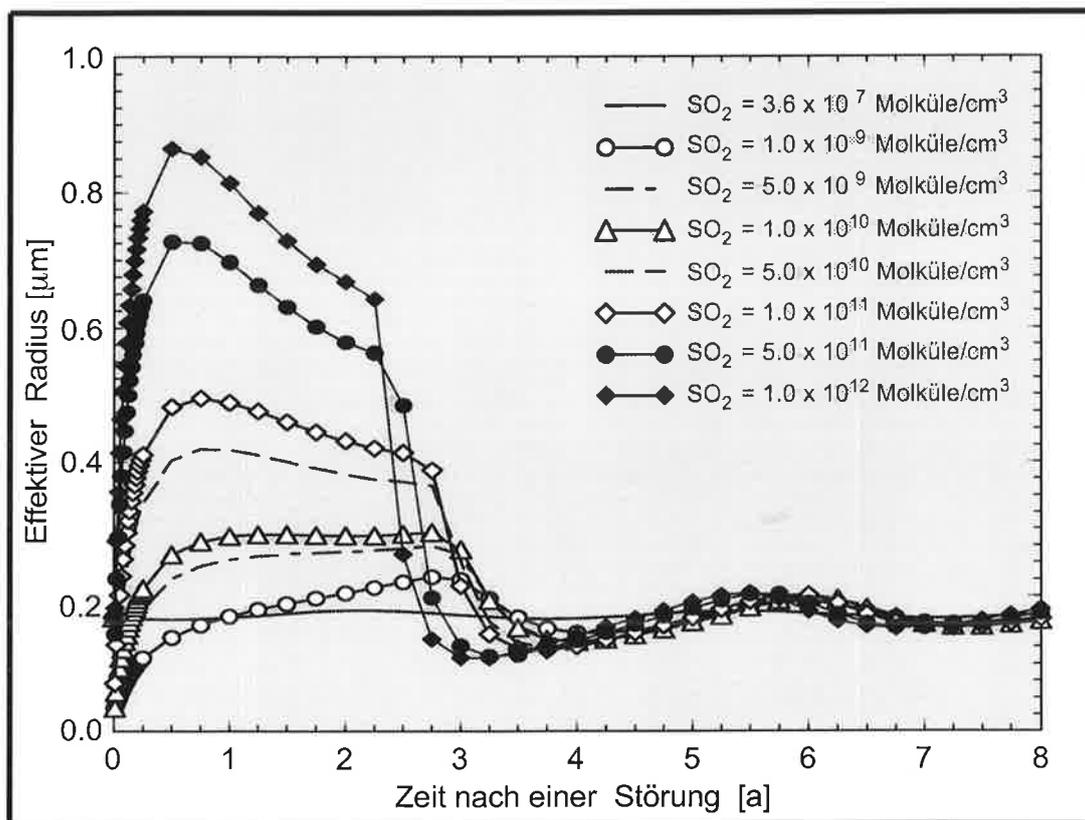




# Max-Planck-Institut für Meteorologie

## EXAMENSARBEIT Nr. 46



SIMULATIONEN ZUR BILDUNG UND ENTWICKLUNG VON  
STRATOSPHERISCHEM AEROSOL UNTER BESONDERER  
BERÜCKSICHTIGUNG DER PINATUBOEPISODE

VON

Claudia Timmreck

HAMBURG, Mai 1997

Dissertation im Rahmen des Promotionsverfahrens

Autor:

Claudia Timmreck

Max-Planck-Institut  
für Meteorologie

MAX-PLANCK-INSTITUT  
FÜR METEOROLOGIE  
BUNDESSTRASSE 55  
D - 20146 HAMBURG  
F.R. GERMANY

Tel.: +49-(0)40-4 11 73-0  
Telefax: +49-(0)40-4 11 73-298  
E-Mail: <name> @ dkrz.de

**Simulationen zur Bildung und Entwicklung von  
stratosphärischem Aerosol unter besonderer  
Berücksichtigung der Pinatuboepisode**

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften im Fachbereich  
Geowissenschaften  
der Universität Hamburg

vorgelegt von  
Claudia Timmreck  
aus Herford

Hamburg 1997

ISSN 0938-5177

Als Dissertation angenommen vom Fachbereich Geowissenschaften  
der Universität Hamburg

auf Grund der Gutachten von Prof. Dr. K. Hasselmann  
und Priv. Doz. Dr. H.-F. Graf  
und Prof. Dr. A. Ebel

Hamburg, den 30. April 1997

Prof. Dr. G. Miehlich

Sprecher des Fachbereichs Geowissenschaften

## Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit ist ein mikrophysikalisches Modell des stratosphärischen Aerosols für das dreidimensionale Zirkulationsmodell ECHAM entwickelt worden.

Eine Grundlage des stratosphärischen mikrophysikalischen Modells ist die weitgehend explizite Beschreibung der wesentlichen Parameter des binären Systems in Abhängigkeit von Temperatur und Partialdrücken. In dem Modell selbst werden homogene Nukleation, Kondensation von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , Koagulation und Sedimentation berücksichtigt.

Für eine Boxversion des mikrophysikalischen Modells sind Sensitivitätsstudien durchgeführt worden. Sie zeigen eine gute Übereinstimmung der berechneten Hintergrund-aerosol-Gleichgewichtsverteilung mit den beobachteten Werten. Das mikrophysikalische Boxmodell ist desweiteren in der Lage, das zeitliche Verhalten des stratosphärischen Aerosols nach einer vulkanischen Störung in guter Näherung zu Beobachtungswerten zu simulieren. Es zeigt sich dabei, daß unabhängig von der Stärke der Störung der Hintergrundwert nach vier bis fünf Jahren wieder erreicht wird. Sensitivitätsstudien in Abhängigkeit von den Eingabedaten zeigen, daß bei einer Temperatur- und einer  $\text{H}_2\text{O}$ -Änderung ein anderes Muster in den simulierten Aerosolgrößenverteilungen hervorgerufen wird als bei einer Änderung der  $\text{SO}_2$ -Konzentration.

Für die globale Modellierung ist das mikrophysikalische Modell um ein einfaches Modul für die stratosphärische Schwefelchemie erweitert worden. Darüber hinaus ist das mikrophysikalische Modell mit einem troposphärischen Schwefelkreislauf gekoppelt worden, wodurch für das stratosphärische Aerosol global und jahreszeitlich verschiedene troposphärische  $\text{SO}_2$ - und  $\text{SO}_4^{2-}$ -Quellen berücksichtigt werden können. Erste Ergebnisse der dreidimensionalen Modellierung zeigen, daß das Modell die beobachteten Massenkonzentrationen und Oberflächenverteilungen in der richtigen Größenordnung reproduzieren kann. Die Bildung neuer Teilchen durch homogene Nukleation wird hauptsächlich von der Temperatur bestimmt, und findet in der unteren tropischen Stratosphäre sowie in den polaren Gebieten im Frühjahr statt.

In einem weiteren Schwerpunkt dieser Arbeit sind mit der ECHAM4-L19-Version transiente Pinatuboexperimente mit prognostischem Sulfataerosol durchgeführt worden. Bei den assimilierten Pinatubosimulationen zeigt sich die generelle Schwierigkeit von Gitterpunkts- und spektralen Modellen, den in der Stratosphäre auf isentropen Flächen stattfindenden großräumigen Transport zu simulieren. Durch die Einführung einer Reduzierung des vertikalen Transports auf einer isentropen Fläche von 380 K, die die Grenze zwischen stratosphärischer Ober- und Unterwelt markiert, ist jedoch im Rahmen dieser Arbeit eine wesentliche Verbesserung für den stratosphärischen Tracertransport erzielt worden.

## Abstract

A microphysical model for stratospheric aerosol has been developed and implemented in the climate model ECHAM4.

The fundamental basis of the microphysical model is the explicit description of the essential parameters of the binary  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  system dependent on temperature and partial pressure. The following processes are solved: Homogeneous nucleation, condensation, coagulation, water-vapor growth incl. the Kelvin effect and sedimentation

For a box version of the microphysical model sensitivity studies were carried out. For the background aerosol the results of the sensitivity studies are in good agreement with observations. Furthermore the microphysical box model is able to simulate the temporal development of stratospheric aerosol after an volcanic eruption in good approximation to observed data. Independently of the strength of the volcanic disturbance, four to five years after the eruption the background level is reached again. Sensitivity studies dependent on the initial parameters also show a different pattern in the simulated aerosol distribution for temperature and water vapor changes, than for changes in the  $\text{SO}_2$  and OH concentration.

For the global modeling the microphysical model is extended with a module of stratospheric sulfur chemistry. Additionally, the microphysical model is coupled to a tropospheric sulfur cycle. Due to this combination global and seasonal different  $\text{SO}_2$ - and  $\text{SO}_4^{2-}$ -sources for stratospheric aerosol could be taken into account.

First results of the 3d-simulation show that the model is able to reproduce the observed aerosol mass mixing ratio and the surface concentration by a factor of two. The formation of new particles through homogeneous nucleation is mainly determined by the temperature and takes place in the lower stratosphere and in polar spring.

A different emphasis of this work is transient Pinatubo simulations with the ECHAM4 L19 model and with prognostic sulfate aerosol. These assimilated Pinatubo simulation shows the general difference of gridpoint and spectral models to simulate the large scale isentropic transport. Due to the introduction of a reduced advective vertical transport through the 380 K isentropic layer, a substantial improvement in the stratospheric tracer transport has been made.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Rahmenmodelle</b>	<b>7</b>
2.1	Das globale Zirkulationsmodell . . . . .	7
2.1.1	Das Semi-Lagrange-Transportschema . . . . .	9
2.1.2	Berücksichtigung des Aerosols im Strahlungsmodell . . . . .	11
2.2	Der troposphärische Schwefelkreislauf . . . . .	13
<b>3</b>	<b>Das mikrophysikalische Modell</b>	<b>15</b>
3.1	Modellbeschreibung . . . . .	16
3.2	Prozesse . . . . .	19
3.2.1	Nukleation . . . . .	20
3.2.2	Heteromolekulare Kondensation . . . . .	27
3.2.3	Koagulation . . . . .	37
3.2.4	Sedimentation . . . . .	40
<b>4</b>	<b>Sensitivitätsstudien mit dem Boxmodell</b>	<b>43</b>
4.1	Einleitung . . . . .	43
4.2	Das stratosphärische Hintergrundaerosol . . . . .	46
4.2.1	Messungen . . . . .	46
4.2.2	Sensitivitätsstudien . . . . .	47
4.3	Das vulkanische Aerosol . . . . .	64
4.3.1	Messungen . . . . .	64
4.3.2	Sensitivitätsstudien . . . . .	65
4.4	Zusammenfassung . . . . .	74
<b>5</b>	<b>Simulation der Pinatuboepisode</b>	<b>77</b>
5.1	Die globale Ausbreitung der Pinatubowolke . . . . .	77
5.2	Das Pinatuboexperiment . . . . .	79
5.2.1	Assimilation der Pinatuboepisode . . . . .	81
5.3	Ergebnisse und Diskussion . . . . .	83
5.3.1	Assimilierte Pinatubosimulation . . . . .	83
5.3.2	Parameterisierung des Stratosphären-Troposphären-Austausches . . . . .	86
5.3.3	Assimilierte Pinatubosimulationen mit STE-Parameterisierung . . . . .	90
5.3.4	Vergleich mit stationären Beobachtungen . . . . .	102

5.3.5	Berechnung des Strahlungsantriebs . . . . .	106
5.4	Zusammenfassung und Ausblick . . . . .	114
<b>6</b>	<b>Dreidimensionale Modellierung des stratosphärischen Aerosols</b>	<b>117</b>
6.1	Entwicklung des dreidimensionalen stratosphärischen Aerosolmodells . .	117
6.1.1	Modellierung der stratosphärischen Schwefelchemie . . . . .	120
6.2	Erste Ergebnisse und Ausblick . . . . .	122
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>129</b>
7.1	Zusammenfassung . . . . .	129
7.2	Ausblick . . . . .	132
7.3	Schlußbemerkung . . . . .	133
<b>A</b>		<b>135</b>
A.1	Daten für Dichte und Oberflächenspannung . . . . .	135
A.2	Eingabeparameter für Sensitivitätsstudien . . . . .	136
A.3	Optische Parameter für das ECHAM4-Strahlungsschema . . . . .	141
<b>B</b>		<b>145</b>
B.1	Nukleation . . . . .	145
B.1.1	Thermodynamik von Hydraten . . . . .	145
B.2	Parameterisierungen für das Zirkulationsmodell . . . . .	149
B.3	Numerische Lösung der Schwefelchemie . . . . .	152
<b>C</b>	<b>Symbol- und Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>153</b>
C.1	Wichtige Symbole . . . . .	153
C.2	Chemische Formeln . . . . .	154
C.3	Abkürzungsverzeichnis . . . . .	155

# Kapitel 1

## Einleitung

Die Wirkungen des stratosphärischen Aerosols auf das globale Klimasystem sind vielfältig. Stratosphärische Aerosolteilchen, welche hauptsächlich aus unterkühlten  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Teilchen mit Schwefelsäurekonzentrationen in der Größenordnung von 50% bis 80% bestehen, können einerseits über ihre Strahlungseigenschaften und andererseits als Katalysator von chemischen Reaktionen atmosphärische Veränderungen hervorrufen.

Das Strahlungsgleichgewicht in der Atmosphäre wird durch die Aerosolteilchen in zweierlei Hinsicht verändert, zum einen streuen sie die einfallende solare Strahlung und verstärken damit die planetare Albedo, zum anderen absorbieren sie langwellige terrestrische Strahlung und erhöhen dadurch die lokalen Heizraten in den Aerosol enthaltenden Schichten. Ist der effektive Radius des stratosphärischen Sulfataerosols  $r_{\text{eff}} \leq 2 \mu\text{m}$ , überwiegt der Albedo- den Treibhauseffekt (Lacis et al., 1992).

Stratosphärische Aerosolpartikel dienen zudem als Kondensationskeime für die Entwicklung von polaren stratosphärischen Wolken, PSCs<sup>1</sup> (Crutzen und Arnold, 1986; Toon et al., 1986), und können durch die Aufnahme von Salpetersäure ternäre Lösungstropfen bilden, die teilweise homogen gefrieren (Koop et al., 1995). An den Oberflächen der PSC-Teilchen finden heterogene chemische Prozesse statt, die Chlor aktivieren und im Frühjahr zu einem katalytischen Abbau von Ozon und damit zur Ausbildung des antarktischen Ozonloches führen (Solomon et al., 1986; McElroy et al., 1986; Molina et al., 1987). Auch an den Oberflächen der Sulfateilchen finden heterogene chemische Prozesse statt (Hofmann und Solomon, 1989), die einerseits Chlor aktivieren und andererseits Stickoxide abbauen und somit zu der beobachteten Ozonabnahme in den mittleren Breiten beitragen (Hofmann und Solomon, 1989; Brasseur und Granier, 1992; Prather, 1992; Solomon et al. 1996).

Die Konzentration des Aerosols in der Stratosphäre ist variabel. Signifikante Veränderungen in der Anzahl, der Größe und der Zusammensetzung der stratosphärischen Aerosolpartikel, wie sie nach starken Vulkanausbrüchen beobachtet werden, können die Stärke und damit die globalen Auswirkungen der oben genannten Eigenschaften beeinflussen. So konnten besonders nach starken Vulkanausbrüchen Klimaveränderungen beobachtet werden. Das bekannteste Beispiel aus der Vergangenheit ist die Explosion des Tambora 1815. Das nachfolgende Jahr mit einer starken Abkühlung über Nordamerika und

---

<sup>1</sup>PSCs: Polar Stratospheric Clouds

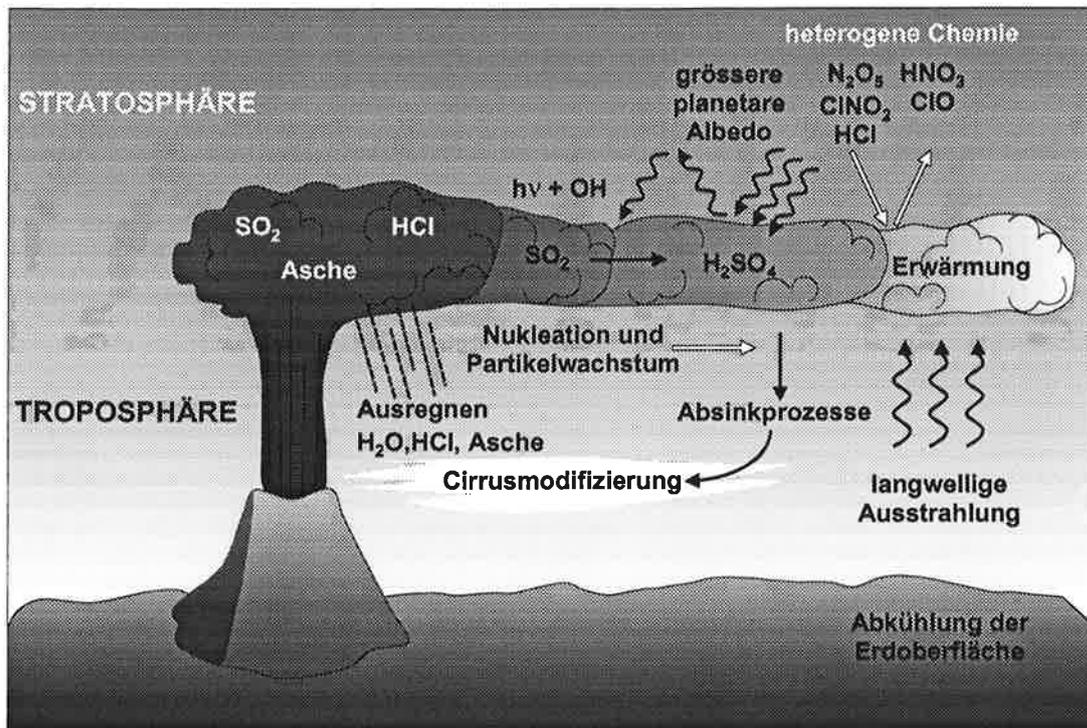


Abbildung 1.1: Atmosphärische Auswirkungen hochreichender Vulkaneruptionen nach McCormick et al. (1995).

Westeuropa ist gemeinhin als 'Jahr ohne Sommer' bekannt. Legrand und Delmas (1987) folgerten anhand einer Analyse von Eisbohrkernen, daß die Klimaveränderungen vulkanischer Störungen hauptsächlich mit der emittierten Schwefelmenge zusammenhängen. Bei der Eruption des Mt. Pinatubo im Juni 1991 gelangten 14 Mt – 26 Mt SO<sub>2</sub> in die Stratosphäre (Krueger et al., 1995). Die Eruption des Pinatubo gilt damit als der größte Vulkanausbruch in diesem Jahrhundert (McCormick et al., 1995) und als einzigartiges Naturexperiment, weil für die Pinatuboepisode eine bisher unerreichte Qualität und Dichte von Beobachtungen vorliegt.

