verschiedener Aerosolkomponenten.

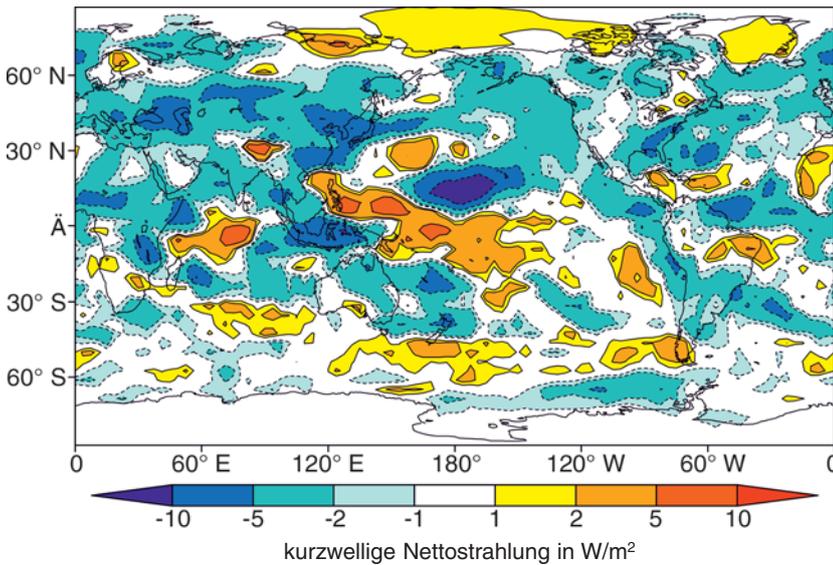


Abb. 25-2: Anomalie der kurzwelligen Nettostrahlung an der Obergrenze der Atmosphäre aufgrund des direkten, semi-direkten und indirekten anthropogenen Aerosoleffekts in W/m² (nach: LOHMANN und FEICHTER 2001).

xes räumliches Muster von erwärmenden und abkühlenden Effekten zeigt (siehe Abb. 25-2). ALLNER (2000) schätzte basierend auf der Aerosolklimatologie von KÖPKE et al. (1997) den globalen Strahlungsantrieb des natürlichen und anthropogenen Aerosols auf $-4,7 \text{ W/m}^2$.

Sulfataerosole absorbieren kaum im sichtbaren Spektralbereich, so dass Streuvorgänge an ihnen dominieren. Diese Reflektion von Solarstrahlung bedeutet eine Abkühlung des Systems Erde-Atmosphäre. Dahingegen führt die Absorption von Solarstrahlung durch Rußaerosole zu einer Erwärmung der Atmosphäre. Dies kann die Stabilität der Atmosphäre erhöhen, aber auch gleichzeitig zu Wolkenauflösung führen. Vermehrte Belege für letzteren Effekt, der als semi-direkter Effekt bezeichnet wird, sind im **Indian Ocean Experiment (INDOEX)** gefunden worden. Erste Abschätzungen des semi-direkten Effekts mit einem Klimamodell ergeben im globalen Mittel ein geringes Forcing; in stark verschmutzten Gebieten können im Jahresmittel aber Werte von mehr als 10 W/m^2 erreicht werden. Berechnungen des direkten und semi-direkten Effekts zusammen ergaben, dass der Nettoeffekt auf die Solarstrahlung am Atmosphärenoberrand durch die sich kompensierenden Effekte von Sulfat- und

Rußaerosolen nur $-0,1 \text{ W/m}^2$ ausmacht. An der Erdoberfläche jedoch beträgt der Effekt $-1,2 \text{ W/m}^2$ (LOHMANN und FEICHTER 2001). Da die Absorption von Ruß in Wolkentropfen nicht hinreichend bekannt ist, wurde in dieser Studie angenommen, dass aller Ruß sich zwischen den Wolkentropfen befindet.

5.2 Auswirkungen auf Wasserwolken

Aerosolpartikel können als Wolkenkondensationskerne (CCN) aktiviert werden und beeinflussen damit die Wolkentropfenanzahl in dem Sinne, dass man, sofern sich der Flüssigwassergehalt der Wolke nicht ändert, bei einem größeren Angebot an CCN mehr, dafür aber kleinere Wolkentropfen erwartet. Eine Zunahme der Wolkentropfenanzahl zusammen mit einer Verkleinerung des Tropfenradius vergrößert die gesamte Tropfenoberfläche und führt damit zur Zunahme der Wolkenalbedo (Twomey- oder Albedoeffekt oder 1. indirekter Effekt) und zu einer Abnahme der Niederschlagseffizienz (Lebensdauereffekt oder 2. indirekter Effekt); das bedeutet, die Wolke lebt länger und der Flüssigwassergehalt der Atmosphäre nimmt zu. Beide Effekte führen zu einer vermehrten Rückstreuung von Sonnenstrahlung und damit zu Abkühlung. Die Dynamik

der Atmosphäre und damit verbunden der Transport von Wasserdampf entscheidet darüber, wo und wann eine Wolke entsteht und wie groß der Wolkenwassergehalt ist, das Angebot an Aerosolpartikeln hingegen entscheidet über die Anzahl und Größe der Wolkentropfen (TWOMEY 1977) und beeinflusst die mikrophysikalischen und optischen Eigenschaften und damit die Lebensdauer von Wolken.