So wurde nach dem Ausbruch des Pinatubo eine Temperaturzunahme in der unteren Stratosphäre um 2 K – 3 K (Labitzke und McCormick, 1992) und eine Abkühlung in der globalen unteren Troposphäre und der Erdoberfläche um 0.5 K (Dutton und Christy, 1992) beobachtet. Im Winter zeigte sich eine starke Erwärmung über Nordamerika und Eurasien (Robock und Mao, 1992), sowie eine Anregung eines natürlichen stratosphärischen Modes und damit eine Verstärkung des polaren Wirbels (Graf et al., 1994). Für den Netto-Strahlungsfluß am oberen Rand der Atmosphäre (Klimaförderung) wurde eine Reduktion um 3 W/m<sup>2</sup> – 10 W/m<sup>2</sup> je nach geographischer Lage (Minnis et al., 1993; Dutton und Christy, 1992) gemessen. Ebenfalls wurde nach dem Ausbruch des Pinatubo eine erhöhte Cirrenbildung beobachtet (Jensen und Toon, 1992; Sassen et al., 1995). Auch die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre wurde nach der Pinatuboeruption gestört. So wurden 1992 und 1993 außergewöhnlich hohe Ozonreduktionen sowohl in niedrigen als auch in mittleren und hohen Breiten gemessen (Grant et al., 1994; Herman und Larko, 1994; Randel et al., 1995). Damit einhergehend wurden Änderungen in ozonrelevanten chemischen Konzentrationen beobachtet wie z.B. eine Abnahme des stratosphärischen NO<sub>2</sub>-Gehaltes um 20% (Johnston et al., 1992; Coffey und Mankin, 1993; Coffey, 1996), verbunden mit einem Anstieg in der stratosphärischen HNO<sub>3</sub>-Konzentration um 10%–

30% (Koike et al., 1994).

Die beobachtete globale Veränderung in der Ozonkonzentration als Folge der Mt. Pinatubo und anderer vulkanischer Eruptionen wie der des El Chichón ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch nicht vollständig verstanden. Verschiedene Mechanismen sind neben dem Abbau durch heterogene Reaktionen an der Aerosoloberfläche als Ursache für die beobachteten Ozonverluste vorgeschlagen worden. So kann eine Ozonreduktion durch geringere Photolyseraten als Folge stärker gestreuter solarer Einstrahlung hervorgerufen werden (Michelangeli et al., 1989; Pitari und Rizzi, 1993). Anfänglicher Ozonverlust ist auch durch eine verstärkte SO<sub>2</sub>-Photooxidation möglich (Bekki et al., 1993). Geänderte Transportprozesse sowie eine Anhebung der tropischen Ozonschicht um 1.8 km (Kinne et al., 1992; Schoeberl et al., 1993) durch lokale aerosolbedingte Aufheizung können ebenfalls Ursachen für die beobachtete Ozonreduktion sein.

Es ist in diesem Zusammenhang unklar, welcher Anteil der Veränderungen zirkulationsbedingt ist, und welcher durch chemische Prozesse bewirkt wird, da die Ozon- und die Aerosolkonzentration einerseits den Strahlungshaushalt der Stratosphäre und damit ihre Dynamik bestimmen, andererseits aber auch ihrerseits durch dynamische Prozesse beeinflusst werden.

Graf et al. (1993; 1996) konnten anhand von Klimamodell-Studien mit beobachtetem Aerosol zeigen, daß durch die Pinatuboeruption regional und saisonal unterschiedliche Effekte hervorgerufen werden. Im Winter sind eine Verstärkung des polaren Strahlstroms in der unteren Stratosphäre und, als Folge einer modifizierten planetaren Wellenstruktur, positive Temperaturanomalien über den Kontinenten in der unteren Troposphäre zu finden, während im Sommer eine generelle Abkühlung zu beobachten ist. Obwohl diese Studien einen Teil der beobachteten Strukturen widerspiegeln konnten, müssen sie als idealisierte Experimente angesehen werden, da sie im permanenten Januar- und Julimode mit einem grob aufgelösten Modell ohne Rückkoppelung, Mikrophysik und Ozonchemie gerechnet worden sind. Pinatubosimulationen mit einem spektralen dreidimensionalen Modell und vorgeschriebenem Aerosol von Pitari (1993a) zeigten ebenfalls eine Störung der diabatischen Zirkulation und eine Änderung in der planetaren Wellenstruktur. Jedoch sind auch diese Studien ohne prognostisches Ozon und Aerosol durchgeführt worden.

Die komplexen Wechselwirkungen zwischen Strahlung, Zirkulation, Chemie und Mikrophysik können aber nur dann verstanden werden, wenn chemische Komponenten und Aerosol prognostisch behandelt werden und die raum-zeitliche Entwicklung von Aerosolbildung und -transport sowie die Verbindung von chemischen und mikrophysikalischen Prozessen adäquat beschrieben werden.

Erste Ansätze dazu liegen vor. So untersuchten z.B. Tie et al. (1994b) die Auswirkungen des Pinatuboaerosols auf das stratosphärische Ozon mit einem zweidimensionalen Modell. Sie kamen zu dem Ergebnis, daß in dem ersten Jahr nach der Eruption des Mt. Pinatubo die Ozonverluste hauptsächlich durch dynamische und Strahlungseffekte hervorgerufen wurden, und erst im weiteren Verlauf die chemischen Effekte für den Ozonabbau wichtig wurden. Diese Ergebnisse können aber auf Grund des zweidimensionalen Transports und der grob parameterisierten Nukleation nur qualitativ gewertet werden. Mit einem ähnlichen Experiment untersuchten Bekki und Pyle (1994) die Ausbreitung

des Pinatubo-aerosols. Es zeigt sich dabei im Vergleich zu Beobachtungen, daß die fehlende homogene Nukleation zu signifikanten Unterschieden bezüglich der Oberflächendichte und des Maximums der Aerosolladung führt.

Kinnison et al. (1994) untersuchten mit einem zweidimensionalen Modell und parameterisierter Mikrophysik die chemischen und strahlungsbedingten Effekte der Pinatuboeruption. Sie berechneten, daß die simulierten Änderungen in der äquatorialen Ozonkonzentration am besten unter Einbeziehung sowohl einer geänderten Dynamik, als auch heterogener chemischer Prozesse mit den Beobachtungen übereinstimmen. In den mittleren und hohen Breiten erhielten sie jedoch auf Grund der vereinfachten Zirkulationsstruktur einen Ozonanstieg anstatt einer Ozonabnahme.

Bekki et al. (1997) konnten mit einem dreidimensionalen Chemie-Transport-Modell mit expliziter Mikrophysik zeigen, daß homogene Nukleation auf einer isentropen Fläche von 1100 K in der Arktis im Januar für einige unerwartete Satellitenbeobachtungen in der reaktiven Stickstoffchemie verantwortlich ist. Die mikrophysikalischen Berechnungen wurden jedoch in diesen Simulationen nur auf einer Fläche durchgeführt.

Zu dem gegenwärtigen Zeitpunkt existiert noch kein dreidimensionales Modell, welches die Bildung und Entwicklung von stratosphärischem Aerosol ebenso wie die homogene und heterogene Chemie und die Rückkoppelung mit der Strahlung berücksichtigt. Eine Bewertung und damit ein prognostischer Ansatz der Auswirkung physikalischer und chemischer Prozesse für den Ozonabbau nach starken Vulkanausbrüchen steht dementsprechend ebenso noch aus, wie eine vollständige Beschreibung der nach dem Ausbruch des Pinatubo beobachteten Zirkulationsänderungen.

Eine sinnvolle Weiterbehandlung der Frage der Trennung von chemischen und dynamischen Effekten erfordert ein gekoppeltes dreidimensionales Chemie-Mikrophysik-Klimamodell, das auch eine adäquate Behandlung des Strahlungstransports (variables Aerosol, variables Ozon) gestattet. Mit dem ECHAM4<sup>2</sup>-Klimamodell ist ein solches Werkzeug prinzipiell gegeben, das, gekoppelt mit den entsprechenden Modulen, diese Frage zu beantworten gestattet.

Um die chemisch-mikrophysikalischen Prozesse in der Stratosphäre und ihre Wechselwirkung besser zu verstehen, wird daher ein chemisch-mikrophysikalisches Modell für das globale Zirkulationsmodell ECHAM4 entwickelt. Das chemisch-mikrophysikalische Modell besteht aus zwei Teilen: einem chemischen Teil und einem mikrophysikalischen, die beide, sowohl als separates wie auch als gekoppeltes Modell, in das Klimamodell implementiert werden. Der chemische Teil, der die homogene und heterogene Chemie in der Stratosphäre berechnet, ist parallel von Steil (1997) entwickelt worden.

Das gekoppelte chemisch-mikrophysikalische Modell soll dabei erstmalig in der Lage sein, die gestörte wie die ungestörte Atmosphäre realistisch zu beschreiben. Der Vorteil der Einbeziehung einer expliziten Mikrophysik liegt dabei in der Vermeidung von vorgeschriebenen Größenverteilungen und damit in der Möglichkeit, die Bildung des stratosphärischen Schwefelsäureaerosols in der unteren Stratosphäre in Abhängigkeit von der Stärke der troposphärischen Schwefelquelle (z.B. Vulkaneruption) zu berechnen. Darüber hinaus kann die heterogene Chemie in Abhängigkeit von konsistent entwickelten Aerosolkonzentrationen und Oberflächenverteilungen modelliert werden, was ein wesentlicher

---

<sup>2</sup>ECHAM4: 4. Generation des globalen Hamburger Klimamodells

Schritt hin zur Prognosefähigkeit des Modells für Aerosol- und Ozonverteilungen ist. Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung eines mikrophysikalischen Modells, welches die für die Chemie- und Strahlungsmodellierung wichtigen Parameter bereitstellt, indem es die Bildung und Entwicklung von stratosphärischem Sulfataerosol für gestörte und ungestörte Bedingungen beschreibt. Dieses entwickelte Modell soll anhand von Sensitivitätsstudien validiert und in das ECHAM4-Modell implementiert werden. Neben einer adäquaten Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Mikrophysik, Chemie und Dynamik ist ein realistischer stratosphärischer Transport Grundvoraussetzung, um mit globalen Zirkulationsmodellen z.B. die nach dem Ausbruch starker vulkanischer Eruptionen beobachteten atmosphärischen Veränderungen zu verstehen. Ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit liegt daher darin, anhand einer transienten Simulation der Pinatuboeruption mit prognostischem Sulfataerosol zu untersuchen, inwieweit ECHAM4 in der 19-Schichtenversion in der Lage ist, den stratosphärischen Transport in der Pinatuboepisode richtig zu beschreiben.

Der Zeitraum nach der Eruption von Mt. Pinatubo im Juni 1991 wurde zum einen ausgewählt, weil zahlreiche Beobachtungen für diesen Zeitraum vorliegen, siehe z.B. Russel et al. (1996), die hervorragend für die Entwicklung und Validierung von Modellen geeignet sind. Zum anderen ist dieser Zeitraum auf Grund der schon aufgezeigten atmosphärischen Veränderungen wissenschaftlich sehr interessant. Aus den transienten Pinatubosimulationen mit prognostischem Vulkanaerosol läßt sich desweiteren auch ableiten, inwieweit es bereits jetzt sinnvoll ist, ein komplexes mikrophysikalisches Modell mit dem Zirkulationsmodell zu kombinieren.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt: In dem anschließenden Kapitel 2 werden die in dieser Arbeit verwendeten globalen Rahmenmodelle vorgestellt. Das mikrophysikalische Modell und die berücksichtigten Prozesse werden in dem daran anschließenden Kapitel 3 beschrieben. In Kapitel 4 dieser Arbeit wird dann das mikrophysikalische Modell anhand einer Boxversion validiert und Ergebnisse von Sensitivitätsstudien für die ungestörte und die gestörte Atmosphäre zusammengefaßt. In dem darauffolgenden Kapitel 5 wird anhand eines Pinatuboexperimentes ohne explizite Mikrophysik die Transportcharakteristik in dem globalen Modell untersucht. In Kapitel 6 werden das dreidimensionale stratosphärische Aerosolmodell vorgestellt und erste Ergebnisse diskutiert. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick in Kapitel 7 ab.



# Kapitel 2

## Rahmenmodelle

Im folgenden Kapitel wird zunächst das globale Zirkulationsmodell ECHAM4 vorgestellt, wobei auf die für die dreidimensionale Modellierung von stratosphärischem Aerosol besonders wichtigen Aspekte, wie das Semi-Lagrange-Transportverfahren und die Berücksichtigung von Aerosol im Strahlungsschema ausführlich eingegangen wird. Um für das stratosphärische Aerosol global und saisonal unterschiedliche troposphärische  $\text{SO}_2$ - und  $\text{SO}_4^{2-}$ -Quellen zu berücksichtigen, wird das stratosphärische Aerosolmodell mit einem troposphärischem Schwefelkreislauf gekoppelt (Kapitel 6). Darüber hinaus wird der troposphärische Schwefelkreislauf bei den transienten Pinatuboexperimenten in Kapitel 5 mitgerechnet, um Entfernungsprozesse des Vulkanaerosols aus der Atmosphäre zu simulieren. Der troposphärische Schwefelkreislauf wird daher im zweiten Teil dieses Kapitels näher beschrieben.

### 2.1 Das globale Zirkulationsmodell

Das globale atmosphärische Zirkulationsmodell ECHAM ist aus dem Wettervorhersagemodell des europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF<sup>1</sup>) in Reading entwickelt worden, um klimarelevante Fragestellungen beantworten zu können. Gegenwärtig liegt die 4. Generation des Modells ECHAM vor. Eine Beschreibung der Modellstruktur, der berücksichtigten physikalischen Prozesse und ihrer Parameterisierung sowie eine Darstellung der Modellklimatologie sind in dem Technischen Report Nr. 6 des DKRZ<sup>2</sup> (1994) und in Roeckner et al. (1996) zu finden.

ECHAM4 ist ein spektrales Modell, d.h., daß prognostische Größen als Reihenentwicklungen von Kugelfunktionen dargestellt werden. Physikalische Prozesse und nichtlineare Terme werden dagegen im Gitterpunktraum auf einem Gauß'schen Gitter berechnet. Spektral- und Gitterpunktraum werden durch die von Eliassen et al. (1970) und Orszag (1970) entwickelte Transformationsmethode miteinander verbunden. Für die vorliegende Arbeit wurde eine Version mit einer Dreiecksabschneidung bei der Großkreiswellenzahl 30 verwendet (T30), was einer horizontalen Gitterpunktauflösung von  $3.75^\circ \times 3.75^\circ$  entspricht.

---

<sup>1</sup>ECMWF: European Centre for Medium Range Weather Forecast

<sup>2</sup>DKRZ: Deutsches Klimarechenzentrum GmbH

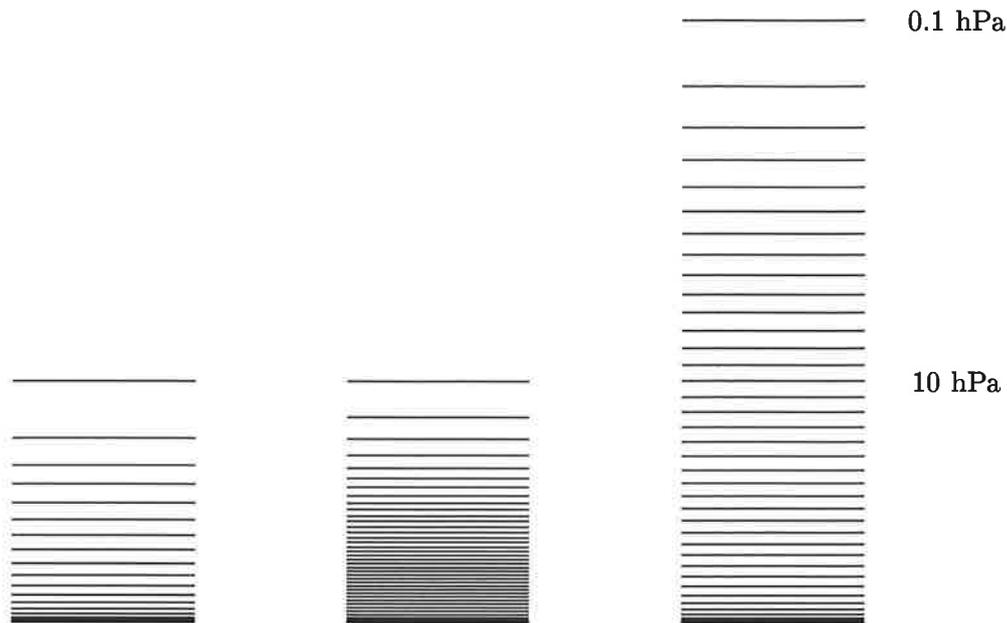


Abbildung 2.1: Vergleich der vertikalen Auflösung und der mittleren Schichtenhöhe der verschiedenen ECHAM4-Versionen, ECHAM4-L19 (links), ECHAM4-L39DLR (in der Mitte) und ECHAM4-L39MPI (rechts).

Das ECHAM4-Modell liegt standardmäßig mit einer vertikalen 19-Schichtenauflösung auf einem Hybrid-Koordinatensystem vor. Zur Zeit wird an erweiterten vertikalen Versionen des ECHAM4-Modells gearbeitet. Eine 39-Schichtenversion ECHAM4-L39DLR wird bei der DLR<sup>3</sup> in München entwickelt, sie reicht bis 10 hPa und löst die Tropopause und die untere Stratosphäre besser auf, als die Standardversion (C. Land, pers. Mitteilung). Eine andere 39-Schichtenversion ECHAM4-L39MPI, welche die Strato- und Mesosphäre umfaßt, wird am Max-Planck-Institut für Meteorologie in Hamburg entwickelt und reicht bis 0.1 hPa (Manzini und Bengtsson 1994, 1995). In Abbildung 2.1 ist ein Vergleich der vertikalen Auflösung für die drei ECHAM4-Versionen dargestellt.

In dem Modell wird ein semi-implizites Zeitschritt-Schema, ein sogenanntes 'Leap-Frog-Verfahren' verwendet. Die Anwendung eines Zeitfilters verhindert dabei, daß die beiden Zeitebenen auseinanderlaufen. Der Zeitschritt selbst ist abhängig von der horizontalen Auflösung des Modells, für T30 ergibt sich ein  $\Delta t$  von 30 Minuten. ECHAM4 prognostiziert Temperatur, Vorticity, Divergenz, den Logarithmus des Bodendruckes sowie die Massenmischungsverhältnisse von relativer Feuchte  $q_v$  und Wolkenwasser  $q_l$ .

Für die horizontale und die vertikale Advektion von  $q_v$  und  $q_l$  sowie optional für Massenmischungsverhältnisse chemischer und anderer positiv definiter Größen  $X$  wird in ECHAM4 im Gegensatz zu früheren Versionen ein SLT<sup>4</sup>-Verfahren verwendet, welches in Abschnitt 2.1.1 näher erläutert wird.

Die Horizontaldiffusion der prognostischen Variablen wird nach Laursen und Eliassen(1989) berechnet und am oberen Rand des Modells gesondert behandelt.

<sup>3</sup>DLR: Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt e.V.

<sup>4</sup>SLT: Semi-Lagrange-Transport

Der turbulente Austausch in der Grenzschicht und der turbulente Transport von Impuls, Wärme, Wolkenwasser sowie Wasserdampf basiert auf einem Schließungsschema höherer Ordnung (Brinkop und Roeckner, 1995).

Das in ECHAM4 verwendete Strahlungsschema beruht auf einem Zweistrom-Verfahren von Fouquart und Bonnel (1980) für den solaren Teil und von Morcrette (1991) für den terrestrischen. Das Strahlungsschema beinhaltet in dem kurzwelligen Teil zwei Frequenzbereiche und sechs in dem langwelligen. Die Absorption durch strahlungsrelevante Gase  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $O_3$ ,  $CH_4$ ,  $N_2O$  und FCKW's<sup>5</sup> wird in dem Strahlungsmodell ebenso berücksichtigt, wie die Streuung und Absorption von Aerosolteilchen und modell-erzeugten Wolken. Die Berücksichtigung des Aerosols im ECHAM4-Strahlungsmodell wird in Abschnitt 2.1.2 ausführlicher beschrieben. Die Streuungseigenschaften von Wassertröpfchen und Eiskristallen werden über die effektiven Radien parametrisiert (Rockel et al., 1991).

Das stratiforme Wolkenschema in ECHAM4 basiert auf einer Näherung von Sundquist (1978), konvektive Wolken sind nach dem Massenflußschema von Tiedtke (1989) parameterisiert. Zusätzlich wird in ECHAM4 ein Schließungsansatz für hochreichende Konvektion verwendet, der sich auf die konvektiv verfügbare potentielle Energie bezieht (Nordeng, 1997).

### 2.1.1 Das Semi-Lagrange-Transportschema

Das in dem Zirkulationsmodell verwendete Transportschema ist ein dreidimensionales 'shape preserving' SL<sup>6</sup>-Verfahren, welches ursprünglich für den Wasserdampftransport in der Troposphäre entwickelt wurde (Rasch und Williamson, 1990a 1990b; Williamson und Rasch, 1989 und Williamson, 1990) .

Bei dem SLT-Verfahren wird die Trajektorie eines Luftpaketes über einen Advektionszeitschritt verfolgt. So wird die Advektionsgleichung für einen beliebigen Tracer X, in der  $(\vec{v}_h \cdot \vec{\nabla}_h X)^t$  die horizontale Advektion und  $(\dot{\eta} \frac{\partial X}{\partial \eta})^t$  die vertikale Advektion mit  $\eta$  als Vertikalkoordinate beschreibt, in der Eulerschen Schreibweise:

$$X^{t+1} = X^{t-1} + 2\Delta t \left( -\vec{v}_h^t \cdot \vec{\nabla}_h X^t - \dot{\eta}^t \frac{\partial X^t}{\partial \eta} \right) \quad (2.1)$$

zu:

$$X^{t+1}(\vec{x}_a) = X^{t-1}(\vec{x}_d) \quad . \quad (2.2)$$

Der Ankunftspunkt  $\vec{x}_a$  wird dabei so gewählt, daß er exakt auf einem Gitterpunkt liegt. Der Ausgangspunkt  $\vec{x}_d$  befindet sich dagegen in der Regel nicht auf einem Gitterpunkt, daher muß die Tracerkonzentration am Ausgangspunkt  $X^{t-1}(\vec{x}_d)$  durch Interpolation von den umliegenden Gitterpunkten aus bestimmt werden. Der Prozeß kann durch die Anwendung eines Operators, der das reguläre Gitter zum Zeitpunkt t-1 auf das reguläre Gitter zum Zeitpunkt t+1 abbildet, beschrieben werden:

$$X^{t+1} = L_{2\Delta t}(X^{t-1}) \quad . \quad (2.3)$$

<sup>5</sup>FCKW's: Fluorchlorkohlenwasserstoffe

<sup>6</sup>SL: Semi-Lagrange

$L_{2\Delta t}$  ist der SL-Operator, der die Entwicklung von  $X$  vom Ausgangspunkt durch Interpolation beschreibt. Für die dreidimensionale Advektion wird der Operator in einen horizontalen und in einen vertikalen Anteil aufgeteilt, wobei zuerst der horizontale Anteil berechnet wird (Williamson 1990).

Die horizontalen Trajektorien werden nach Williamson und Rasch (1989) mit zentralen Windkomponenten zum Zeitpunkt  $t$  berechnet, indem ein gemischtes sphärisches und geodätisches Schema polwärts von  $60^\circ$  und ein globales sphärisches Schema äquatorwärts von  $60^\circ$  verwendet wird. Vier Iterationen werden durchgeführt, wobei der Ankunftspunkt  $\vec{x}_a$  als 'First Guess' dient. Die vertikale Komponente der Trajektorie wird ebenfalls mit zentralen Windkomponenten und vier Iterationen berechnet (Rasch und Williamson, 1990b).

Mit Hilfe von Tensorprodukten wird die Interpolation der Tracerfelder berechnet, wie ausführlich in Williamson und Rasch (1989) diskutiert wird.

Die gewählte Interpolationsroutine bestimmt dabei wesentlich die Güte des Advektionsschemas und den Grad seiner Diffusivität. Je stärker diffusiv der Algorithmus ist, um so mehr Schwierigkeiten hat das numerische Verfahren, starke Gradienten aufrechtzuerhalten. Bei dem SLT-Verfahren ist eine hohe Diffusivität besonders bei der vertikalen Advektion zu beobachten. Die Erklärung dafür ist einerseits, daß auf Grund der größeren vertikalen Auflösung die vertikalen Gradienten im allgemeinen stärker sind als die horizontalen. Andererseits werden für das verwendete hermitesche-kubische Interpolationsschema drei Stützstellen benötigt, so daß für die untersten drei und die obersten drei Schichten linear interpoliert werden muß. Dies ist besonders problematisch, da gerade die planetaren Grenzschichten in der Chemiemodellierung für Quellen und Senken interessant sind.

Das wesentliche Kennzeichen für das SLT-Schema ist, daß es zwar positiv definit, aber nicht zwingenderweise massenerhaltend ist. Um Massenerhaltung zu erzwingen, wird daher nach Rasch und Williamson (1990) ein Korrekturverfahren, ein sogenannter Fixer, eingebaut. Das Fixing-Verfahren führt nach jedem Zeitschritt eine variable Korrektur der Massenmischungsverhältnisse durch, deren Amplitude proportional zu den Transporttendenzen und dem Tracer-Feld selbst ist. Das Massenmischungsverhältnis  $X_f$  nach dem Fixing-Verfahren ist gegeben durch:

$$X_f = X_a + \alpha F(\tilde{\eta}) | X_a - X_b |^{\beta} \quad (2.4)$$

wobei  $X_a$  das Massenmischungsverhältnis nach bzw.  $X_b$  das vor der Advektion bezeichnet.  $\alpha$  wird dabei so gewählt, daß die globale Masse vor und nach der Anwendung des Fixers konstant ist.

$$\int X_f \rho_f dV = \int X_b \rho_b dV \quad . \quad (2.5)$$

In der ursprünglichen Version des Fixers wurde  $F(\tilde{\eta}) = 1$  gewählt und  $\beta = 3/2$  (Rasch und Williamson, 1990b).

Durch die Anwendung des Fixers wird die Massenerhaltung der prognostischen Größen erzwungen. Ein großer Nachteil dieses Verfahren ist dabei das Auftreten von künstlichen

Tracertransporten, wobei besonders Schwierigkeiten bei starken Gradienten auftreten. Dies sei an einem Beispiel erklärt: Um die globale Masse zu erhalten, müssen die prognostizierten Massenmischungsverhältnisse mit der Dichte multipliziert werden. Da die größten Korrekturen dort durchgeführt werden, wo das Massenmischungsverhältnis und der Gradient am größten sind, werden bei einem stratosphärischen Tracer kleine Änderungen in Bodennähe mit großen Änderungen in den oberen Schichten korrigiert. Als Folge davon kommt es zu stark artifiziellen Ferntransporten, die zu unrealistisch hohen oder niedrigen Konzentrationen führen und somit wiederum die weiteren Rechnungen verfälschen können.

Rasch et al. (1995) führten eine korrigierte Version des Fixers ein, um den starken künstlichen Vertikaltransport zu verringern. In der neueren Version wird der Korrekturterm näherungsweise durch die Dichte skaliert, indem  $F(\tilde{\eta})$  durch die Hybridkoordinate  $\tilde{\eta}$  ersetzt wird. Eine weitere Änderung zur ursprünglichen Version ist die Wahl von  $\beta = 1$ . In ECHAM4 besteht die Möglichkeit, den advektiven SLT der Tracer ohne Fixer mit der ursprünglichen sowie mit der korrigierten Version zu rechnen. Sensitivitätstests zeigten dabei, daß die korrigierte Version zwar eine Verbesserung gegenüber der ursprünglichen darstellt, jedoch weiterhin künstliche Ferntransporte bei starken Gradienten auftreten. Auf Grund der aufgezeigten Schwierigkeiten des SLT- und des Fixing-Verfahrens, insbesondere bei starken Gradienten, müssen die advehierten Tracerfelder kritisch betrachtet werden. Ferner sollten bei der Interpretation von Tracer-Experimenten die Unsicherheiten durch artifizielle Ferntransporte mitberücksichtigt werden.

### 2.1.2 Berücksichtigung des Aerosols im Strahlungsmodell

In der ECHAM4-Standardversion werden, wie in den vorhergehenden Modellversionen, vier Aerosolklassen entsprechend der von Tanre et al. (1984) für das ECMWF-Modell in T21 Auflösung ausgetesteten Klimatologie verwendet. Die erste Klasse repräsentiert dabei eine Kombination von kontinentalem und mineralischem Aerosol. Die zweite Klasse beschreibt Seesalz (NaCl), die dritte Klasse urbanes Aerosol und die vierte das stratosphärische Hintergrundaerosol. Eine weitere, fünfte Klasse von Tanre et al. (1984), die vulkanische Asche behandelt, wird nicht verwendet.

In ECHAM4 besteht darüber hinaus optional die Möglichkeit, den Strahlungsantrieb verschiedener Aerosolklassen zu berechnen. Die von dem Strahlungsmodell benötigten optischen Größen werden durch normierte optische Parameter des Absorptions-, des Extinktionskoeffizienten und des Asymmetriefaktors, die sich aus der Mierechnung und einer vorgegebenen Lognormalverteilung ableiten lassen, sowie durch das Massenmischungsverhältnis  $X$  berechnet (R. van Dorland, pers. Mitteilung).

Der Vorteil dieses hier beschriebenen Ansatzes ist, daß über die Massenmischungsverhältnisse Aerosoltracer in der Strahlungsberechnung mitberücksichtigt werden können und somit interaktive Simulationen des Aerosolforcings möglich sind. Optische Parameter und Umrechnungsfaktoren werden für die 11 Klassen der GADS<sup>7</sup>-Klimatologie (Koepke et al., 1997) im Modell zur Verfügung gestellt. Sie sind in der Tabelle 2.1 zusammengefaßt. Zusätzlich zu den 11 Klassen der GADS-Klimatologie ist eine 12., nicht spezifizierte

---

<sup>7</sup>GADS: Global Aerosol Data Set

Aerosolkomponente	WT [%]	$r_m$ [ $\mu\text{m}$ ]	$\sigma_s$	$\rho$ [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ]
Staub	80	0.471	2.512	2.0
Wasser löslich	80	0.031	2.239	1.8
Ruß	80	0.0118	2.0	2.3
Seesalz (Nuc.)	80	0.052	2.03	2.2
Seesalz (Acc.)	80	0.416	2.03	2.2
Seesalz (Coa.)	80	3.492	2.03	2.2
Mineral (Nuc.)	80	0.07	1.95	2.6
Mineral (Acc.)	80	0.39	2.00	2.6
Mineral (Coa.)	80	1.90	2.15	2.6
Mineral (Trans.)	80	0.4	1.6	2.6
Sulfataerosol	25	0.0838	2.03	1.7

Tabelle 2.1: Aerosolklassen der GADS-Klimatologie (Koepke et al., 1997). WT bezeichnet die  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration in der jeweiligen Aerosolkomponente, Nuc. den Nukleationmode, Acc. den Akkumulationsmode und Coa. die großen Teilchen (Coarsemode). Trans. kennzeichnet das transportierte mineralische Aerosol.

Klasse im Modell vorgegeben.

Die im Strahlungsmodell berücksichtigte optische Dicke  $\tau_{\nu\text{Aero}}$  wird dann als Summe über alle betrachteten Aerosolklassen berechnet.

$$\tau_{\nu\text{Aero}} = \sum_{\text{Klassen}} \bar{E}_{\nu} \times C_F \frac{\Delta p}{g} \quad (2.6)$$

wobei  $X$  das Massenmischungsverhältnis,  $\bar{E}_{\nu}$  die normierte Extinktion in [ $\text{cm}^2/\text{Teilchen}$ ],  $g$  die Schwerebeschleunigung und  $\Delta P$  die Druckdifferenz in einer Schicht kennzeichnet.  $C_F$  ist ein Konversionsfaktor, der das Aerosolmassenmischungsverhältnis von [ $\text{kg}/\text{kg}$ ] in [ $\text{Teilchen}/\text{g}$ ] umrechnet und ebenfalls von der gewählten Größenverteilung des Aerosols abhängt. Für ihn gilt :

$$C_F = \frac{10^{12}}{\frac{4}{3}\pi r_m^3 \rho \exp\left(\frac{9}{2}(\ln \sigma_s)^2\right)} \quad (2.7)$$

mit  $r_m$  dem Moderadius in [ $\mu\text{m}$ ],  $\sigma_s$  der Standardabweichung der vorgegebenen Lognormalverteilung und  $\rho$  der Aerosoldichte in [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ].

Für das Sulfataerosol sind die optischen Parameter in Abhängigkeit von der relativen Feuchte vorgegeben. Es wird dabei zwischen folgenden relativen Feuchteklassen (RH) unterschieden:  $\text{RH} < 25\%$ ,  $\text{RH} < 60\%$ ,  $\text{RH} < 75\%$ ,  $\text{RH} < 85\%$ ,  $\text{RH} < 92.5\%$ ,  $\text{RH} < 96.5\%$ ,  $\text{RH} < 98.5\%$ ,  $\text{RH} < 100\%$ .

In dieser Arbeit wird gezeigt, daß die vorgegebenen optischen Parameter für stratosphärisches Sulfataerosol nicht geeignet sind, siehe hierzu Kapitel 5.

## 2.2 Der troposphärische Schwefelkreislauf

Für das Hamburger Klimamodell ECHAM ist von Feichter et al. (1996) ein Modell des troposphärischen Schwefelkreislaufes entwickelt worden.

Der troposphärische Schwefelkreislauf behandelt Transport, Emission, Chemie sowie die nasse und trockene Deposition von Dimethylsulfid (DMS), Schwefeldioxid ( $\text{SO}_2$ ) und Sulfataerosol ( $\text{SO}_4^{2-}$ ).

Die Größenverteilung des Sulfataerosols wird dabei nicht explizit behandelt, sondern durch einen Bulkansatz parameterisiert. Für die Berechnung von optischen Eigenschaften der Aerosolteilchen wird daher in Feichter et al. (1997) eine Schwefelsäurekonzentration von 75% sowie eine Teilchendichte von  $1.7 \text{ g/cm}^3$  angenommen. Die Größenverteilung wird durch eine Lognormalverteilung mit einem Moderradius von  $r_m = 0.07 \mu\text{m}$  und einer Standardabweichung von  $\sigma_s = 2.03$  für trockenes Aerosol bzw. mit  $r_m = 0.118 \mu\text{m}$  für 80% relative Feuchte beschrieben.

DMS wird bei Tage mit OH oxidiert und in der Nacht mit  $\text{NO}_3$ . Als einziges Endprodukt der DMS-Oxidation wird dabei  $\text{SO}_2$  angenommen. Die Oxidation von  $\text{SO}_2$  zu  $\text{SO}_4^{2-}$  erfolgt in der Gasphase mit OH, während in der Flüssigphase  $\text{SO}_2$  mit  $\text{H}_2\text{O}_2$  und  $\text{O}_3$  oxidiert wird. Unter Berücksichtigung des Henry'schen Gesetzes wird dabei die Löslichkeit und der Dissoziationskoeffizient von  $\text{SO}_2$  in Wolkenwasser berechnet.

Die trockene Deposition von  $\text{SO}_2$  und  $\text{SO}_4^{2-}$  wird in Abhängigkeit von der Konzentration der Spezies in der untersten Modellschicht und von ihrer Depositionsgeschwindigkeit berechnet. Die trockene Depositionsgeschwindigkeit von  $\text{SO}_2$  ist vom Bodentyp abhängig und beträgt  $0.6 \text{ cm/s}$  über Land,  $0.8 \text{ cm/s}$  über Wasser und  $0.1 \text{ cm/s}$  über Schnee. Für Sulfataerosol wird eine konstante Depositionsgeschwindigkeit von  $0.2 \text{ cm/s}$  vorgeschrieben (Feichter et al., 1996). Das 'Rainout', also die Aufnahme gelöster Schwefelkomponenten in Wolkenröpfchen, wird unter Verwendung der vom Modell erzeugten Niederschlagsbildungsrate nach Giorgi und Chameides (1986) berechnet. Dieses Scavenging-Schema wurde anhand der Radionuklide,  $^{210}\text{Blei}$  und  $^7\text{Beryllium}$ , die sich an vorhandene Aerosole anlagern, erfolgreich ausgetestet (Brost et al., 1991; Feichter et al., 1996). Die Entfernung von  $\text{SO}_2$  und  $\text{SO}_4^{2-}$  durch Niederschlagsselemente unterhalb der Wolken, das sogenannte 'Washout', ist nach einer Näherung von Berge (1993) parameterisiert.

In dem Modell werden natürliche und anthropogene Emissionen berücksichtigt, wobei die anthropogenen Emissionen 72% der Gesamtmasse des Schwefels betragen. Anthropogene und vulkanische Emissionen werden als  $\text{SO}_2$  freigesetzt, während die natürlichen Emissionen aus dem Ozean, dem Boden und den Pflanzen in Form von DMS emittiert werden. Die geographische Verteilung der vulkanischen Quellen ist Spiro et al. (1992) entnommen, die Quellstärke entstammt Graf et al. (1997). Die vulkanischen Emissionen werden dabei in 3 Schichten, am Boden und am oberen Rand der Vulkane, sowie zwischen  $5 \text{ km} - 8 \text{ km}$  Höhe freigesetzt. Die  $\text{SO}_2$ -Emissionen durch Verbrennung fossiler Brennstoffe und Industrieabgase sind auf das Jahr 1985 bezogen. Sie berücksichtigen unterschiedliche Datensätze für die vier Jahreszeiten (Benkovitz et al., 1994). Eine Gesamtübersicht der globalen Schwefelemissionen ist in Tabelle 2.2 zu finden.