Die ersten Beobachtungen des indirekten Effekts wurden in Ablufftfahrten von Schiffen in Gebieten mit persistentem Stratus oder Stratocumulus vor der Ostküste Nordamerikas gemacht (z. B. DURKEE et al. 2000). Die Partikelemissionen der Schiffe führen zu erhöhter Wolkentropfenanzahl mit gleichzeitig kleinerem effektiven Wolkentropfenradius. Da die Tropfen kleiner sind, ist der Koagulationsprozess so stark verlangsamt, dass keine Tropfen bis zur Größe von Nieseltropfen wachsen. Somit wird der Niederschlag reduziert und der Flüssigwassergehalt in der Wolke erhöht. Ein ähnliches Ergebnis wurde in verschiedenen Feldexperimenten gefunden. In Abb. 25-3 sind exemplarisch Flugzeugmessungen, die während kanadischer Feldexperimente aufgenommen wurden, dargestellt (PENG et al. 2001). Die Messdaten wurden anhand ihrer Aerosolanzahlkonzentrationen (N_a) in saubere

Wolken ($N_a < 300 \text{ cm}^{-3}$) und verschmutzte Wolken ($N_a > 300 \text{ cm}^{-3}$) eingeteilt. Bei gleichem Flüssigwasserweg (vertikal integrierter Flüssigwassergehalt) haben die verschmutzten Wolken mehr und kleinere Wolkenröpfchen als die sauberen Wolken und damit eine höhere optische Dicke, womit der Albedoeffekt der Aerosole belegt ist. Gleichzeitig zeigen die Beobachtungen (Abb. 25-3), dass die verschmutzten Wolken bei einer höheren Wolkenröpfchenkonzentration geringere Nieseltropfenkonzentrationen aufweisen. Somit ist auch der Lebensdauereffekt der Wolken bestätigt.

In Modellen der atmosphärischen Zirkulation (AGCM) können beide indirekten Effekte berücksichtigt werden. In den ersten Abschätzungen dazu ist die Wolkenröpfchenkonzentration empirisch zur Masse der Sulfataerosole oder der Gesamtaerosolanzahl in Beziehung gesetzt worden (BOUCHER und LOHMANN 1995; JONES et al. 1994). BOUCHER und LOHMANN (1995) stellten dazu Messungen von SO_4 , CCN und Wolkenröpfchenkonzentrationen (N), die unter verschiedenen kontinentalen und maritimen Bedingungen in sauberen und verschmutzten Luftmassen durchgeführt wurden, zusammen. Die Anpassung an die Daten ergab folgende empirische Gleichung:

$$\begin{aligned} \log N^{mar} &= 2,06 + 0,48 \cdot \log(\text{SO}_4) \\ \log N^{kont} &= 2,48 + 0,257 \cdot \log(\text{SO}_4) \end{aligned} \quad (1)$$

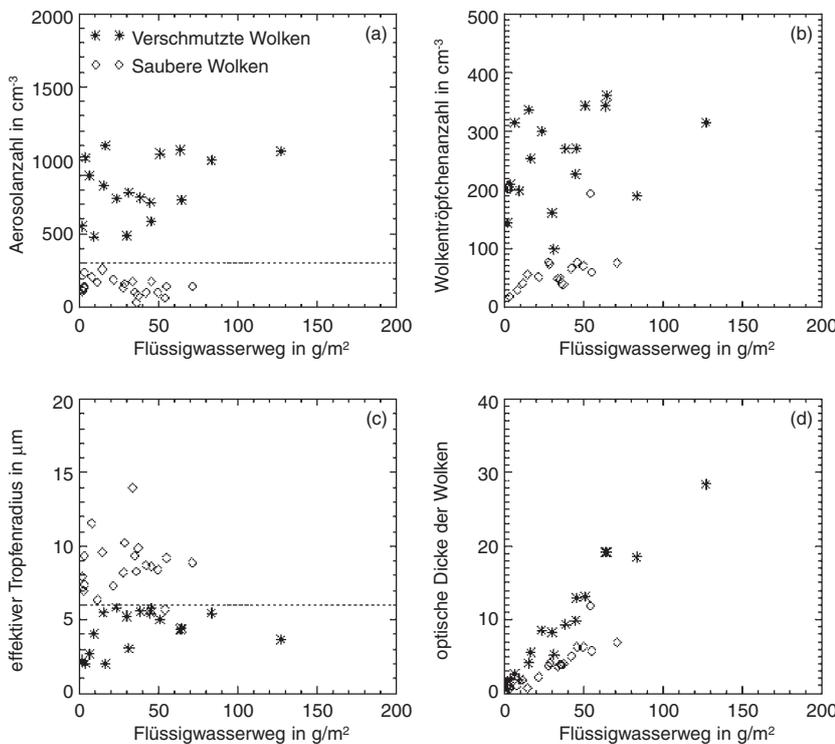


Abb. 25-3: Aerosolanzahl, Wolkenröpfchenanzahl, effektiver Tropfenradius und wolkenoptische Dicke aufgetragen gegen die vertikale Säule von Flüssigwasser basierend auf Flugzeugmessungen während der RACE- und FIRE.ACE-Kampagne (PENG et al. 2001).

Neuere Ansätze parameterisieren die Aktivierung von Aerosolpartikeln, der die Köhlergleichung zu Grunde liegt, und schätzen darüber die Wolkenröpfchenkonzentration ab (CHUANG und PENNER 1995; LOHMANN et al. 2000). Der Vorteil dieses Ansatzes ist, dass mehrere Aerosolkomponenten, wie Sulfat, Seesalz, kohlenstoffhaltige Aerosole und Staub als CCN berücksichtigt werden können. Außerdem geht die Vertikalgeschwindigkeit explizit in die Parameterisierung ein. Sie bestimmt darüber, wie hohe Übersättigungen in der Wolke erreicht werden, und damit wie viele Aerosole aktiviert werden können.

Der Wolkenalbedoeffekt wird darüber berechnet, dass die optische Dicke der Wolken (τ) eine Funktion des vertikal integrierten Flüssigwassergehalts der Wolke (LWP) und des effektiven Wolkenröpfchenradius (r_e) ist:

$$\tau = \frac{3}{2} \frac{LWP}{r_e} \quad (2)$$

Dieser Radius wiederum kann aus dem Flüssigwassergehalt der Wolke (q_l) und der Wolkenröpfchenanzahl berechnet werden:

$$r_e = 1,1 \cdot \sqrt[3]{\frac{\rho \cdot LWC}{4/3 \cdot \pi \cdot N \cdot \rho_l}} \quad (3)$$

Somit führt eine Erhöhung der Wolkenröpfchenanzahl bei gleich bleibendem oder steigendem Flüssigwassergehalt zu einer erhöhten optischen Dicke und Wolkenalbedo. Der Lebensdauereffekt wird über die Niederschlagsbildung (Q_{aut}), die in Abhängigkeit von Wolkenwassergehalt und Wolkenröpfchenanzahl parameterisiert wird, berücksichtigt. LOHMANN et al. (2000) beispielsweise benutzten zur Berechnung der Autokonversionsrate einen Ansatz von BEHENG (1994), der das Zusammenstoßen und das Zusammenfließen von Wolkenröpfchen und damit die Prozesse zur Bildung von Regentropfen beschreibt:

$$Q_{aut} \propto \frac{LWC^{4,7}}{N^{3,3}} \quad (4)$$

Sie trägt Beobachtungen Rechnung, die zeigen, dass maritime Wolken bei ähnlichem Flüssigwassergehalt wie kontinentale Wolken ein breiteres Tröpfchenspektrum bei geringerer Gesamttröpfchenanzahl aufweisen und daher eher Niesel- und Regenbildung zur Folge haben. Die Strahlungswirksamkeit dieser beiden Effekte zusammen wird, basierend auf Modellberechnungen, auf -1 bis -2 W/m^2 geschätzt.

Schwächen dieser Annahmen liegen in der Umrechnung von Aerosolmasse, die im Klimamodell prognostiziert wird, in

Aerosolanzahl im Akkumulationsmode, also dem Größenbereich, in dem Aerosole aktiviert werden. Solange nur Aerosolmassen in Klimamodellen zur Verfügung stehen, sind Annahmen über die Aerosolverteilung notwendig. Dabei wird entweder angenommen, dass jedes Aerosolpartikel nur aus einer chemischen Substanz besteht (externe Aerosolmischung) oder aber, dass alle Aerosolpartikel aus mehreren Komponenten bestehen und durch einen einheitlichen Radius gekennzeichnet sind (interne Aerosolmischung). Beide Annahmen sind starke Vereinfachungen, da in der Natur sowohl extern als auch intern gemischte Aerosole gefunden werden. Dieses Problem kann in Zukunft dadurch behoben werden, dass Aerosolmasse, Aerosolanzahl und Mischungszustand in den verschiedenen Moden prognostiziert werden. Erste Ansätze werden derzeit in Klima- und Regionalmodellen getestet (GHAN et al. 2001; VON SALZEN et al. 2000; WILSON et al. 2001).

5.3 Auswirkungen auf Eiswolken

Aerosole fungieren auch als Eiskeime und üben damit einen Einfluss auf die Bildung und Albedo von Eiswolken aus. Während die wasserlöslichen oder hygroscopischen Aerosole als CCN dienen, sind Eiskeime meist wasserunlöslich. Typische natürlich vorkommende Eiskeime in der Atmosphäre sind Staubteilchen, entweder Mineralstaub, der von den Wüsten in die Atmosphäre emittiert wird, oder Vulkanstaub und Meteoritenstaub. Die Analyse von Kondensstreifen hat ergeben, dass Ruße und Schwermetalle auch als Eiskeime dienen. Hier wurde von SCHRÖDER et al. (2000) gefunden, dass die Eisteilchen in Kondensstreifen kleiner sind als in natürlichem Zirrus, also der gleiche Effekt wie bei Wasserwolken auftritt. Ein wesentlicher Unterschied zwischen Eiskeimen und CCN ist, dass es überall in der Atmosphäre genügend CCN gibt, so dass die maximale Übersättigung in der Wolke nur 1-2 % beträgt. Eiskeime hingegen sind so rar, dass Übersättigungen über Eis leicht 130-140 % betragen können (HEYMSFIELD et al. 1998; SCHUMANN et al. 1999).

BOUCHER (1999) analysierte Wolkenbeobachtungen hinsichtlich der Häufigkeit des Auftretens von Zirruswolken in Verbindung mit dem Treibstoffverbrauch von Flugzeugen. Er fand, dass in den Flugkorridoren die Zirrusbewölkung 1985-1989 gegenüber 1980-1984 zugenommen hat. Von der wolkenmikrophysikalischen Seite her zeigten STRÖM und OHLSSON (1998), dass erhöhte Eiskristallkonzentrationen in Zirruswolken auf absorbierende Aerosolpartikel in den Abgasfahnen von Flugzeugen zurückgeführt werden können. Weitere Einzelheiten dazu können Kapitel 28 im nächsten Heft entnommen werden.

Unterhalb von $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$ friert unterkühltes Wasser spontan und homogen, d. h. ohne Hilfe von Eiskeimen. In

diesem Temperaturbereich kommt den Salzen eine besondere Bedeutung zu. Ebenso wie Salze im Winter auf die Straßen gestreut werden, um durch ihren niedrigeren Gefrierpunkt Schnee zu schmelzen oder Eisbildung zu verhindern, so sind Salze wie Schwefelsäure in der Atmosphäre dafür verantwortlich, dass das homogene Gefrieren von Wolkentröpfchen bei niedrigeren Temperaturen stattfindet (z. B. JENSEN et al. 1998; CHEN et al. 2000). Somit beeinflussen anthropogene Schwefelemissionen nicht nur Wasserwolken, sondern auch Eiswolken.