Berechnete und jährlich gemittelte Bodenkonzentrationen von  $\text{SO}_2$  und  $\text{SO}_4^{2-}$  sowie der Anteil von  $\text{SO}_4^{2-}$  im Regen liegen mit einem Faktor von  $\pm 2$  im Bereich der Beobachtungen (Feichter et al., 1996). Die globale Verteilung von Sulfat spiegelt dabei im wesentlichen

Spezies		Quelle	Referenz	Mt S/a
Natürlich:	DMS	Marine Biosphäre	(Bates et al., 1987)	18.1
	DMS	Terrestrische Biosphäre	(Spiro et al., 1992)	0.9
	SO <sub>2</sub>	Stille Entgasung und eruptive Vulkane	(Spiro et al., 1992) (Graf et al., 1997)	8.0
Anthropogen:	SO <sub>2</sub>	Biomassenverbrennung	(Hao et al., 1990)	2.5
	SO <sub>2</sub>	Verbrennung fossiler Brennstoffe und Industrieabgase	Benkovitz et al. (1994)	66.8
Summe:				96.3

Tabelle 2.2: Globale Schwefelemissionen in [Mt S] pro Jahr nach Feichter et al. (1997).

die Quellstärke der anthropogenen Emissionen mit Maxima über Ostasien, Zentraleuropa und der Ostküste Nordamerikas wider, wobei in der Südhemisphäre deutlich der Einfluß durch Biomassenverbrennung zu erkennen ist. Ein wesentliches Merkmal der Rechnungen mit dem Schwefelkreislauf ist, daß auf Grund der niedrigen Konzentration der Oxidantien in mittleren und hohen Breiten im Winter die Sulfatkonzentrationen trotz höherer Emissionen wesentlich geringer sind als im Sommer.

# Kapitel 3

## Das mikrophysikalische Modell

Stratosphärisches Aerosol besteht hauptsächlich aus unterkühlten  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Teilchen. Spuren von anderen Komponenten wie Ammoniumsulfat und Meteoritenstaub sind ebenfalls nachgewiesen worden (Bigg, 1975; Cadle und Kiang, 1977). Die Schwefelsäurekonzentration der Aerosolteilchen variiert mit der geographischen Breite und der Jahreszeit um Gewichtsprozent in der Größenordnung von 55% bis 86% (Yue et al., 1994).

Vertikale Meßprofile, die mit ballongestützten Instrumenten gewonnen worden sind, zeigen, daß die Teilchenkonzentration für das Hintergrundaerosol in dem Bereich von  $0.1 \text{ Teilchen/cm}^3 - 5 \text{ Teilchen/cm}^3$  liegt (Russel et al., 1981; Hofmann und Rosen, 1981). Die Teilchenradien liegen in dem Bereich von  $0.003 \mu\text{m} - 1 \mu\text{m}$ , die Größenverteilung selbst ist monomodal mit Modalradien um  $0.075 \mu\text{m}$  (Pinnick et al., 1976; Russel et al., 1981a). Nach starken vulkanischen Ausbrüchen wurden bimodale und trimodale Größenverteilungen beobachtet (Russel et al., 1993) und 100-fache höhere Volumenkonzentrationen gemessen (Borrmann et al., 1993). Die zeitlich variable, über mehrere Größenordnungen gehende Größenverteilung und Zusammensetzung des stratosphärischen Aerosols verkompliziert seine Modellierung gegenüber monodispersen chemischen Stoffen.

Um die Rolle des stratosphärischen Aerosols in dem atmosphärischen System zu verstehen, sind in den letzten dreißig Jahren einige Aerosolmodelle mit detaillierter Mikrophysik entwickelt worden. Ein guter Überblick über die verschiedenen stratosphärischen Aerosolmodelle bis zum Ende der Siebziger Jahre ist bei Whitten et al. (1980) zu finden. Turco et al. (1979a,b) und Toon et al. (1979a,b) entwickelten das zu der Zeit ausgereifteste Modell, welches die wichtigsten Eigenschaften des Hintergrundaerosols wiedergibt. Es wird im folgenden als Turco/Toon-Modell bezeichnet. Das originale eindimensionale Turco/Toon-Modell wurde in den folgenden Jahren auf ein multidimensionales Modell erweitert (Toon et al., 1988). Zhao (1993) ergänzte das Modell um ein homogenes Nukleationsschema. Mikrophysikalische Modelle, die auf dem Turco/Toon-Modell basieren, sind in zweidimensionale (Tie et al., 1994a; Tie et al., 1994b; Bekki und Pyle, 1994) und in dreidimensionale Modelle (Bekki et al., 1997) mit homogener und heterogener Chemie implementiert worden.

Modellierungen des stratosphärischen Aerosols mit mikrophysikalischen Modellen, die mit Klimamodellen gekoppelt sind, existieren zum gegenwärtigen Zeitpunkt jedoch nicht. Das in diesem Kapitel vorgestellte mikrophysikalische Modell ist als Teil eines stratosphärischen mikrophysikalischen chemischen Modells für die Anwendung im Klimamodell

entwickelt worden.

Im folgenden wird zunächst das Modell sowie der dabei verwendete Datensatz beschrieben und daran anschließend auf die berücksichtigten Prozesse und ihre Parameterisierung näher eingegangen. Die globale Modellierung von stratosphärischem Aerosol mit dem hier vorgestellten mikrophysikalischen Modell wird in Kapitel 6 behandelt.

### 3.1 Modellbeschreibung

Um das mikrophysikalische Modell für die globale Anwendung zu optimieren, werden zunächst nur flüssige  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Tropfen ohne Beimengung anderer Substanzen und ohne festen Kern als Aerosol betrachtet. Aufgabe des mikrophysikalischen Modells ist es, die Bildung und die zeitliche Entwicklung von stratosphärischem Aerosol zu beschreiben. Diese wird durch die Kontinuitätsgleichung ausgedrückt:

$$\frac{\partial n(\mathbf{r}, \vec{x}, t)}{\partial t} + \nabla \cdot (n(\mathbf{r}, \vec{x}, t)\vec{v}) = Q + S \quad . \quad (3.1)$$

$Q$  steht für die Quellen und  $S$  für die Senken und  $n(\mathbf{r})d\mathbf{r}$  gibt die Anzahl der Aerosolteilchen pro Einheitsvolumen an, die im Bereich  $\mathbf{r}+d\mathbf{r}$  liegen. Die gesamte Aerosolteilchenzahl  $N$  pro Einheitsvolumen ergibt sich nach:

$$N = \int_0^\infty n(\mathbf{r})d\mathbf{r} \quad .$$

Der Term  $\nabla \cdot (n\vec{v})$  beschreibt den räumlichen Transport der Teilchen durch Advektion, vertikale Diffusion und Konvektion. Dieser Term kann bei der Entwicklung des mikrophysikalischen Modells vernachlässigt werden, da es für den Einbau in ECHAM4 konzipiert wird, welches eine Routine für den advektiven Transport bereitstellt sowie Konvektion und Diffusion von prognostischen Größen berechnet, siehe Kapitel 2. In der Bilanzgleichung des mikrophysikalischen Modells werden daher nur Quellen und Senken betrachtet:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = Q + S \quad . \quad (3.2)$$

Es sind folgende Quellen und Senken für stratosphärisches Aerosol bekannt:

- Aerosolteilchen aus der Troposphäre
- Nukleation
- Koagulation
- Sedimentation
- Kondensation und Verdampfung von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4$

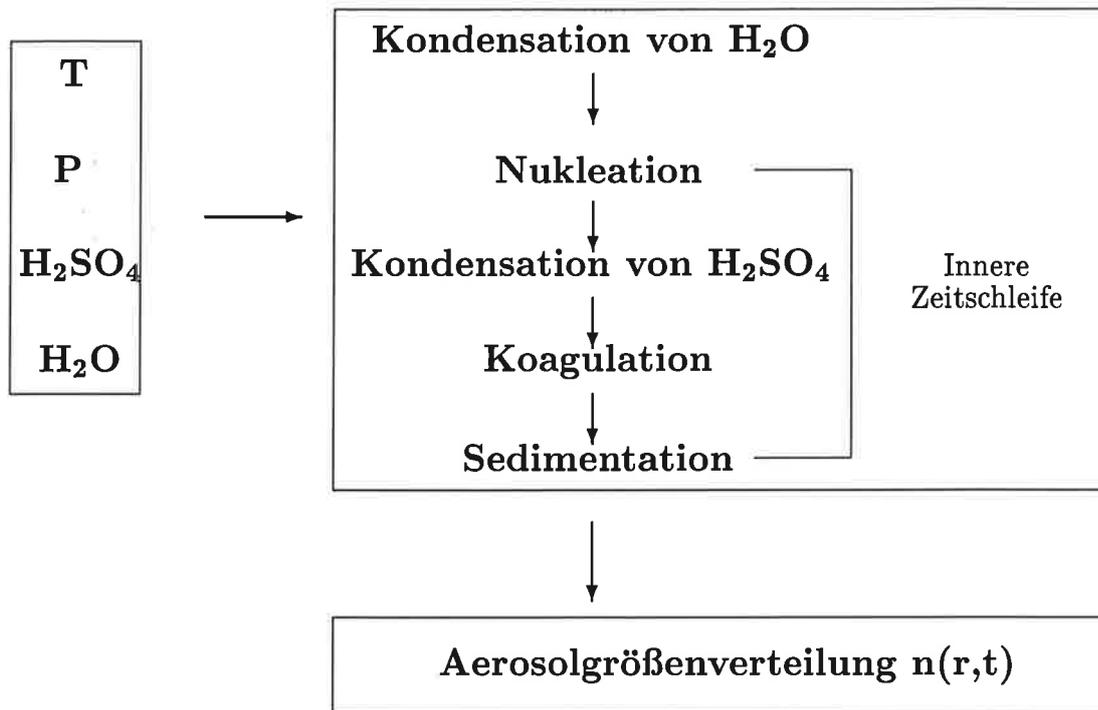


Abbildung 3.1: Schematische Übersicht des mikrophysikalischen Modells

Aerosolteilchen aus der Troposphäre gelangen mittels advektivem Transport durch die Tropopause in die Stratosphäre. In ECHAM4 wird der troposphärische Aerosolteilchen-Fluß durch die Koppelung des mikrophysikalischen Modells mit dem troposphärischen Schwefelkreislauf gelöst, siehe Kapitel 6. Dies ist eine deutliche Verbesserung gegenüber der bei dem Turco/Toon-Modell festgehaltenen CN<sup>1</sup>-Konzentration am Boden von 1200 Teilchen/cm<sup>3</sup>. Für das mikrophysikalische Modell stellen die troposphärischen Aerosolpartikel somit eine zusätzliche externe Quelle dar, die ebenso wie der Transport bei der Entwicklung des mikrophysikalischen Modells zunächst vernachlässigt werden. Es gilt daher für das stratosphärische Aerosol folgende Gleichung zu lösen:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial n}{\partial t}_{\text{Koag.}} + \frac{\partial n}{\partial t}_{\text{Nuc.}} + \frac{\partial n}{\partial t}_{\text{Kond.}} + \frac{\partial n}{\partial t}_{\text{Sed.}} \quad (3.3)$$

Abbildung 3.1 zeigt einen schematischen Überblick über die Struktur des mikrophysikalischen Modells, welches so konzipiert ist, daß es zu jedem Zeitpunkt und an jedem Gitterpunkt aktiviert werden kann.

Temperatur und Druck sind die meteorologischen Eingangsgrößen, Wasserdampf H<sub>2</sub>O und gasförmige Schwefelsäure H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> sind die chemischen. In ECHAM4 ist die relative Feuchte und damit der Wasserdampf eine prognostische Größe. Die Konzentration von gasförmiger Schwefelsäure wird durch ein stratosphärisches Chemiemodul berechnet, welches in Kapitel 6.1 näher beschrieben wird.

<sup>1</sup>CN: Condensation Nuclei, d.h. Teilchen mit Radien  $r > 0.01 \mu m$

Der Zeitschritt ist in dem Modell variabel gehalten, im Normalfall wird mit  $\Delta t = 1800$  s derselbe wie im ECHAM4 T30-Modell verwendet. Aus Performance-Gründen ist das mikrophysikalische Modell in eine äußere und eine innere Zeitschleife aufgeteilt. In der äußeren Zeitschleife werden die zeitunabhängigen Parameter wie Dichte und Konzentration des Aerosols berechnet. In der inneren Zeitschleife, deren Zeitschritt durch das Courant-Levi-Kriterium bestimmt wird, werden die verschiedenen mikrophysikalischen Prozesse simuliert.

Die in dem Modell gewählte Größenverteilung ist ein Kompromiß zwischen größtmöglicher Genauigkeit und Rechenzeitoptimierung. Der Klassenabstand wird dabei nach Kritz (1975) so gewählt, daß sich die Masse verdoppelt:

$$m_{i+1} = 2 m_i \quad i = 1 \dots K \quad , \quad (3.4)$$

wobei  $K$  die Anzahl der Größenklassen angibt. Der Anfangsradius läßt sich aus der Nukleationsberechnung abschätzen, er wird auf  $3 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}$  festgelegt, siehe auch Abbildung 3.3 in Kapitel 3.2.1.

Die weiteren diskreten Radien ergeben sich nach Kritz (1975) durch:

$$r_i = 2^{\frac{i-1}{3}} r_1 \quad . \quad (3.5)$$

Die Aerosolverteilung ist in 44 diskrete Größenklassen aufgeteilt, die einen Bereich von  $3 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}$  bis  $6.2 \mu\text{m}$  umfassen.

Die Aerosolparameter, die nicht direkt berechnet werden können, sind in einer Tabelle in Abhängigkeit von der Temperatur und der Konzentration gespeichert. Die Konzentration der Schwefelsäure wird dabei im folgenden in Gewichtsprozent  $W$  ausgedrückt:

$$W = \frac{n_{\text{H}_2\text{SO}_4} M_{\text{H}_2\text{SO}_4}}{n_{\text{H}_2\text{O}} M_{\text{H}_2\text{O}} + n_{\text{H}_2\text{SO}_4} M_{\text{H}_2\text{SO}_4}} \quad , \quad (3.6)$$

wobei  $n$  für die Anzahl der Mole und  $M$  für das Molekulargewicht der jeweiligen Substanz steht.

Die Aerosoltabelle enthält Werte für die Dichte  $\rho$ , für den Dichtegradienten  $\frac{\partial \rho}{\partial W}$ , für die Oberflächenspannung  $\sigma$ , sowie für die Aktivitäten  $a_{\text{H}_2\text{O}}$  und  $a_{\text{H}_2\text{SO}_4}$ . Um Rechenzeit und Speicherkapazität zu sparen, sind dabei Temperatur und Gewichtsprozent nicht gleichmäßig sondern in den für die Stratosphäre relevanten Bereichen feiner aufgeteilt. In Abbildung 3.2 ist schematisch der Aufbau der Tabelle dargestellt.

Das Modell ist für einen Temperaturbereich von 195 K – 373 K und einen Konzentrationsbereich von 10%–98% anwendbar. Die obere Temperaturgrenze wird durch den Siedepunkt von  $\text{H}_2\text{O}$  für Normaldruck bestimmt, die untere Temperaturgrenze ist so gewählt, daß sie oberhalb der kritischen Temperatur für die Bildung von  $\text{NAT}^2$  liegt und Schwefelsäure noch als unterkühlte Flüssigkeit vorliegen kann. Der Phasenzustand des Schwefelsäureaerosols bei tiefen Temperaturen ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch unklar (Peter, 1996).

Die Daten für die Dichte  $\rho(T,W)$  sind den 'Critical Tables' (Washburn, 1928) entnommen. Sie liegen ebenso wie die Oberflächenspannungsdaten  $\sigma(T,W)$  von Sabinina und

<sup>2</sup>NAT: Nitric acid trihydrate  $\text{HNO}_3 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$

Daten	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> -Konzentration [%]		Temperatur [K]	
	Bereich	Intervall	Bereich	Intervall
$\rho, \frac{\partial \rho}{\partial W}, \sigma, a_{\text{H}_2\text{SO}_4}, a_{\text{H}_2\text{O}}$	0 – 60	1.0		
	60 – 70	0.5		
	70 – 80	0.1	195.15 — 333.15	2.5
	80 – 85	0.5	333.15 — 373.15	5.0
	85 – 100	1.0		

Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der Aerosoltabelle.

Terpugow (1935) nur für Temperaturen  $\geq 273$  K und für wenige Konzentrationen vor. Messungen der Oberflächenspannung und der Dichte für stratosphärische Temperaturen existieren nicht. Um daher Werte für stratosphärische Bedingungen und einen detaillierteren Konzentrationsbereich zu erhalten, werden mit Hilfe der Fortran-Routinen E02CAF und E02CBF der NAG-Bibliothek (1991) die Dichte- und die Oberflächenspannungsdaten zweidimensional an die Literaturwerte angepaßt. In Abbildung A.1 im Anhang sind die inter- und extrapolierten Daten dargestellt.

Die Aktivität  $a_i$  ist ein Maß für das Verhalten von realen Mischungen. Es gilt dabei:

$$a_i = \exp \frac{\overbrace{\mu_i^{\text{sol}} - \mu_i^0}^{\mu_r}}{RT} \quad . \quad (3.7)$$

Die chemischen Potentiale  $\mu_i$  sind definiert als:

$$\mu_i = \mu_i^0 + RT \ln \frac{P_i^{\text{sol}}}{P_i^0} \quad . \quad (3.8)$$

Die Werte für  $\mu_r$  werden Giaque et al. (1960) entnommen. Über die Aktivitäten ist es möglich, den Dampfdruck  $P_i^{\text{sol}}$  über einer ebenen Lösung zu berechnen:

$$P_i^{\text{sol}} = a_i * P_i^0 \quad . \quad (3.9)$$

Der Sättigungsdampfdruck von Wasser  $P_{\text{H}_2\text{O}}^0$  wird dabei nach McDonald (1965) bestimmt. Der Sättigungsdampfdruck der Schwefelsäure  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^0$  wird nach einer von Ayers et al. (1980) aus Messungen im Bereich von 338 K – 445 K abgeleiteten und von Kulmala und Laaksonen (1990) für tiefe Temperaturen modifizierten Formel berechnet.

## 3.2 Prozesse

Im folgenden Abschnitt wird näher auf die im mikrophysikalischen Modell behandelten Prozesse und ihre Modellierung eingegangen. Anhand von Beispielen wird die Bedeutung der einzelnen Prozesse für die Bildung und Entwicklung der Aerosolgrößenverteilung deutlich gemacht.