Im Unterschied zu Wasserwolken wurden die anthropogenen Auswirkungen auf Eiswolken noch nicht quantifiziert. Zum einen sind die Messungen von Eiskeimen aufgrund ihrer Nichtsphärizität wesentlich schwieriger. Zum anderen gibt es vier Moden der heterogenen Eiskristallbildung (Depositionswachstum, Kontaktgefrieren, Kondensationsgefrieren und Immersionsgefrieren, das Gefrieren von Wolkentröpfchen, nachdem ein Eiskeim in den Tropfen diffundiert), die im Labor und in der Atmosphäre nur schwer separiert betrachtet werden können. Weiterhin zerbrechen größere Eiskristalle und ihre Splitter dienen als neue Eiskeime. All diese Komplikationen erschweren sowohl unser Verständnis der Prozesse als auch deren Erfassung im Klimamodell. Erste Abschätzungen darüber, wie sensitiv Eiswolken gegenüber Annahmen über die chemische Komposition von Kontakt-Eiskeimen sind, wurden von LOHMANN (2002) durchgeführt. Sie fand, dass der Eiswasserweg größer ist, wenn angenommen wird, dass alle Kontakt-Eiskeime aus wasserunlöslichem Ruß und organischen Verbindungen bestehen, als wenn Staub als alleiniger Kontakt-Eiskeim angenommen wird.

6 Ergebnisse von Klimasimulationen

Um die Frage zu beantworten, ob der Mensch das Klima beeinflussen kann und ob beobachtete Änderungen im Wettergeschehen seit Beginn der industriellen Revolution im 19. Jahrhundert auf Aktivitäten des Menschen zurückgeführt werden können, werden Klimasimulationen mit gekoppelten Atmosphären-Ozean Modellen durchgeführt. Diese Untersuchungen gingen bisher vor allem der Frage des Einflusses eines Anstiegs von CO_2 und der anderen Treibhausgase nach. Nur wenige Simulationen berücksichtigten bislang den Klimaeffekt einer anthropogenen Zunahme von Partikeln in der Atmosphäre, obwohl die Tatsache, dass die prognostizierte Temperaturzunahme aufgrund des Anstiegs der Treibhausgase hinter der beobachteten zurückbleibt, einen solchen Effekt nahe legt. Bis dato vorliegende Modellexperimente beschränken sich darauf, nur den direkten und teilweise auch indirekten Effekt (nur Twomey-Effekt) von Sulfatpartikeln zu untersuchen (ROECKNER et al. 1999; BOER et al. 2000). In den meisten Experimenten wurden der zeitabhängige atmosphärische Sulfatgehalt aufgrund an-

thropogener Emissionen mit Chemie-Transport-Modellen vorberechnet und als Strahlungsantrieb in das Klimamodell eingeführt; in einem Experiment wurde das Klimamodell mit einem Chemie- und Aerosolmodell gekoppelt und die Sulfatverteilung interaktiv berechnet (ROECKNER et al. 1999).

Ergebnisse in Abb. 25-4 zeigen eine Dämpfung des anthropogenen Treibhausgaseffektes aufgrund der Abkühlung durch das Aerosol. Geringere Erwärmung findet man vor allem über den Kontinenten der nördlichen Hemisphäre und in der Arktis. Während die Treibhausgase die Atmosphäre erwärmen, führt der Einfluss von Sulfataerosolen vor allem zu einer Abkühlung des Erdbodens. Diese Abkühlung durch das Aerosol reduziert die Verdunstung und den Niederschlag, dämpft damit den hydrologischen Zyklus und beeinflusst die Verteilung des wichtigsten Treibhausgases, Wasserdampf. Abschätzungen des gesamten Aerosoleffektes liegen, gemittelt über Ergebnisse verschiedener Klimamodelle, bei $-1,5 \text{ W/m}^2$ (ANDERSON et al 2003). Einen niedrigeren Aerosoleffekt von nur $-1,0 \text{ W/m}^2$ erhalten die Autoren, wenn sie die sogenannte „inverse“ Methode anwenden. Dabei berech-

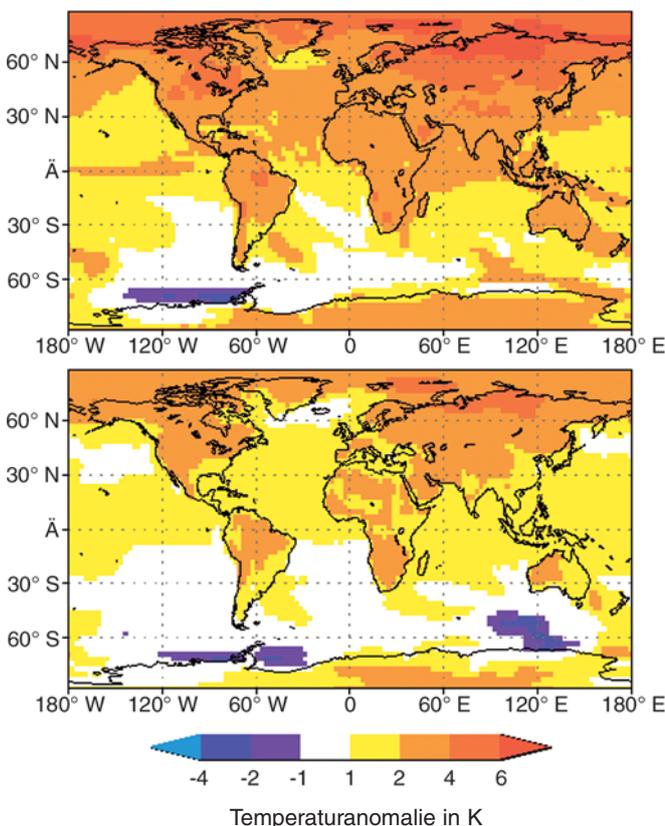


Abb. 25-4: Temperaturanomalien aufgrund der Zunahme von Treibhausgasen (obere Abbildung) und aufgrund der Zunahme von Treibhausgasen und Aerosolen (untere Abbildung). Die Anomalien repräsentieren die Differenz der Dekadenmittel (2030-2050)-(1980-1990). Emissionen und Treibhausgaskonzentrationen der Jahre 2030-2050 basieren auf Abschätzungen des IPCC (Szenario IS-92a), nach ROECKNER et al. 1999).

net man den Aerosoleffekt aus der Differenz zwischen der tatsächlich seit Beginn der Industrialisierung beobachteten Temperaturänderung und leitet unter Annahme einer mittleren Klimamasensitivität das Gesamtforcing ab. Die Differenz zwischen dem Gesamtforcing und dem relativ gut bekannten Treibhausgasforcing ergibt das Aerosolforcing.

6.1 Weitere Auswirkungen aerosolbedingter Änderungen des Strahlungsflusses

Auswirkungen auf die Sichtweite

Die Sichtweite, definiert als die maximale Entfernung, bei der ein großer, schwarzer Gegenstand am Horizont gegen den Himmel noch beobachtet werden kann, wird durch die Absorption von Licht durch Gase und durch Absorption und Streuung an Partikeln reduziert. Die Sichtweite kann von maximal 300 km in Reinluftgebieten bis zu einigen Kilometern und weniger in verschmutztem Gebiet variieren. Streuung an Partikeln, deren Durchmesser in der Größenordnung der Wellenlänge des sichtbaren Lichts liegen, tragen zwischen 50-95 % zur Sichtweitenreduzierung bei (SEINFELD und PANDIS 1998). Messungen in Denver, USA, ergaben, dass Absorption durch Ruß und Streuung an Ammoniumsulfat den stärksten Beitrag zur Reduzierung der Sichtweite leisten.

Auswirkungen auf luftchemische Prozesse

Die Anwesenheit von Aerosolpartikeln ändert den aktinischen Fluss und damit die Photolyse- und photochemischen Reaktionsraten. Sensitivitätsstudien zeigen, dass Photolyseraten mit einer Genauigkeit von 10 % berechnet werden sollten, um sinnvoll in Chemiemodellen angewandt zu werden. Um diese Genauigkeit zu erreichen, müssen Streuung und Absorption durch Aerosolpartikel berücksichtigt werden.

JACOBSON (1998) untersuchte mittels eines dreidimensionalen Chemie-Transportmodells den Einfluss von Aerosolen auf die Photolyseraten während Smogepisoden in Los Angeles. Er fand eine Abnahme der Photolyseraten von Gasen, die im ultravioletten Spektralbereich absorbieren, wenn absorbierendes Aerosol dominierte, und eine Zunahme, wenn streuendes Aerosol überwog. Da in dem untersuchten Gebiet absorbierende Aerosole überwiegen, resultiert die Berücksichtigung von Aerosolen bei der Berechnung der Photolyseraten in einer Abnahme von Ozon in der Grenzschicht um 5-8 %. Eine Reduktion der SO_2 -Emissionen und damit der Menge streuender Aerosole könnte also zu einer Abnahme des photochemischen Smogs beitragen (DICKERSON et al. 1997).

Auswirkungen auf das Ökosystem

Das Resultat der Reinigung der Atmosphäre von Schwefel- und Stickstoffkomponenten durch Niederschlag ist der so genannte „saure Regen“. Regenwasser sollte ohne anthropogene Emissionen aufgrund des

atmosphärischen Kohlendioxidgehalts und der natürlicherweise in der Luft enthaltenen Spurenstoffe einen Säuregehalt (*pH*-Wert) von mehr als 5 haben (GALLOWAY et al. 1982). Tatsächlich misst man *pH*-Werte des Regenwassers, die im Mittel zwischen 4 und 5 liegen und in belasteten Gebieten auch 3 unterschreiten können (WARNECK 1988). Die wichtigsten Ionen, die man in Wolken- und Regenwasser beobachtet, sind die Anionen: Sulfat (SO_4^{2-}), Chlorid (Cl^-) und Nitrat (NO_3^-) und die Kationen: Natrium (Na^+), Kalium (K^+), Magnesium (Mg^{2+}), Calcium (Ca^{2+}) und Ammonium (NH_4^+). Die Übersäuerung in belasteten Regionen ist überwiegend auf den Gehalt an Sulfat und Nitrat zurückzuführen. Zuerst war in den skandinavischen Ländern als Folge dieser sauren Niederschläge Fischsterben in den Seen beobachtet worden. Gewässer können in ihrem *pH*-Wert verändert werden und dadurch versauern. Während der Wintermonate, der Zeit der höchsten Schwefeldioxid-Konzentrationen, können sich die sauren Schwefelverbindungen in der Schneedecke ansammeln und mit der Schneeschmelze zu einem plötzlichen sehr starken Versauern der Gewässer führen. Die Folge ist ein Absterben säureempfindlicher Mikroorganismen und biologische Verarmung (PSENNER 1994). Eine weitere Folge der Versauerung ist eine Freisetzung von Schwermetallen aus den Sedimenten der Gewässer (z. B. Aluminium). Diese Säurebelastung kann in pufferarmen Böden zur Vergiftung von Organismen führen. Deposition von Schwefel an Pflanzen schädigt das Assimilationsgewebe und führt zu einer Abnahme des Wachstums und zu einer Erhöhung der Schadanfälligkeit. Es gibt Anzeichen dafür, dass durch die zunehmende Versauerung Verwitterungsprozesse beschleunigt werden (APRIL et al. 1986), was wiederum das Auswaschen von Schwefel begünstigen kann.