### 3.2.1 Nukleation

Bei der Nukleation eines binären Systems unterscheidet man zwischen der homogenen Nukleation, dem Entstehen eines neuen Teilchens aus der Dampfphase der beiden Komponenten, und der heterogenen Nukleation, der Kondensation der beiden Komponenten auf einem unlöslichen Kondensationskern beliebiger Zusammensetzung (Seinfeld, 1986). Da in dem mikrophysikalischen Modell nur flüssige  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Aerosoltropfen ohne einen festen Kern betrachtet werden, entfällt die Betrachtung der heterogenen Nukleation. Es ist jedoch geplant, das Modell auf Aerosolteilchen mit unlöslichem Kern auszuweiten, siehe Kapitel 7, so daß dann auch die heterogene Nukleation in der mikrophysikalischen Modellierung mit berücksichtigt werden muß.

Die homogene Nukleation von Dampf in einem Zweikomponentensystem ist zuerst von Flood (1934) untersucht worden, die erste vollständige Theorie dazu wurde von Reiss (1950) veröffentlicht. Berechnungen von Doyle (1961) zeigten, daß sehr geringe Konzentrationen von gasförmiger Schwefelsäure  $\text{H}_2\text{SO}_4$  in der Atmosphäre homogene Nukleation von binären  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Tropfen hervorrufen können. Seitdem sind in den letzten 30 Jahren in der Literatur eine Reihe von Veröffentlichungen zur binären homogenen  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Nukleation erschienen. Diese Arbeiten beschäftigten sich einerseits mit den theoretischen Aspekten der  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Nukleation (Jaeger-Voirol et al., 1987; Jaeger-Voirol und Mirabel, 1988; Mirabel und Jaeger-Voirol, 1988; Kulmala und Laaksonen, 1990) und andererseits mit der Fragestellung, welche Bedeutung die Nukleation in Folge Schwefelemission von Flugzeugen in der oberen Troposphäre und der unteren Stratosphäre (Kärcher et al., 1995; Zhao und Turco, 1995b) sowie allgemein für die stratosphärische Aerosolbildung hat (Hamill, 1975; Hamill et al., 1977 und 1982; Laaksonen und Kulmala, 1991).

So stellten Hamill et al. (1982) und Laaksonen und Kulmala (1991) fest, daß in den mittleren Breiten in der Stratosphäre für Hintergrundbedingungen keine signifikante Nukleation stattfindet. Dagegen ist die Nukleationsrate in den polaren Breiten und in den Tropen hoch genug, um zur Erhaltung der Aerosolschicht beizutragen. Betrachtet man eine durch eine Vulkaneruption gestörte Atmosphäre, so ist auf Grund der hohen Schwefelsäure- und Wasserkonzentrationen die homogene Nukleation der wichtigste Prozeß für die Aerosolbildung, wie Messungen nach dem Pinatuboausbruch mit bis zu 98% flüssigen Aerosolteilchen ohne festen Kern zeigten (Deshler et al., 1992a; Sheridan et al., 1992). Somit ist die Modellierung der homogenen Nukleation notwendig, um die Bildung des stratosphärischen Aerosols sowohl für gestörte als auch für ungestörte Bedingungen vollständig zu beschreiben.

In einem binären System ist die homogene Nukleationsrate bestimmt durch:

$$J = C \exp \left( - \frac{\Delta G^*}{k_B T} \right) \quad (3.10)$$

C ist ein hauptsächlich kinetischer und sich nur langsam verändernder Faktor und i entspricht der Wahrscheinlichkeit einer Fluktuation, ein Teilchen zu bilden, wobei  $\Delta G^*$  das dazugehörige Minimum der durch die Gas-Teilchen-Umwandlung bedingten freien Enthalpieänderung bezeichnet. Die freie Enthalpie zur Bildung eines flüssigen Tropfen

aus einem Zweikomponenten-Dampfgemisch aus Wasser und Schwefelsäure ist nach der klassischen Nukleationstheorie gegeben durch:

$$\Delta G = n_a (\mu_a - \phi_a) + n_b (\mu_b - \phi_b) + 4\pi\sigma r^2 \quad . \quad (3.11)$$

Im folgenden bezieht sich a auf H<sub>2</sub>O und b auf H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, n bezeichnet die Anzahl der Moleküle,  $\sigma$  die Oberflächenspannung,  $\mu$  das chemische Potential in der flüssigen Phase,  $\phi$  das chemische Potential in der Gasphase und r den Radius des Tropfens. Für jede Komponente ist dabei die Änderung des chemischen Potentials von der Gas- zur flüssigen Phase bestimmt durch:

$$\mu_i - \phi_i = -k_B T \ln \frac{P_i}{P_i^{\text{sol}}} \quad , \quad (3.12)$$

wobei  $k_B$  die Boltzmannkonstante,  $P_i$  den Partialdruck und  $P_i^{\text{sol}}$  den Gleichgewichtsdampfdruck über der flüssigen Lösung bezeichnet.  $P_i^{\circ}$  kennzeichnet im folgenden den Gleichgewichtsdampfdruck über der Flüssigkeit i. Es ist allgemein üblich, die freie Enthalpie zur Bildung eines flüssigen Embryos aus der Gasphase als Funktion der relativen Feuchte  $S_a = \frac{P_a}{P_a^{\circ}}$  und der relativen Säure  $S_b = \frac{P_b}{P_b^{\circ}}$ , sowie der Wasseraktivität  $a_a = \frac{P_a^{\text{sol}}}{P_a^{\circ}}$  und der Säureaktivität  $a_b = \frac{P_b^{\text{sol}}}{P_b^{\circ}}$  auszudrücken:

$$\Delta G(n_a, n_b, T) = -n_a k_B T \ln \frac{S_a}{a_a} - n_b k_B T \ln \frac{S_b}{a_b} + 4\pi\sigma r^2 \quad . \quad (3.13)$$

Reiss (1950) und Heist und Reiss (1974) zeigten, daß in dem dreidimensionalen Raum, der durch  $\Delta G$ ,  $n_a$  und  $n_b$  aufgespannt wird, ein Sattelpunkt existiert, der mit einem Minimum in der freien Energiebarriere einhergeht. Hat ein Cluster diesen Sattelpunkt  $\Delta G^*$  erreicht, so kann Nukleation stattfinden und das Teilchen kann wachsen. Aus der Differenzierung von Gleichung 3.13 in Bezug auf  $n_a$  und  $n_b$   $\left(\frac{\partial \Delta G}{\partial n_a}\right)_{n_b, T} = 0$  bzw.  $\left(\frac{\partial \Delta G}{\partial n_b}\right)_{n_a, T} = 0$ , ergeben sich die Kelvingleichungen, die die kritischen Kompositionen  $n_a^*$  und  $n_b^*$  an dem Sattelpunkt bestimmen. Die Kelvingleichungen sind gegeben durch (Nair und Vohra, 1975; Renninger et al., 1981; Wilemski, 1984) :

$$\ln \frac{S_a}{a_a} = \frac{2}{k_B T} \frac{M_a \sigma}{\rho r} \left\{ 1 + \frac{W}{\rho} \frac{d\rho}{dW} \right\} \quad (3.14)$$

$$\ln \frac{S_b}{a_b} = \frac{2}{k_B T} \frac{M_b \sigma}{\rho r} \left\{ 1 - \frac{(1-W)}{\rho} \frac{d\rho}{dW} \right\} \quad . \quad (3.15)$$

Durch gleichzeitiges Lösen der Kelvingleichungen 3.14 und 3.15 kann der kritische Radius  $r^*$  des Nukleus und seine Zusammensetzung  $W^*$  bestimmt werden.

Bei der Lösung der Kelvingleichungen entsteht die Schwierigkeit, daß in der Regel nur T sowie  $S_a$  und  $S_b$  bekannt sind. Die Terme  $\rho, \sigma, \frac{d\rho}{dW}, a_a, a_b$  sind als Funktionen der kritischen Konzentration  $W^*$  unbekannt. Um den kritischen Radius  $r^*$  zu bestimmen, wird daher die Konzentration W in dem Bereich von 10%– 98% variiert und in die Gleichungen

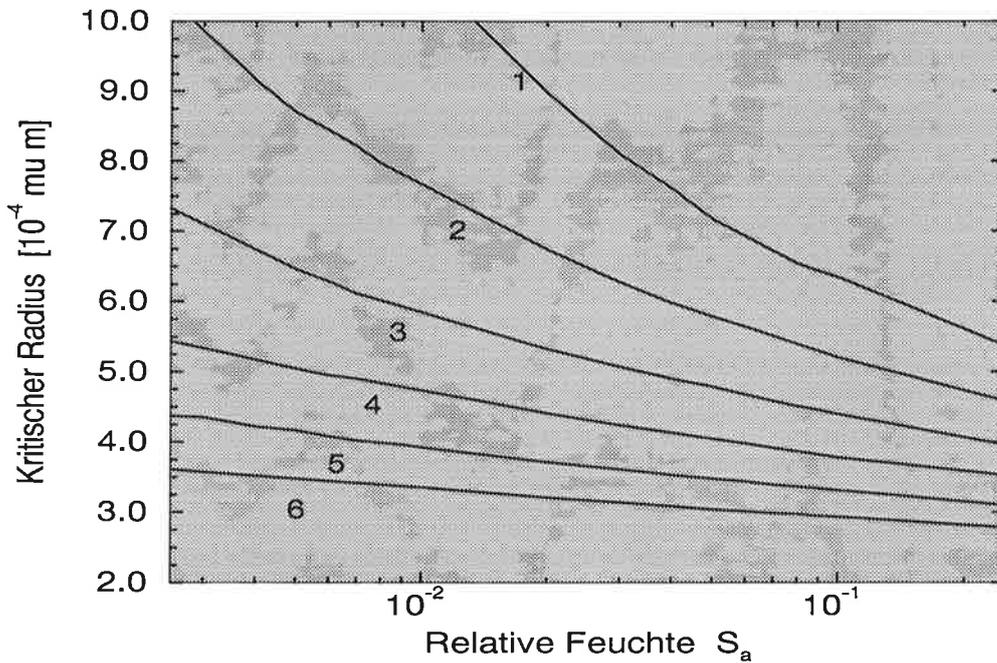


Abbildung 3.3: Kritischer Radius des Nukleus bei einer Temperatur von 216 K in Abhängigkeit von der relativen Feuchte und der relativen Säure: 1.  $S_b = 10^{-2}$ , 2.  $S_b = 10^{-1}$ , 3.  $S_b = 10^0$ , 4.  $S_b = 10^1$ , 5.  $S_b = 10^2$ , 6.  $S_b = 10^3$ .

3.14 und 3.15 eingesetzt. Die für die Berechnung benötigten Werte von  $\rho, \sigma, \frac{d\rho}{dW}$  werden der in Abbildung 3.2 vorgestellten Aerosoltabelle entnommen. Diejenige Konzentration  $W$  für die  $\Delta r$  aus Gleichung 3.14 und 3.15 ein Minimum annimmt, bestimmt die kritische Zusammensetzung und damit die Größe des Tropfens.

In Abbildung 3.3 sind für eine Temperatur von  $T = 216$  K die Radien der kritischen Teilchen als Funktion der relativen Feuchte und der relativen Säure aufgetragen. Typische Werte für die relative Feuchte in der Stratosphäre liegen im Bereich von 0.005 – 0.05, typische Werte für die relativen Säuren zwischen 0.1 und 10. Die Werte für die kritischen Radien befinden sich daher in der Größenordnung von  $5 \cdot 10^{-4} \mu\text{m} - 7 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}$  und liegen damit für stratosphärische Bedingungen oberhalb von  $3 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}$ , also in dem für das mikrophysikalische Modell gewählten Radienbereich. Der Radius des Nukleus wird dabei mit größerer relativer Feuchte und größerer relativer Säure, d.h. für eine konstante Temperatur mit wachsender  $\text{H}_2\text{SO}_4$ - und  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration kleiner. Nach Yue und Hamill (1979) ist der Sattelpunkt in der freien Enthalpie über den kritischen Radius folgendermaßen bestimmt:

$$\Delta G^* = \frac{4}{3} \pi \sigma r^{*2} \quad (3.16)$$

$\Delta G^*$  ist niedriger bei höheren Konzentrationen, wodurch die Wahrscheinlichkeit für die Kernbildung steigt.

Die klassische Nukleationsrate für ein binäres Gemisch aus Wasser und Schwefelsäure ist nach Reiss (1950) bzw. Stauffer (1976) gegeben durch:

$$J = 4\pi r^{*2} (N_a + N_b) Z \frac{\beta_a \beta_b}{\beta_a \sin^2 \vartheta + \beta_b \cos^2 \vartheta} \exp\left(-\frac{\Delta G^*}{k_B T}\right) \quad (3.17)$$

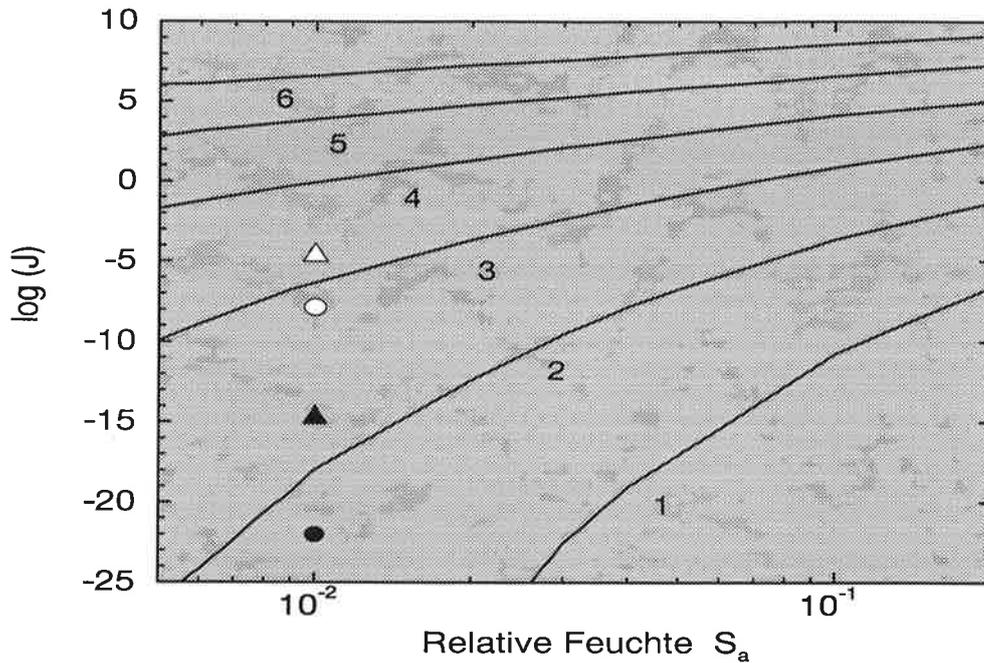


Abbildung 3.4: Nukleationsrate  $J$  [ $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ ] für  $T = 216$  K in Abhängigkeit von der relativen Feuchte und der relativen Säure: 1.  $S_b = 10^{-2}$ , 2.  $S_b = 10^{-1}$ , 3.  $S_b = 10^0$ , 4.  $S_b = 10^1$ , 5.  $S_b = 10^2$ , 6.  $S_b = 10^3$ .  $\Delta$  kennzeichnet die Nukleationsrate für  $10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$   $\text{H}_2\text{SO}_4$  mit  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^0$  nach Kulmala et al. (1992),  $\circ$  die entsprechende für  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^0$  nach Ayers et al. (1980). Die ausgefüllten Symbole entsprechen einer  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration von  $10^5$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ .

$N_b$  bezeichnet dabei die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration in der Gasphase und  $N_a$  die Wasserdampfkonzentration.  $\beta_i$  ist die Stoßrate auf einer Einheitsfläche, für die gilt :

$$\beta_i = N_i \sqrt{\frac{(k_B T)}{2\pi m_i}} \quad , \quad (3.18)$$

wobei  $m_i$  die Masse eines Moleküles der Substanz  $i$  ist.

$Z$  ist ein Nichtgleichgewichtsfaktor analog zu dem Zeldovitchfaktor in einem Einkomponentensystem mit Werten kleiner als 0.5. Kulmala und Laaksonen (1990) erhielten mit Hilfe von Simulationen einen Wert in dem Bereich von 0.016 bis 0.144 mit einem durchschnittlichen Wert von 0.085.  $\vartheta$  ist der Winkel zwischen der Wachstumsrichtung am Sattelpunkt und der  $n_a$  Achse und kann mit guter Genauigkeit durch  $\tan \vartheta = n_b^*/(n_a^* + n_b^*)$  approximiert werden (Mirabel und Jaeger-Voirol, 1988). Ist eine der Komponenten in wesentlich höherer Konzentration vorhanden, wie z.B.  $\text{H}_2\text{O}$  im Vergleich zu  $\text{H}_2\text{SO}_4$  ( $N_b \ll N_a$ ), vereinfacht sich Gleichung 3.17 zu (Mirabel und Clavelin, 1978):

$$J = 4\pi r^{2*} \beta_b N_a \frac{Z}{\sin^2 \vartheta} \exp\left(-\frac{\Delta G^*}{k_B T}\right) \quad . \quad (3.19)$$

In Abbildung 3.4 sind für  $T = 216$  K Nukleationsraten in Abhängigkeit von der relativen Feuchte und der relativen Säure dargestellt. Die Nukleationsrate nimmt dabei sehr stark mit wachsender relativer Feuchte und relativer Säure zu, wobei die relative Änderung bei höheren Feuchte- und Säurewerten geringer ist. Nimmt man z.B. eine relative Feuchte

von 0.01 an, so würde sich bei einer relativen Säure von 0.01 eine Nukleationsrate von  $J = 10^{-18} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$  ergeben, und bei einer 10-fach höheren Säure eine über 10 Größenordnungen höhere Nukleationsrate von  $J = 10^{-6.5} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ . Bei einer Änderung in der relativen Säure um den Faktor 10 von  $S_b = 10$  auf  $S_b = 100$  ändert sich dagegen die Nukleationsrate nur um 4 Größenordnungen von  $10^{-1} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$  auf  $10^3 \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ .

Eine der Unsicherheiten bei der Berechnung der Nukleationsrate ist der Sättigungsdampfdruck über der reinen Schwefelsäure  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^0$  (Hamill et al., 1982; Kulmala und Laaksonen, 1990).

Anhand von Abbildung 3.4 läßt sich zeigen, wie sensibel die Nukleationsrate auf die Wahl des Sättigungsdampfdruckes  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^0$  reagiert. Betrachtet man typische stratosphärische Bedingungen mit einer relativen Feuchte von 1%, was einem Dampfdruck von  $P_{\text{H}_2\text{O}} \approx 3 \cdot 10^{-4} \text{ hPa}$  entspricht, so würde eine  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration von  $10^5$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  mit dem Sättigungsdampfdruck nach Kulmala et al. (1992)  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^{0k}$  eine relative Säure von  $S_b = 0.175$  und damit eine Nukleationsrate von  $J = 2.7 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$  ergeben. Mit dem nach Ayers et al. (1980) abgeleiteten Sättigungsdampfdruck  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^{0a}$  ergibt sich entsprechend eine relative Säure von  $S_b = 5.8 \cdot 10^{-2}$  und damit eine Nukleationsrate von  $J = 9.67 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ .

Die Nukleationsraten nach der von Kulmala et al. (1992) hergeleiteten Formel für  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^0$  liegen bei stratosphärischen Temperaturen um mehrere Größenordnungen höher, da  $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^{0k} < P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^{0a}$ , wobei die Differenz bei höheren  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentrationen und höheren Temperaturen geringer wird. Weitere Unsicherheiten bei der Berechnung der Nukleationsrate sind die für stratosphärische Temperaturen fehlenden Meßdaten von  $\sigma$  und  $\rho$ . Besonders die Oberflächenspannung  $\sigma$  ist ein kritischer Parameter, da nach Gleichung 3.14, 3.15 und 3.16  $\Delta G \propto \sigma^3$  ist und sich somit kleine Abweichungen in der Oberflächenspannung entscheidend auf die Nukleationsrate auswirken.

Eine Nukleationsrate von  $2.7 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ , wie sie nach Abbildung 3.4 für typisch stratosphärische Bedingungen vorliegt, würde bedeuten, daß alle  $1.2 \cdot 10^7$  Jahre ein Teilchen pro Kubikmeter entsteht und somit die homogene binäre Nukleation für die Aerosolbildung vernachlässigbar ist. Ist die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration jedoch nur um einen Faktor 10 höher, so liegt die Nukleationsrate bei  $3.6 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ , was einer Zeit von 4.16 Jahren für die Bildung eines Partikels pro Kubikmeter entspricht. Es zeigt sich damit, daß die Höhe der Nukleationsrate und damit die Bedeutung der Nukleation für die stratosphärische Aerosolbildung entscheidend von der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ - und der  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration abhängt.

Neben der Abhängigkeit von den Umgebungsbedingungen ist die Höhe der Nukleationsrate im entscheidenden Maße auch von der theoretischen Formulierung abhängig, wie im folgenden erläutert wird.

So liegen  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Moleküle in der Atmosphäre nicht frei vor, sondern sind von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen umgeben und bilden Clusterformationen, sogenannte Hydrate. Dieser Effekt ist u.a. von Heist und Reiss (1974), Shugard et al. (1974), Jaeger-Voirol et al. (1987), Jaeger-Voirol und Mirabel (1988) und Kulmala et al. (1991) untersucht worden. Betrachtet man den Einfluß von Hydraten auf die Kernbildung, so haben diese einen zweiseitigen Effekt. Zum einen werden durch die Bildung von stabilen Hydraten weniger Cluster-Zusammenstöße benötigt, um einen kritischen Cluster zu bilden, zum anderen

erniedrigen die Hydrate den Partialdruck der gasförmigen Schwefelsäure signifikant. Der letztere Effekt überwiegt den ersteren, so daß durch Hydratbildung die Nukleationsrate um einen Faktor von  $10^5$ – $10^6$  verringert werden kann (Mirabel und Jaeger-Voirol, 1988). Auf die Theorie der Hydratbildung wird ausführlich in Anhang B.1 eingegangen. Unter Berücksichtigung der Bildung von (h,1) Hydraten mit einem  $H_2SO_4$ -Molekül und h  $H_2O$ -Molekülen wird die Nukleationsrate nach Jaeger-Voirol und Mirabel (1988) zu:

$$J = \underbrace{\sqrt{(8\pi k_B T)} \sum (r + r_h)^2 \tilde{m}^{-\frac{1}{2}} N_h N_a \frac{Z}{\sin^2 \vartheta}}_1 \underbrace{\left[ \frac{1 + \dot{K}_1 P_a^{\text{sol}} + \dots + \dot{K}_1 \dot{K}_2 \dots \dot{K}_h (P_a^{\text{sol}})^h}{1 + \dot{K}_1 P_a + \dots + \dot{K}_1 \dot{K}_2 \dots \dot{K}_h (P_a)^h} \right]^{n_b}}_2 \underbrace{\exp\left(-\frac{\Delta G^*}{k_B T}\right)}_3 \quad (3.20)$$

$N_h$  kennzeichnet dabei die Hydratkonzentration in der Gasphase. Der erste Term berücksichtigt den kinetischen Effekt, wobei  $\tilde{m}$  die reduzierte Masse des kritischen Embryos und des Hydrates und  $r_h$  der Hydratradius ist. Die Summe geht über alle Hydrate (h,1) einschließlich  $h = 0$ . Der zweite Term mit  $\dot{K}$  beschreibt die Korrektur, die sich aus der Hydrat-Clusterbildung mit der Gleichgewichtskonstanten  $\dot{K}$  für die Hydratbildung ergibt. Der dritte Term entspricht dem exponentiellen Term in der Nukleationsrate ohne Hydratbildung, siehe Gleichung 3.19.

In dem mikrophysikalischen Modell wird die Nukleationsrate nach der Hydrattheorie parameterisiert, in dem die klassische Nukleationsrate um den Faktor  $10^{-6}$  reduziert wird. Dieser einfache Parameterisierungsansatz wurde gewählt, da die Simulation der Nukleation unter Berücksichtigung der Hydratbildung sehr rechenzeitintensiv, und damit in der globalen Modellierung nicht zu realisieren ist. Desweiteren haben Laboruntersuchungen gezeigt, daß Hydrattheorie und Messungen über mehrere Größenordnungen voneinander abweichen. Es ist daher in der Literatur üblich, einen Korrekturfaktor  $t_n$  einzuführen, um Messungen und Theorie in Übereinstimmung zu bringen. Die Werte für diesen empirischen Faktor differieren dabei über mehr als zehn Größenordnungen. Wyslouzil et al. (1991) geben z.B. einen Wert von  $10^{-5}$  für  $t_n$  an. Auf der anderen Seite schlagen Raes et al. (1992) für  $t_n$  einen Wert in dem Bereich von  $10^4$  bis  $10^7$  und Weber et al. (1994) einen Wert von  $10^8$  vor. In den letzten Jahren sind daher einige Arbeiten erschienen, die versuchten, die Widersprüche zwischen Experiment und Theorie zu lösen. So ergaben z.B. Untersuchungen von Wyslouzil und Wilemski (1996) das Auftreten einer zeitlichen Verzögerung (time-lag) bei der binären homogenen Nukleation. Da sich diese Verzögerung jedoch auf Zeitskalen innerhalb weniger Sekunden einstellt, kann dieser Ansatz bei der globalen Modellierung vernachlässigt werden.

Auf eine weitere Fehlermöglichkeit wiesen Girshick und Chiu (1990) und Girshick (1991) hin, die zeigten, daß die freie Enthalpie für die Gas-Teilchenbildung nicht in sich konsistent ist, da für ein gegebenes Monomer  $\Delta G$  nicht gleich Null wird. Ein in sich konsistenter Ausdruck der in Gleichung 3.13 gegebenen freien Enthalpie für die Bildung eines flüssigen Tropfen aus einem binären Dampfgemisch wird nach Kulmala et al. (1992) erhalten, indem bei der Berechnung von  $\Delta G$  die freie Enthalpie eines virtuellen Monomers abgezogen wird. Der virtuelle Monomer ist dabei aus  $(1-\bar{X})$  Anteilen des Moleküles a und

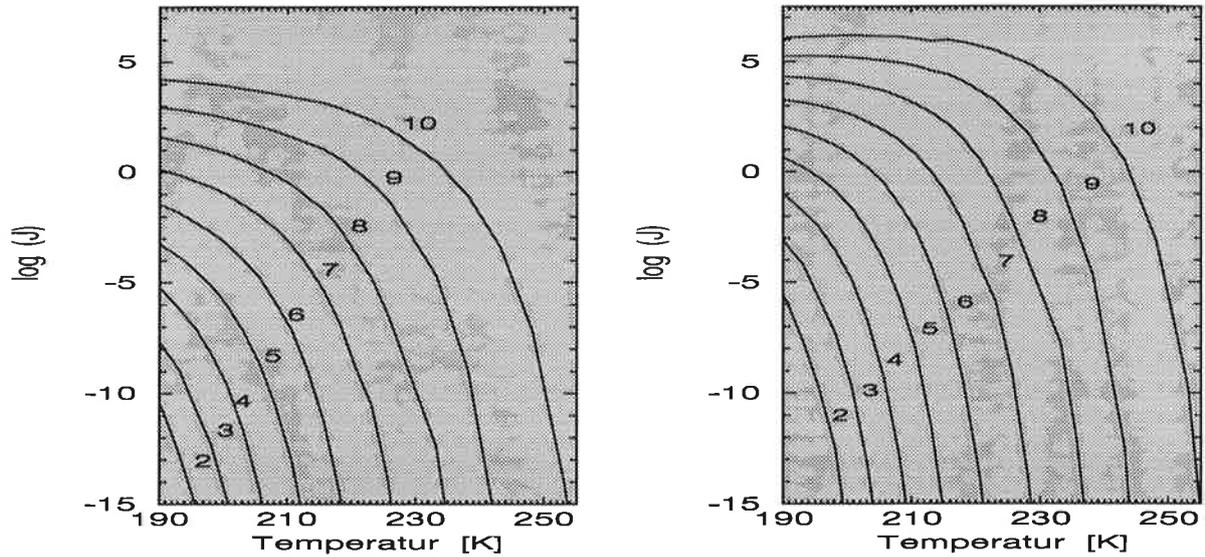


Abbildung 3.5: Nukleationsraten  $J$  [ $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$ ] nach der Hydrattheorie mit (rechts) und ohne (links) Berücksichtigung der SCC-Korrektur bei einer konstanten  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration  $P_{\text{H}_2\text{O}} = 2 \cdot 10^4$  hPa in Abhängigkeit von der Temperatur. Scharparameter ist der dekadische Logarithmus der Schwefelsäurekonzentration.

$\tilde{X}$  Anteilen des Moleküles b zusammengesetzt, wobei  $\tilde{X} = \frac{n_b}{n_a + n_b}$ . Für die freie Enthalpie der Gas-Teilchen-Umwandlung ergibt sich dementsprechend:

$$\Delta G_{\text{sc}}(n_a, n_b) = - \left( n_a - (1 - \tilde{X}) \right) k_B T \ln \frac{S_a}{a_a} - (n_b - \tilde{X}) k_B T \ln \frac{S_b}{a_b} \quad (3.21)$$

$$+ (36\pi)^{\frac{1}{3}} \sigma \left( (n_a v_a + n_b v_b)^{\frac{2}{3}} - \left( (1 - \tilde{X}) v_a + \tilde{X} v_b \right)^{\frac{2}{3}} \right),$$

wobei  $v_i$  das Volumen eines Moleküles der Substanz  $i$  kennzeichnet. Der Exponentialterm in der Nukleationsrate kann somit geschrieben werden als:

$$\exp\left(-\frac{\Delta G_{\text{sc}}^*}{k_B T}\right) = \exp\left(-\frac{\Delta G^*}{k_B T}\right) \times \frac{\exp\left(\left(36\pi\right)^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{k_B T} \left[ (1 - \tilde{X}) v_a + \tilde{X} v_b \right]^{\frac{2}{3}}\right)}{\left(\frac{S_a}{a_a}\right)^{1-\tilde{X}} \times \left(\frac{S_b}{a_b}\right)^{\tilde{X}}} \quad (3.22)$$

Unter Berücksichtigung dieser sogenannten SCC<sup>3</sup>-Formulierung sind die Nukleationsraten um drei bis fünf Größenordnungen höher als die Nukleationsrate nach der Hydrattheorie (Kulmala et al., 1992). Dies zeigt auch ein Vergleich der Nukleationsraten nach der Hydrattheorie mit und ohne SCC-Korrektur in Abbildung 3.5. So beträgt z.B. für eine Temperatur von 200 K die Nukleationsrate nach der Hydrattheorie für eine  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration von  $10^5$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  ungefähr  $10^{-5.7} \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$ , während sie mit Berücksichtigung der SCC-Theorie mit  $10^{-1.2} \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$  um 4.5 Größenordnungen höher ist.

<sup>3</sup>SCC: Self Consistency Correction

Für höhere  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentrationen verringern sich die Unterschiede zwischen den beiden Nukleationsansätzen. So nimmt die Nukleationsrate bei einer  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration von  $10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  mit dem SCC-Term von  $10^{-3} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$  um vier Größenordnungen auf  $10^1 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$  zu, entsprechend bei  $10^7$  Moleküle/ $\text{cm}^3$   $\text{H}_2\text{SO}_4$  von einer Nukleationsrate von  $10^1 \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$  um drei Größenordnungen auf  $10^1 \text{ cm}^4\text{s}^{-1}$ .

Bei höheren Temperaturen wird der Unterschied geringfügig größer. So wächst die Nukleationsrate bei  $T = 216 \text{ K}$  und bei einer  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration von  $10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  von  $10^{-12} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$  um über fünf Größenordnungen auf  $10^{-6.5} \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ .

Es zeigt sich somit, daß für bestimmte Bedingungen die Nukleationsrate nach der Hydrattheorie einschließlich der SCC-Formulierung in der Größenordnung der klassischen Nukleationstheorie liegt.

Allgemein wird die Nukleationsrate bei konstanten Partialdrücken für kältere Temperaturen größer, da sich die Werte der Sättigungsdampfdrücke erniedrigen, vergleiche auch Abbildung 3.4, und sich somit die Werte für die relative Feuchte und die relative Säure erhöhen.

Zusammenfassend kann man festhalten, daß es zur Zeit noch nicht gelungen ist, Theorie und Meßergebnisse der binären homogenen Nukleation in Übereinstimmung zu bringen. Die Ursachen für die Widersprüche zwischen Experimenten und Theorie liegen zum einen in den Meßungenauigkeiten und in den theoretischen Ansätzen und zum anderen auch in Unsicherheiten bei den zur Berechnung der Nukleationsrate verwendeten Werten ( $P_{\text{H}_2\text{SO}_4}^0$ ,  $\sigma$ ,  $\rho$ ,  $a_{\text{H}_2\text{O}}$ ,  $a_{\text{H}_2\text{SO}_4}$ ) für stratosphärische Temperaturen.

Bei der Nukleationsberechnung ist somit von Unsicherheiten über mehrere Größenordnungen auszugehen. Die Nukleationstheorie kann daher nur qualitativ Ergebnisse liefern, so z.B. in globalen Anwendungen zwischen Gebieten mit starker und schwacher Teilchenbildung unterscheiden. In Kapitel 4 werden anhand von Sensitivitätsstudien mit dem Boxmodell die Unterschiede in der Aerosolgrößenverteilung bei Verwendung der verschiedenen Nukleationsansätze betrachtet und diskutiert.

### 3.2.2 Heteromolekulare Kondensation

Die stratosphärischen Aerosolteilchen können durch Kondensation bzw. Verdunstung von  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Molekülen wachsen bzw. schrumpfen. Der Wasserdampfdruck über dem Aerosoltropfen ist dabei im Gleichgewicht mit seiner Umgebung (Hamill, 1975; Hamill et al., 1977; Steele und Hamill, 1981):

$$P_{\text{H}_2\text{O}} = P_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{sol}}(W, T) \quad . \quad (3.23)$$

Grund dafür ist, daß für typische stratosphärische Bedingungen die  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration im Bereich von  $10^{12}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  liegt, während die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration mit ungefähr  $10^5$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  (Arnold und Bürke, 1983) um einige Größenordnungen kleiner ist. Für ein Aerosolteilchen ist daher die Wahrscheinlichkeit, auf ein  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekül zu treffen, im Vergleich zu der Wahrscheinlichkeit, auf ein  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Molekül zu treffen, um das  $10^7$ -fache höher. Somit stellt sich das Gleichgewicht nach einer Störung innerhalb weniger Sekunden wieder ein, wenn es durch Kondensation von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  oder durch Änderungen in den Umgebungsbedingungen gestört wird.

Die Kondensation und die Verdunstung von  $\text{H}_2\text{O}$  auf den Aerosolteilchen, das sogenannte Feuchtwachstum, und die Kondensation und Verdunstung von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  werden daher in dem mikrophysikalischen Modell getrennt behandelt. Zunächst wird die Parameterisierung des Feuchtwachstums näher beschrieben, und daran anschließend die Berechnung der Kondensation und Verdunstung von  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

### Kondensation und Verdunstung von $\text{H}_2\text{O}$

Grundvoraussetzung bei der Berechnung des Feuchtwachstums ist, daß die Wasserdampfkonzentration über dem  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Tropfen im Gleichgewicht mit dem Partialdruck von  $\text{H}_2\text{O}$  ist. Der Wasserdampfdruck  $P_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{sol}}$  über einem flüssigen  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Tropfen ist gegeben durch:

$$P_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{sol}} = P_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{sol}} \exp \left( \frac{2M_{\text{H}_2\text{O}}\sigma}{\rho R T r} \left( 1 + \frac{W}{\rho} \frac{d\rho}{dW} \right) \right) \quad (3.24)$$

$P_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{sol}}$  ist der Wasserdampfdruck über einer ebenen Oberfläche,  $M_{\text{H}_2\text{O}}$  das Molekulargewicht von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\left(\frac{W}{\rho} \frac{d\rho}{dW}\right)$  berücksichtigt zusätzliche Lösungseffekte. Die Abhängigkeit des Dampfdruckes vom Radius des kugelförmigen Tropfens wird Kelvineffekt genannt. Die Ursache für den Kelvineffekt ist die Tatsache, daß Moleküle auf einer gekrümmten Oberfläche weniger benachbarte Teilchen haben als auf einer ebenen Oberfläche. Die Anziehungskraft zwischen den einzelnen Molekülen ist somit geringer und es können dadurch mehr Moleküle in die Gasphase entweichen. Als Folge davon ist der Dampfdruck über einer gekrümmten Oberfläche immer größer als der über einer ebenen Oberfläche. Wie in Abbildung 3.6 zu sehen ist, sind für Aerosolteilchen mit Radien  $r > 0.01 \mu\text{m}$  die Dampfdrücke konstant, während für kleine Teilchen der Kelvineffekt eine Rolle spielt. Für typische stratosphärische Bedingungen mit einer Temperatur von 216 K und einem Partialdruck von  $P_{\text{H}_2\text{O}} = 2 \cdot 10^{-4} \text{ hPa}$  würden Aerosolteilchen mit Radien  $r > 0.01 \mu\text{m}$  eine Schwefelsäurekonzentration von 73% besitzen, ein Aerosolteilchen mit einem Partikelradius von  $r = 3 \cdot 10^{-3} \mu\text{m}$  eine Konzentration von 74% und ein Aerosolteilchen mit einem Radius von  $r = 10^{-3} \mu\text{m}$  eine Konzentration von 76%. Die kleinen Partikel besitzen daher auf Grund des Kelvineffektes eine höhere Schwefelsäurekonzentration. Es ist somit für bekannte Umgebungsbedingungen möglich, die Konzentration der Aerosolteilchen über  $P_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{sol}}$  zu bestimmen.