7 Ausblick

Das Interesse, die Rolle von Aerosolpartikeln im Klimasystem zu untersuchen, hat in der vergangenen Dekade stark zugenommen. Trotzdem ist die Simulation von Partikeln in Atmosphärenmodellen noch nicht sehr realitätsnah. Die meisten Studien befassen sich nur mit dem abkühlenden Einfluss von Sulfat und negieren die Rolle von absorbierenden Aerosolen wie Ruß und Mineralstaub (letzterer hat nur über hellen Flächen einen erwärmenden Effekt). Die Rolle von sekundären organischen Partikeln ist noch weitgehend unverstanden. Quellstärke und -verteilung von Partikeln aus Biomassenverbrennung sind nur unvollkommen, deren interannuelle Variabilität so gut wie gar nicht bekannt. Bisher wurden in Klimasimulationen nur die extensiven Eigenschaften von Partikeln (raumzeitliche Verteilung der Aerosolmasse) prognostiziert, nicht aber intensive wie Größenverteilung und Mischungsgrad. Letztere sind aber wichtig zur Ableitung der optischen Eigenschaften und bestimmen die

Untermenge der Partikel, die als Wolkenkondensationskerne dienen.

Neben den verschiedenen Rückkoppelungsprozessen zwischen Aerosol und Wolke könnten auch Wechselwirkungen zwischen Aerosol und Biosphäre klimarelevant sein. Die Partikelkonzentration in der Atmosphäre wird von der Biosphäre beeinflusst, der Partikeleintrag durch Deposition und Auswaschen beeinflusst wiederum die Biosphäre. So übt in Mineralstaub enthaltenes Eisen einen Düngeeffekt auf die marine Biosphäre aus. Eine Zunahme des Mineralstaubeintrags kann die biosphärische Aktivität im Ozean intensivieren und die Aufnahme von CO_2 aus der Atmosphäre in den Ozean sowie die Produktion der Schwefelspezies Dimethylsulfid (DMS) verstärken (MARTIN 1992). Eisbohrkerne zeigen eine Zunahme der Staubdeposition um einen Faktor 2-20 während des Übergangs von einer Eiszeit zu einer Warmzeit (MAHOWALD et al. 1999). Starkwinde am Rand der Eisschilde, Rückgang der Vegetation und durch Abnahme der Höhe des Meeresspiegels verursachtes Trockenfallen von Küstengebieten könnten den Eintrag von Staub in die Atmosphäre verstärkt haben. Staub über hellen Flächen oder auf dem Eis deponiert übt wiederum einen erwärmenden Effekt aus, während er über dunklen Flächen abkühlend wirkt.

Die Untersuchung dieser mannigfaltigen Zusammenhänge zwischen Aerosol, wolkenmikrophysikalischen Prozessen, hydrologischem Kreislauf, Biosphäre und biogeochemischen Kreisläufen erfordert Klimamodelle, die die Emissionen der verschiedenen Spezies, die Chemie der Vorläufersubstanzen, aerosol- und wolkenmikrophysikalische Prozesse simulieren. Solche Modelle werden derzeit an fast allen großen Klimaforschungszentren entwickelt und stellen in ihrer Multidisziplinarität in den kommenden Jahren eine neue Herausforderung für die Klimamodellierung dar. Ein weiterer erfolgsversprechender Ansatz, um zu realistischeren Abschätzungen der Klimawirksamkeit von Aerosol-Partikeln zu gelangen, ist die Integration von Satelliten- und Modelldaten (z.B. KNUTTI et al. 2002; LOHMANN and LESINS 2002).

Literatur

- ADAMS, P. J., J. H. SEINFELD, D. KOCH, 1999: Global concentrations of tropospheric sulfate, nitrate and ammonium aerosol simulated in a general circulation model. *J. Geophys. Res.* **104**(D11), 13,791-13,823.
- ALLNER, A. M., 2000: Die direkte Strahlungswirkung von Aerosolteilchen auf ein Klimamodell. Dissertation, *Fachbereich Geowissenschaften*, Universität Hamburg, 99 S.
- ANDERSON, T. L., R. J. CHARLSON, S. E. SCHWARTZ, R. KNUZZI, O. BOCHER, H. RODHE, J. HEINTZENBERG, 2003: Climate Forcing by Aerosols - a Hazy Picture. *Science* **300**, 5622, 1103-1104.
- APRIL, R., R. NEWTON, L. T. COLES, 1986: Chemical-weathering in 2 Adirondack watersheds - Past and present-day rates. *Geolog. Soc. America Bull.* **97** (10), 1232-1238.
- AITCHINSON, J., J. A. C. BROWN, 1957: The lognormal distribution function. *Cambridge University Press*, Cambridge, 176 S.
- BOER, G. J., G. FLATO, M. C. READER, D. RAMSDEN, D., 2000: A transient climate change simulation with greenhouse gas an aerosol forcing: experimental design and comparison with the instrumental record for the twentieth century. *Climate Dynamics* **16**, 405-425.
- BOUCHER, O., U. LOHMANN, 1995: The sulfate-CCN-cloud albedo effect, *Tellus* **47B**, 280-300.
- BOUCHER, O., 1999: Air traffic may increase cirrus cloudiness. *Nature* **397**, 30-31.
- CHARLSON, R. S., M. J. PILAT, 1969: Climate: The influence of aerosols. *J. Appl. Meteor.* **8**, 1001-1002.
- CHEN, Y., P. J. DEMOTT, S. M. KREIDENWEIS, D. C. ROGERS, D. E. SHERMAN, 2000: Ice formation by sulfate and sulfuric acid aerosol particles under upper tropospheric conditions. *J. Atmos. Sci.* **57**, 3752-3766.
- CHUANG, C. C., J. E. PENNER, 1995: Effects of anthropogenic sulfate on cloud drop nucleation and optical. *Tellus B*, **47**, 566-577.
- CHYLEK, P., J. A. COAKLEY, 1974: Aerosols and climate. *Science* **18**, 375-377.
- CLARK, W. E., K. T. WHITBY, 1967: Concentration and size distribution measurement of atmospheric aerosols and a test of the theory of self-preserving size distributions. *J. Atmosph. Sci.* **24**, 677-687.
- DICKERSON, R. R., S. KONDRAGUNTA, G. STENCHIKOV, K. L. CIVEROLO, B. G. DODDRIDGE, B. N. HOLBEN, 1997: The impact of aerosols on solar ultraviolet radiation and photochemical smog. *Science* **278**, 827-830.
- DURKEE, P. A., K. J. NOONE, R. T. BLUTH, 2000: The Monterey Area Ship Track Experiment. *J. Atmos. Sci.* **57**, 2523-2541.
- FEICHTER, J., E. KJELLSTRÖM, H. RODHE, F. DENTENER, J. LELIEVELD, G.-J. ROELOFS, 1997: Simulation of the tropospheric sulfur cycle in a global climate model, *Atmos. Env.* **30**, 1693-1707.
- GALLOWAY, J. N., G. E. LIKENS et al., 1982: The composition of precipitation in remote areas of the world. *J. Geophys. Res.* **87**, 8771-8786.
- GANZEVELD, L., L. LELIEVELD, G.-J. ROELOFS, 1998: A dry deposition parameterization for sulfur oxides in a chemistry and general circulation. *J. Geophys. Res.* **103**, 5,679-5,694.
- GHAN, S. J., C. C. CHUANG, J. PENNER, 1993: A Parameterization of Cloud Droplet Nucleation, Part I, Single Aerosol Type. *Atmos. Res* **30**, 197-221.
- GHAN, S. J., R. C. EASTER, E. CHAPMAN, H. ABDUL-RAZZAK, Y. ZHANG, R. LEUNG, N. LAULAINEN, R. SAYLOR, R. ZAVERI, R., 2001: A physically-based estimate of radiative forcing by anthropogenic sulfate. *J. Geophys. Res.* **106**, 5,279-5,293.
- GRABL, H., 1973: Aerosol influence on radiative cooling. *Tellus* **25**, 386-395.
- HEYMSFIELD, A. J., L. M. MILOSHEVICH, C. TWOHY, G. SACHSE, S. OLTMANS, 1998: Upper-tropospheric relative humidity observations and implications for cirrus ice nucleation. *Geophys. Res. Lett.* **25**, 1343-1346.
- IPCC, 2001: Climate Change – The Scientific Basis. Intergovernmental Panel on Climate Change. *Cambridge Univ. Press*, Cambridge, 944 S.
- JACOBSON, M. Z., 1998: Studying the effects of aerosols on vertical photolysis rate coefficient and temperature profiles over an urban airshed. *J. Geophys. Res.* **103**(D9), 10,593-10,604.
- JAENICKE, R., 1987: Atmosphärische Kondensationskerne. *VCH, Verlagsges. mbH*, Weinheim, 443 S.
- JENSEN, E. J., O. B. TOON, R. F. PUESCHEL, J. GOODMAN, G. W. SACHSE, B. E. ANDERSON, K. R. CHAN, D. BAUMGARDNER, R. C. MIAKE-LYE, 1998: Ice crystal nucleation and growth in contrails forming at low ambient temperatures. *Geophys. Res. Lett.* **25**, 1371-1374.
- JONES, A., D. L. ROBERTS, A. SLINGO, 1994: A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic sulphate. *Nature* **370**, 450-453.
- JUNGE, C. E., 1955: The size distribution and aging of natural aerosols as determined from electrical and optical data on the atmosphere. *J. Meteorol.* **12**, 13-25.
- KNUZZI, R., T. F. STOCKER, F. JOOS, G. K. PLATTNER, 2002: Constraints on radiative forcing and future climate change from observations and climate model ensembles. *Nature* **416** (6882): 719-723.
- KÖPKE, P., M. HESS, I. SCHULT, E.P. SHETTLE, 1997: Global Aerosol Data Set, *MPI-Report* **243**, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, 44 S.
- LOHMANN, U., J. FEICHTER, J. E. PENNER, R. LEITCH, 2000: Indirect effect of sulfate and carbonaceous aerosols: A mechanistic treatment. *J. Geophys. Res.* **105** (D10) 12,193-12,206.
- LOHMANN, U., J. FEICHTER, 2001: Can the direct and semi-direct aerosol effect compete with the indirect effect on a global scale? *Geophys. Res. Lett.* **28**, 159 S.
- LOHMANN, U. 2002: Possible effects on clouds by aerosol-induced changes in heterogeneous ice nucleation. *J. Atmos. Sci.* **59**, 647-656.
- LOHMANN U, LESINS G, 2002: Stronger constraints on the anthropogenic indirect aerosol effect. *Science* **298** (5595): 1012-1015.
- MAHOWALD, N., K. KOHFELD, M. HANSSON, Y. BALKANSKI, S. P. HARRISON, I. C. PRENTICE, M. SCHULZ, H. RODHE, 1999: Dust sources and deposition during the last glacial maximum and current climate: a comparison of model results with paleodata from ice cores and marine sediments. *J. Geophys. Res.* **104**(D13), 15,895-15,916.