In dem mikrophysikalischen Modell wird die zu dem jeweiligen Zeitschritt vorliegende Schwefelsäurekonzentration  $W$  durch das Minimum von  $(P_{\text{H}_2\text{O}} - P_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{sol}})^2$  bestimmt.

Ändern sich die Umgebungsbedingungen, z.B. die Temperatur, so verändert sich der Gleichgewichtsdampfdruck von  $\text{H}_2\text{O}$  und damit Größe und Gewichtsprozent des Aerosolteilchens. Für kältere Temperaturen nimmt z.B. der Dampfdruck ab. Bei einem konstanten Partialdruck kondensieren Wassermoleküle an der Teilchenoberfläche, um das Gleichgewicht wieder herzustellen. Als Ergebnis wächst das Teilchen und seine relative  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration wird dadurch geringer.

In Abbildung 3.7 sind Konzentrationsänderungen der Teilchen ohne Berücksichtigung des Kelvineffektes als Funktion der Temperatur dargestellt. Die relative Konzentrationsänderung ist dabei für tiefe Temperaturen am stärksten. So nimmt bei einem Parti-

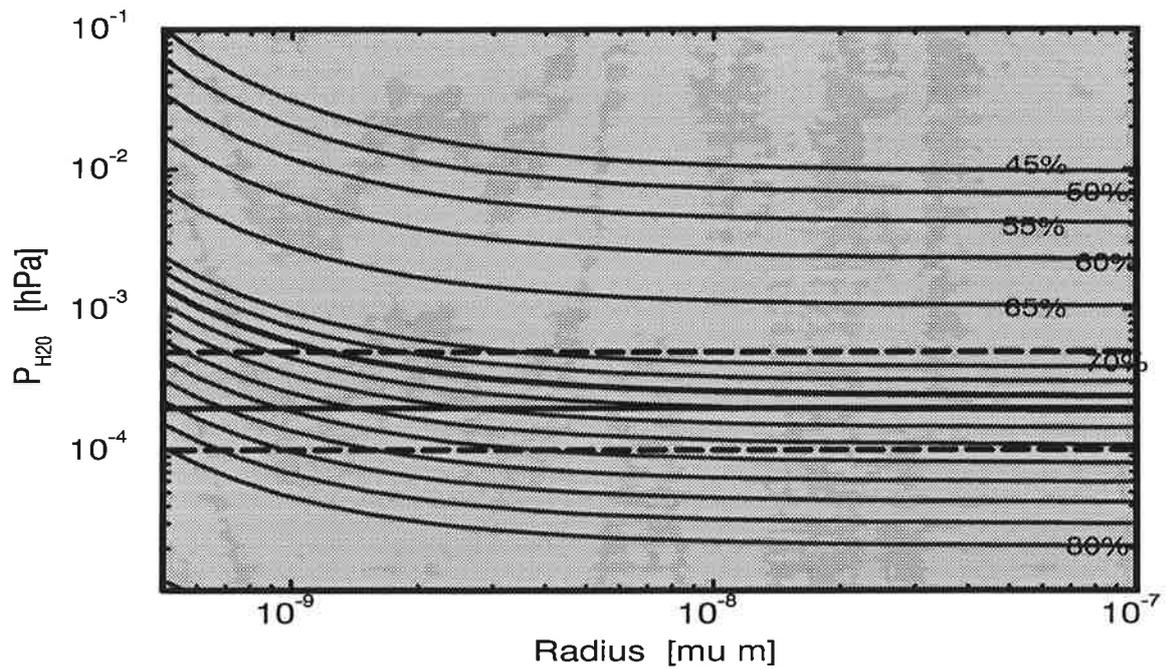


Abbildung 3.6: Wasserdampfkurven für  $T = 216 \text{ K}$  und verschiedene Schwefelsäurekonzentrationen in Abhängigkeit vom Teilchenradius. Die gestrichelten Linien kennzeichnen den Bereich der stratosphärischen Wasserdampfkonzentrationen von  $10^{-4} \text{ hPa}$  bis  $5 \cdot 10^{-4} \text{ hPa}$ . Die durchgezogene Linie markiert einen Partialdruck von  $2 \cdot 10^{-4} \text{ hPa}$ .

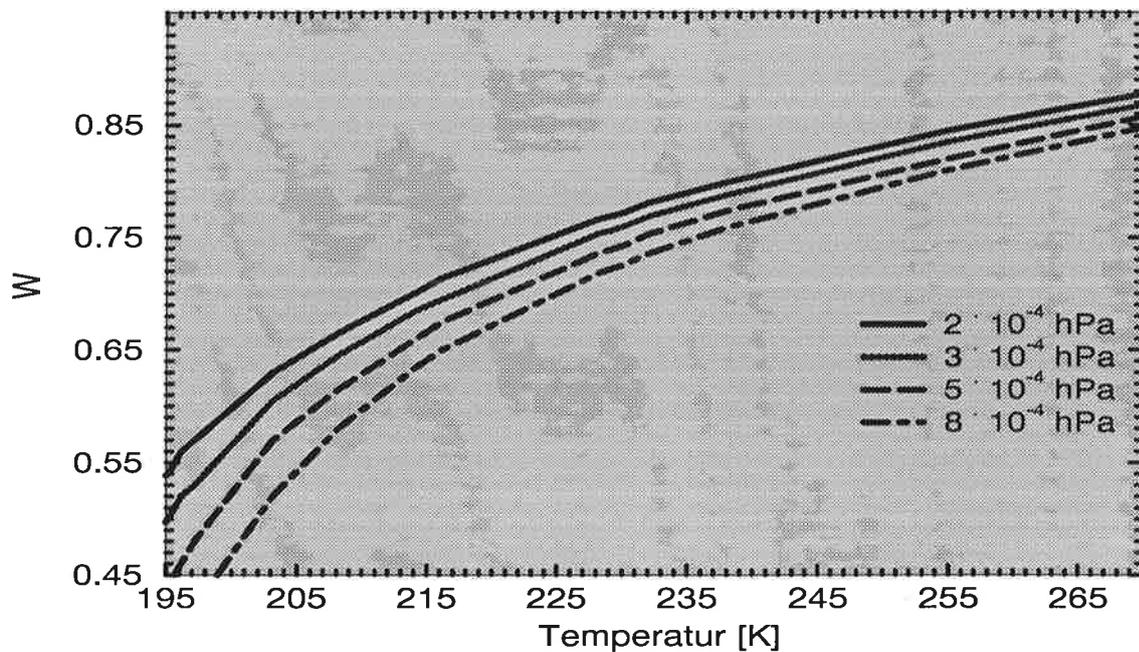


Abbildung 3.7: Abhängigkeit der Schwefelsäurekonzentration von der Temperatur unter Vernachlässigung des Kelvineffektes für verschiedene  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentrationen.

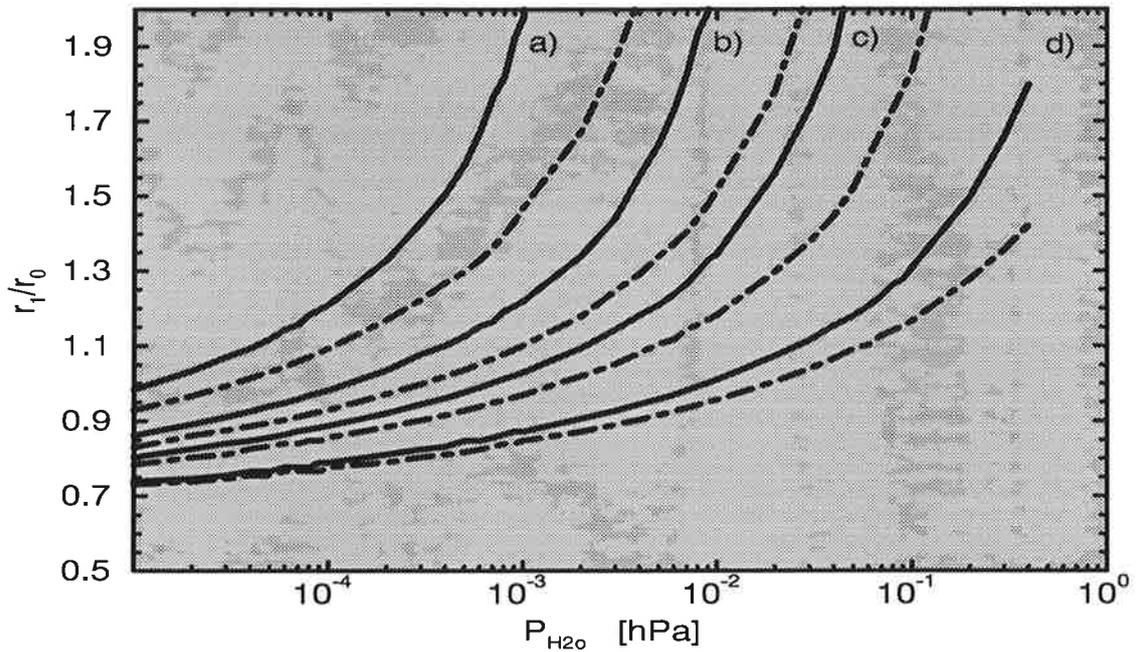


Abbildung 3.8: Relative Größenänderung der Partikel als Funktion des Dampfdruckes für verschiedene Temperaturen a) 200 K, b) 216 K, c) 230 K und d) 255 K. Die durchgezogenen Kurven beziehen sich auf alle Teilchen, für die der Kelvineffekt vernachlässigbar ist ( $r_0 > 0.01 \mu\text{m}$ ). Die gestrichelten Linien sind für Aerosolteilchen mit einem Partikelradius von  $r_0 = 10^{-3} \mu\text{m}$  gültig.

alldruck von  $3 \cdot 10^{-4}$  hPa die Konzentration der Schwefelsäurelösung bei einer Temperaturänderung von 255 K auf 245 K um 2% ab, während die Konzentrationsänderung 7% beträgt, wenn sich die Temperatur von 215 K um 10 K auf 205 K abkühlt.

Die Änderung der Partikelgröße durch Kondensation oder Verdunstung von  $\text{H}_2\text{O}$  kann über die Massenerhaltung der Schwefelsäure berechnet werden. Betrachtet man beispielsweise ein Aerosolteilchen zu einem bestimmten Zeitpunkt  $t_0$ , so besitzt es die Konzentration  $W_0$  und die Dichte  $\rho_0$ . Ändern sich seine Umgebungsbedingungen ( $T, P_{\text{H}_2\text{O}}$ ) zu dem Zeitpunkt  $t_1$ , so ändert sich die Konzentration des Teilchens durch die Anlagerung von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen zu  $W_1$  und seine Dichte zu  $\rho_1$ , während die Anzahl der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Moleküle und damit die Masse der Schwefelsäure im Aerosolteilchen  $m(\text{H}_2\text{SO}_4)_0 = m(\text{H}_2\text{SO}_4)_1$  konstant bleibt. Es gilt somit :

$$m(\text{H}_2\text{SO}_4)_0 = \frac{4}{3}\pi\rho_0 W_0 r_0^3 = m(\text{H}_2\text{SO}_4)_1 = \frac{4}{3}\pi\rho_1 W_1 r_1^3$$

und damit:

$$r_1 = \left( \frac{\rho_0 W_0}{\rho_1 W_1} \right)^{1/3} r_0 \quad . \quad (3.25)$$

In Abbildung 3.8 ist die Änderung der Teilchenradien durch das Feuchtwachstum in Abhängigkeit von dem Partialdruck  $P_{\text{H}_2\text{O}}$  und der Temperatur anhand des normierten Faktors  $r_1/r_0 = \left( \frac{\rho_0 W_0}{\rho_1 W_1} \right)^{1/3}$  dargestellt. Als Normierungsgröße ist dabei die Schwefelsäure-

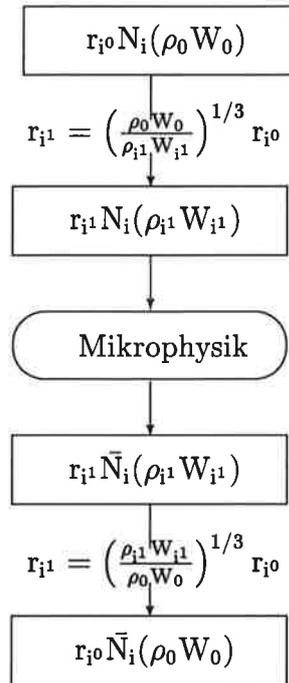


Abbildung 3.9: Schematische Darstellung der Berechnung des Feuchtewachstums durch Skalierung der Größenklassen zu Beginn und am Ende eines Zeitschrittes

konzentration auf  $W_0 = 75\%$  und die Dichte auf  $\rho_0 = 1.7 \text{ g/cm}^3$  festgelegt worden. Diese Werte entsprechen den in dem Schwefelkreislauf verwendeten, siehe Kapitel 2.1.

Aerosolteilchen mit Radien  $r > 0.01 \mu\text{m}$ , für die der Kelvineffekt vernachlässigbar ist (durchgezogene Kurven), wachsen demzufolge bei einem Partialdruck von  $2 \cdot 10^{-4} \text{ hPa}$  um 26%, wenn sich die Temperatur von 216 K auf 200 K abkühlt, bzw. schrumpfen um 14%, wenn sich die Temperatur auf 230 K erwärmt. Ein kleines Teilchen von  $10^{-3} \mu\text{m}$  wächst dagegen bei den entsprechenden Temperaturänderungen nur um 22% bzw. schrumpft um 8%. Das Wachstum der kleinen Teilchen wird durch den Kelvineffekt im Vergleich zu den großen Teilchen verringert, was besonders für tiefe Temperaturen wichtig ist. Die Betrachtung des Kelvineffektes ist daher besonders dann für die Modellierung einer Aerosolgrößenverteilung wichtig, wenn die vollständige Entwicklung vom kritischen Embryo bis hin zu größeren Teilchen beschrieben werden soll.

Für die globale Modellierung muß berücksichtigt werden, daß an den verschiedenen Gitterpunkten unterschiedliche Umgebungsbedingungen vorliegen und sich die Aerosolpartikel so in der Konzentration erheblich unterscheiden können. In dem mikrophysikalischen Modell wird daher Gleichung 3.25 dazu verwendet, die geänderte Teilchengröße durch Kondensation und Verdunstung von  $\text{H}_2\text{O}$  für jeden Zeitschritt zu berechnen. In Abbildung 3.9 ist dies schematisch dargestellt. Normierungsgrößen sind die in Gleichung 3.5 definierten Radien  $r_{i0}$  für die 44 Größenklassen mit einer Schwefelsäurekonzentration von  $W_0 = 75\%$  und einer Dichte von  $\rho_0 = 1.7 \text{ g/cm}^3$ . Zu Beginn jedes Zeitschrittes wird die

neue Gleichgewichtskonzentration  $W_{i1}$  und Dichte  $\rho_{i1}$ <sup>4</sup> aus den Umgebungsbedingungen bestimmt, siehe Abbildung 3.9, und damit die neue Teilchengröße  $r_{i1}$  errechnet.

Die Kalibrierung der Teilchen am Ende eines jeden, und die Rekalibrierung zu Beginn eines jeden neuen Zeitschrittes stellt sicher, daß Massenfehler durch den Transport vermieden werden und daß für jede Teilchenklasse an jedem Gitterpunkt und zu jedem Zeitschritt die jeweilige Gleichgewichtskonzentration vorliegt.

### Kondensation und Verdunstung von $H_2SO_4$

Die Kondensation bzw. Verdunstung von gasförmigen  $H_2SO_4$ -Molekülen auf das Aerosolteilchen wird durch den relativen Fluß des Gases zum Teilchen hin beschrieben. Bei der Berechnung des Flusses unterscheidet man zwischen verschiedenen Kondensationsregimen in Abhängigkeit von der Knudsenzahl  $Kn$ . Die Knudsenzahl  $Kn$  ist durch das Verhältnis zwischen der freien Weglänge der  $H_2SO_4$ -Gasmoleküle  $\tilde{\lambda}_{H_2SO_4}$  und dem Teilchenradius  $r$  bestimmt:

$$Kn = \frac{\tilde{\lambda}_{H_2SO_4}}{r} \quad (3.26)$$

Die freie Weglänge der Schwefelsäuremoleküle  $\tilde{\lambda}_{H_2SO_4}$  ist dabei definiert als (Seinfeld, 1986):

$$\tilde{\lambda}_{H_2SO_4} = \frac{1}{\pi(1+z)^{\frac{1}{2}} N_L d} \quad (3.27)$$

mit  $z = M_L/M_{H_2SO_4}$ .  $N_L$  kennzeichnet dabei die Konzentration der Luftmoleküle und  $d$  den mittleren Kollisionsdurchmesser ( $d = \frac{1}{2}(d_L + d_{H_2SO_4})$ ), der ungefähr 4.68 Å beträgt (Zhao, 1993). Für typische stratosphärische Bedingungen liegt die freie Weglänge der Moleküle mit  $\tilde{\lambda}_{H_2SO_4} \approx 10^{-7}m$  in derselben Größenordnung wie die Radien der Aerosolteilchen, so daß  $Kn \approx 1$  ist. Dieser Bereich wird als Übergangsbereich bezeichnet, da er zwischen den Bereichen liegt, wo einerseits die Gesetze der Hydrodynamik (Kontinuum) ( $Kn \ll 1$ ) und andererseits die der Gaskinetik ( $Kn \gg 1$ ) gelten. Für den Übergangsbereich selbst existiert keine analytisch exakte Lösung. Es wird daher üblicherweise eine Näherung verwendet, die den Kontinuum-Fluß und den gaskinetischen Fluß zusammenbringt.

Für die vorliegenden Rechnungen wird der Fluß der  $H_2SO_4$ -Moleküle auf die Aerosolteilchen nach Fuchs und Sutugin (1971) berechnet, wobei im folgenden  $b$  für  $H_2SO_4$  steht:

$$J = \frac{4\pi r D_b (N_b - N_b^{sol})}{(1 + C(r)Kn)} \quad (3.28)$$

$D_b$  bezeichnet dabei den Diffusionskoeffizienten von  $H_2SO_4$  mit  $D_b = 1/3\tilde{\lambda} c$ , wobei  $c$  die thermische Geschwindigkeit der Moleküle kennzeichnet.  $N_b$  gibt die Konzentration der

<sup>4</sup>Auf Grund des Kelvineffekts sind  $W_{i1}$  und  $\rho_{i1}$  vom Partikelradius abhängig.