- MARTIN, J. H., 1992: Iron as a limiting factor, in Primary Productivity and Biogeochemical Cycles in the Sea. In: P. G. FALKOWSKI, A. WOODHEAD, (Hrsg.), *Plenum Press*, New York, NY, 123-137.
- PSENNER, R., 1994: Environmental impacts on freshwaters: acidification as a global problem. *The Science of the Total Environ.* **143**, 53-61.
- RASCH, P. J. J. FEICHTER, K. LAW, N. MAHOWALD, J. PENNER, C. BENKOVITZ, C. GENTHON, C. GIANNAKOPOULOS, P. KASIBHATLA, D. KOCH, H. LEVY, T. MAKI, M. PRATHER, D. L. ROBERTS, G. J. ROELOFS, D. STEVENSON, Z. STOCKWELL, S. TAGUCHI, M. KRITZ, M. CHIPPERFIELD, D. BALDOCCHI, P. MCMURRY, L. BARRIE, Y. BALKANSI, R. CHATFIELD, E. KJELLSTROM, M. LAWRENCE, H. N. LEE, J. LELIEVELD, K. J. NOONE, J. SEINFELD, G. STENCHIKOV, S. SCHWARTZ, C. WALCEK, D. WILLIAMSON, 2000: A comparison of scavenging and deposition processes in global models: results from the WCRP Cambridge Workshop of 1995. *Tellus* **52B**, 1025-1056.
- ROECKNER E., L. BENGTSSON, J. FEICHTER, J. LELIEVELD, H. RODHE, 1999: Transient climate change simulations with a coupled atmosphere-ocean GCM including the tropospheric sulfur cycle. *J. Climate* **12**, 3004-3032.
- ROELOFS, G. J., P. KASIBHATLA, L. BARRIE, D. BERGMANN, C. BRIDGEMAN, M. CHIN, J. CHRISTENSEN, R. EASTER, J. FEICHTER, A. JEUKEN, E. KJELLSTRÖM, D. KOCH, C. LAND, U. LOHMANN, P. RASCH, 2001: Analysis of regional budgets of sulfur species modeled for the COSAM exercise. *Tellus* **53B**, 673-694.
- SCHRÖDER, F., B. KÄRCHER, C. DUROURE, J. STRÖM, A. PETZOLD, J.-F. GAYET, B. STRAUSS, P. WENDLING, S. BORRMANN, 2000: On the transition of contrails into cirrus clouds. *J. Atmos. Sci.* **57**, 464-480.
- SCHULZ, M., Y. J. BALKANSKI, W. GUELLE, F. DULAC, 1998: Role of aerosol size distribution and source location in a three-dimensional simulation of a Saharan dust episode tested against satellite-derived optical thickness. *J. Geophys. Res.* **103**, 10,579-10,592.
- SCHUMANN, U., H. SCHLAGER, F. ARNOLD, J. OVARLEZ, H. KELDER, O. HOV, G. HAYMAN, I. ISAKSEN, J. STAEHELIN, P. D. WHITEFIELD, 1999: Pollution from aircraft emissions in the North Atlantic flight corridor: Overview on the POLINAT projects. DLR/Inst. f. Phys. d. Atm., Oberpfaffenhofen, *DLR-Report No.* **122**, 35 S.
- SEINFELD, J. H., S. N. PANDIS, 1998: Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change. *John Wiley & Sons, Inc.*, New York, 1326 S.
- STRÖM, J., S. OHLSSON, 1998: In situ measurements of enhanced crystal number densities in cirrus clouds caused by aircraft exhaust. *J. Geophys. Res.* **103**, 11,355-11,361.
- TANNER, P. A., H.-C. LEI et al., 1997: Acid rain and below-cloud scavenging in South-Western China. *J. Atmosph. Chem.* **27**, 71-78.
- TANRE, D. J., J. F. GELEYN, J. SLINGO, 1984: First results of the introduction of an advanced aerosol-radiation interaction in the ECMWF low resolution global model, In: Aerosols and their Climate Effects, Hrsg. GERBER, H. F., A. DEEPAK, A. Deepak Publ., Hampton, Va., 133-177.
- TEGEN, I., A. A. LACIS, 1996: Modeling of particle size distribution and its influence on the radiative properties of mineral dust aerosol. *J. Geophys. Res.* **101**(D14), 19,237-19,244.
- TWOMEY, S., 1977: Atmospheric aerosols. *Elsevier Scientific Publishing Company*, Amsterdam, 302 S.
- VON SALZEN, K., LEIGHTON, H. G., ARIYA, P. A., BARRIE, L. A., GONG, S. L., BLANCHET, J. P., SPACEK, L., LOHMANN, U., L. I. KLEINMAN, 2000: The sensitivity of sulphate aerosol size distributions and CCN concentrations over North America to SO_x emissions and H₂O₂ concentrations. *J. Geophys. Res.* **105**, 9,741-9,766.
- WARNECK, P., 1988: Chemistry of the natural atmosphere. *Academic Press, Inc.*, London, 757S.
- WESELY, M. L., 1989: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional scale numerical models. *Atmosph. Environ* **23**, 1293-1304.
- WHITBY, K. T., 1978: The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmos. Environ.* **12**, 135-159.
- WILSON, J., C. CUVELIER, F. RAES, 2001: A modelling study of global mixed aerosol fields. *J. Geophys. Res.*, **106**, 34081-34108.
- WINTER, B., P. CHYLEK, 1997: Contribution of sea salt aerosol to the planetary clear-sky albedo. *Tellus* **49B**(1), 72-79.