Höhe [km]	Temperatur [T]	$N_b^{\text{sol}(55\%)}$ [ $\frac{\text{Moleküle}}{\text{cm}^3}$ ]	$N_b^{\text{sol}(65\%)}$ [ $\frac{\text{Moleküle}}{\text{cm}^3}$ ]	$N_b^{\text{sol}(75\%)}$ [ $\frac{\text{Moleküle}}{\text{cm}^3}$ ]	$N_b^{\text{sol}(85\%)}$ [ $\frac{\text{Moleküle}}{\text{cm}^3}$ ]	$N_b$ [ $\frac{\text{Moleküle}}{\text{cm}^3}$ ]
15	216.5	$3.85 \cdot 10^{-3}$	$5.09 \cdot 10^{-1}$	$9.67 \cdot 10^1$	$1.41 \cdot 10^4$	-
20	216.5	$3.85 \cdot 10^{-3}$	$5.09 \cdot 10^{-1}$	$9.67 \cdot 10^1$	$1.41 \cdot 10^4$	$10^5$
25	221.5	$1.84 \cdot 10^{-2}$	$2.18 \cdot 10^0$	$3.67 \cdot 10^2$	$4.79 \cdot 10^4$	$10^5$
30	226.5	$8.01 \cdot 10^{-2}$	$8.53 \cdot 10^0$	$1.28 \cdot 10^3$	$1.50 \cdot 10^5$	$10^6$
35	236.5	$1.30 \cdot 10^0$	$1.13 \cdot 10^2$	$1.38 \cdot 10^4$	$1.32 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^6$
40	250.4	$4.52 \cdot 10^2$	$3.03 \cdot 10^3$	$2.76 \cdot 10^4$	$2.01 \cdot 10^7$	-

Tabelle 3.1: Konzentration des Schwefelsäuredampfes  $N_b^{\text{sol}}$  in Abhängigkeit von der Höhe. Für die Berechnung wurden Werte der U. S. Standardatmosphäre zu Grunde gelegt. Die Werte für  $N_b$  entstammen Meßprofilen von Arnold und Bührke (1983).

gasförmigen Schwefelsäure und  $N_b^{\text{sol}}$  die Konzentration des  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Dampfes über dem Lösungstropfen an.

Der Zähler entspricht dem Maxwellschen Fluß für das Kontinuum und der Nenner dem Korrekturterm, wobei  $C(r)$  nach Fuchs und Sutugin (1971) gegeben ist durch:

$$C(r) = \frac{1.333 + 0.71\text{Kn}^{-1}}{1 + \text{Kn}^{-1}} + \frac{4(1 - \alpha)}{3\alpha} \quad (3.29)$$

$\alpha$  bezeichnet den Stoßkoeffizienten. Er ist definiert als das Verhältnis der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Moleküle, die von dem Aerosolteilchen aufgenommen werden, zu der Gesamtanzahl aller Moleküle, die mit Aerosolteilchen kollidieren. In der Tabelle 3.1 sind nach Gleichung 3.9 berechnete Werte der Gleichgewichtskonzentrationen des Schwefelsäuredampfes  $N_b^{\text{sol}}$  für vier verschiedene Schwefelsäurelösungen angegeben. Meßprofile der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration (Arnold und Bührke, 1983; Möhler und Arnold, 1992) liegen in dem Bereich von  $10^5$  bis  $10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ , so daß für typische stratosphärische Bedingungen zwischen 20 km und 25 km und Schwefelsäurekonzentrationen von  $W \leq 75\%$  gilt  $N_b \gg N_b^{\text{sol}}$ . Der Fluß von gasförmigen  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Molekülen auf ein Aerosolteilchen ist somit näherungsweise proportional zur  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration.

Generell nimmt in Abhängigkeit von der Höhe die Schwefelsäurekonzentration der Aerosolteilchen zu, da die Temperatur mit zunehmender Höhe steigt, siehe auch Abbildung 3.7. So besitzen Aerosole in 35 km Höhe eine Schwefelsäurekonzentration um 85% und damit mit  $N_b^{\text{sol}} = 1.32 \cdot 10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  einen Dampfdruck, der in der Größenordnung der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration  $N_b = 2 \cdot 10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  liegt. In 35 km Höhe ist daher je nach Umgebungsbedingung der Kondensations- oder der Verdunstungsprozess entscheidend. Auf Grund des Kelvineffektes ist dabei die Wahrscheinlichkeit, daß Schwefelsäuremoleküle von kleinen Teilchen verdunsten, größer, so daß der Verdunstungsprozess sich für kleine Teilchen beschleunigt. In 40 km Höhe ist der Gleichgewichtsdampfdruck über der Lösung so hoch, daß keine Aerosolbildung mehr möglich ist.

Für die Entwicklung der Aerosolgrößenverteilung ist daher im wesentlichen nur der Kondensationsprozeß von Bedeutung. Zur Verdunstung (Evaporation) von gasförmiger Schwefelsäure kommt es nur in den Fällen, in denen eine sehr geringe  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration vorliegt oder die Temperatur sehr hoch ist wie in der oberen Stratosphäre. Hier stellt der Sättigungsdampfdruck über der Lösung  $N_b^{\text{sol}}$  eine obere Randbedingung für die Aerosolbildung dar.

In dem mikrophysikalischen Modell wird die Kondensation von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  als Advektion im  $r$ -Raum und die Wachstumsrate der Aerosolteilchen entsprechend als radiale Geschwindigkeit  $v_r$  aufgefaßt.

$$\frac{\partial n(r, t)}{\partial t_{\text{Kond.}}} = -\frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial r}{\partial t} n(r, t) \right) = -\frac{\partial}{\partial r} (v_r n(r, t)) \quad . \quad (3.30)$$

Für die numerische Lösung wird ein von Chlond (1994) entwickeltes Advektionsschema verwendet, welches auf einer Kombination aus 'exponential upwind scheme' (Spalding, 1972) und Bott-Verfahren (Bott, 1989a,b) besteht. Dieses Verfahren hat den Vorteil, daß es massenerhaltend ist, nur wenig numerische Diffusion zeigt und sehr wenig Rechenzeit benötigt. Die Advektionsgleichung wird für die Lösung von dem  $r$ -Raum auf ein äquidistantes Gitter der Länge  $\Delta x$  in den  $x$ -Raum transformiert:

$$\begin{aligned} r &\rightarrow x = \ln r \\ v_r &\rightarrow \frac{1}{r} v_r \quad . \end{aligned}$$

Für die radiale Advektionsgleichung erhält man mit  $\Delta t$  als konstantem Zeitschritt:

$$n_i^{t+1} = n_i^t - \frac{\Delta t}{\Delta x} [\bar{F}_{i+1/2} - \bar{F}_{i-1/2}] \quad . \quad (3.31)$$

$\bar{F}_{i+1/2}$  und  $\bar{F}_{i-1/2}$  markieren die zeitlich gemittelten Teilchenflüsse an der rechten und der linken Grenze der Gitterbox. Die Wachstumsrate  $v_r$  ist nach Hamill et al. (1977) und Turco et al. (1979a) bestimmt durch:

$$v_r = \frac{\partial r}{\partial t} = \frac{\partial r}{\partial n_b} \frac{\partial n_b}{\partial t} \quad . \quad (3.32)$$

Die Anzahl von  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Molekülen  $n_b$  im Partikel ist gegeben durch:

$$n_b = \frac{4\pi r^3 \rho W}{3m_b} \quad , \quad (3.33)$$

wobei  $m_b$  die Masse eines  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Moleküles bezeichnet. Für den ersten Term der Ableitung ergibt sich somit:

$$\frac{\partial r}{\partial n_b} = \frac{m_b}{4\pi \rho W r^2} \quad . \quad (3.34)$$

Der zweite Term  $\frac{\partial n_b}{\partial t}$  entspricht dem Fluß  $J$ . Damit erhält man folgende Wachstumsrate:

$$\frac{\partial r}{\partial t} = \frac{m_b D_b (N_b - N_b^{\text{sol}})}{r \rho W (1 + C(r) K n)} \quad . \quad (3.35)$$

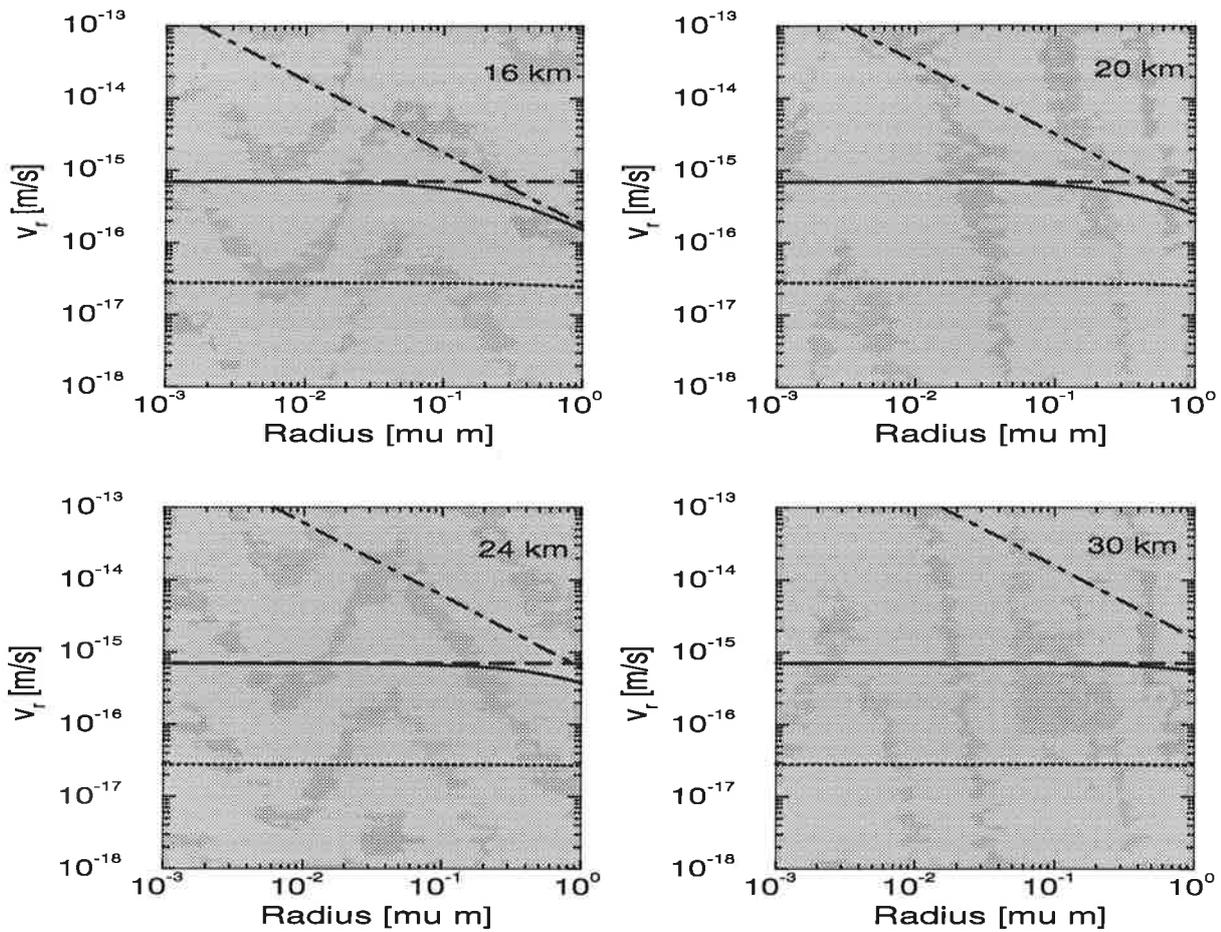


Abbildung 3.10: Wachstumsrate  $v_r$  für die  $\alpha = 1$  (—) als Funktion der Teilchenradien. Es wurde für alle Höhen eine  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration von  $10^{-5}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  angenommen. Die - - - Linie markiert die Wachstumsrate für den Kontinuum-Bereich, die -.-.- Linie die für den Bereich der Gaskinetik. Die ... Linie ist die entsprechende Wachstumsrate für  $\alpha = 0.04$ .

Für sehr kleine Radien  $r \rightarrow 0$  geht  $\text{Kn} \rightarrow \infty$  und entsprechend  $C(r) \rightarrow 3/4 \alpha$ . Damit gelten die Gesetze der Gaskinetik und die Wachstumsrate wird unabhängig vom Radius:

$$\frac{\partial r}{\partial t} = \frac{3m_b D_b \alpha (N_b - N_b^{\text{sol}})}{4\rho W \lambda_b} \quad (3.36)$$

Für sehr große Radien  $r \rightarrow \infty$  geht  $\text{Kn} \rightarrow 0$  und damit  $C(r) \rightarrow 0$ . Die Wachstumsrate entspricht der für den Kontinuumsbereich und ist indirekt proportional zum Radius:

$$\frac{\partial r}{\partial t} = \frac{m_b D_b (N_b - N_b^{\text{sol}})}{r \rho W} \quad (3.37)$$

In Abbildung 3.10 ist die Wachstumsrate  $v_r$  für vier verschiedene Höhen dargestellt. Der Größenbereich für den die Gesetze der Gaskinetik angewendet werden können, nimmt mit steigender Höhe zu, da die freie Weglänge der Teilchen größer wird. Für diesen

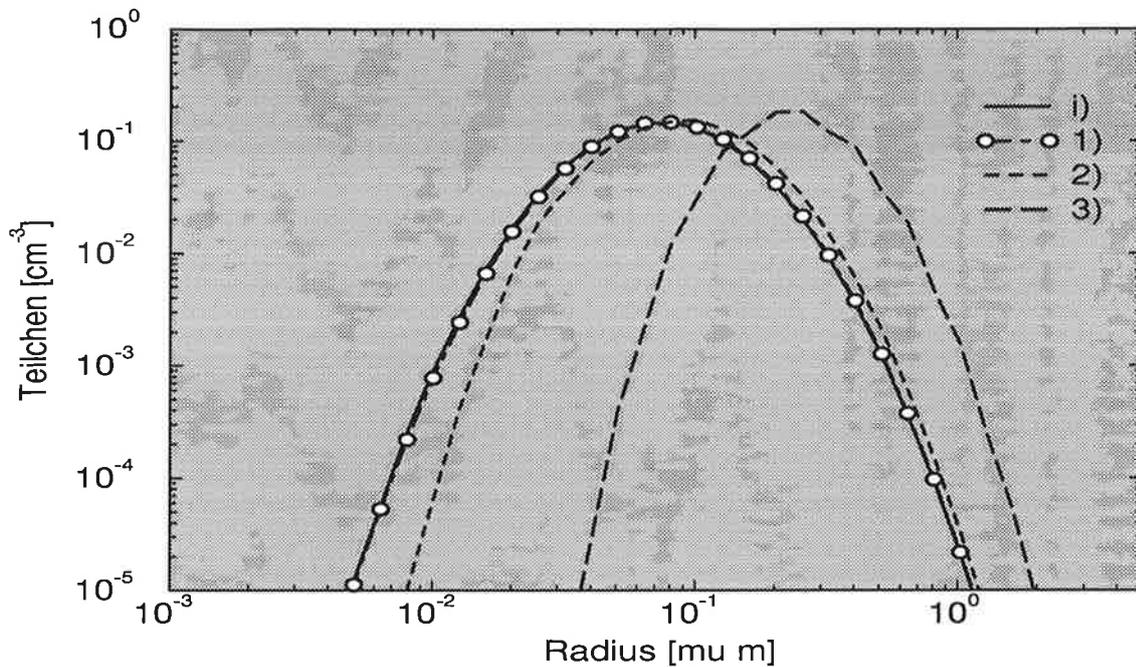


Abbildung 3.11: Änderung einer Größenverteilung (i) durch Kondensation in 20 km Höhe nach einem Jahr für verschiedene  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentrationen 1)  $\text{H}_2\text{SO}_4 = 10^4$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ , 2)  $\text{H}_2\text{SO}_4 = 10^5$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  und 3)  $\text{H}_2\text{SO}_4 = 10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ .

Bereich ist  $\alpha$  direkt proportional zur Wachstumsrate. Es ist daher von großem Interesse, den genauen Wert von  $\alpha$  zu kennen. Experimente in den letzten Jahren haben gezeigt, daß der Wert von  $\alpha$  kleiner als eins ist. So bestimmte Van Dingen (1990) den Stoßkoeffizienten in dem Bereich  $0.028 < \alpha < 0.064$  mit einem Mittelwert von  $\alpha = 0.04$ . Ein Aerosolteilchen würde somit durch die Wahl eines Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 0.04$  statt eines Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 1$  um das 250-fache langsamer wachsen. Die Auswirkungen des Stoßkoeffizienten  $\alpha$  bei der Entwicklung einer Aerosolgrößenverteilung sind daher von erheblicher Bedeutung und werden in Kapitel 4 in den Sensitivitätsstudien unter Berücksichtigung aller mikrophysikalischer Prozesse untersucht.

Neben dem Stoßkoeffizienten  $\alpha$  ist die gasförmige  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration ein wesentlicher Faktor für die Bedeutung des Kondensationsprozesses.

In Abbildung 3.11 ist für typische stratosphärische Bedingungen in 20 km Höhe ( $T=216$  K, 50 hPa) beispielhaft die Entwicklung einer vorgeschriebenen Lognormalverteilung mit einem Moderadius von  $r_m = 0.075 \mu\text{m}$ , einer Standardabweichung von  $\sigma_s = 1.8$  und einer Gesamtteilchenkonzentration von  $N_0 = 1$  Teilchen/ $\text{cm}^3$  durch Kondensation nach einem Jahr für drei verschiedene  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentrationen dargestellt. Für eine Schwefelsäurekonzentration von  $10^4$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  ist nach einem Jahr kaum ein Unterschied zu sehen, während sich bei einer 10-fachen höheren Konzentration der Moderadius um  $0.02 \mu\text{m}$  verschiebt. Für eine  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration von  $10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  dagegen liegt der Moderadius bei  $r_m = 0.2 \mu\text{m}$ . Die Verteilung hat sich somit um mehr als 100% verschoben. Durch Kondensation verschiebt sich dabei die Verteilung nicht nur zu höheren Radien, sondern die kleinen Aerosolteilchen wachsen auf Grund ihrer höheren Wachstumsrate schneller als die großen, siehe Abbildung 3.10. Dadurch verringert sich die Breite der

Verteilung im zeitlichen Verlauf durch Kondensation erheblich.

### 3.2.3 Koagulation

Die Kollision von Teilchen und ihre anschließende Koaleszenz wird als Koagulation bezeichnet. Die verschiedenen Koagulationsformen werden dabei anhand der Bewegungsart der Teilchen klassifiziert. Man unterscheidet zwischen 1) der Brownschen Koagulation, die durch zufällige thermische Bewegung entsteht, 2) der Koagulation von Teilchen auf Grund unterschiedlicher Sedimentationsgeschwindigkeiten und 3) der Koagulation von Teilchen unter dem Einfluß turbulenter Diffusion. Im folgenden wird nur die Brownsche Koagulation betrachtet, da sie für stratosphärische Bedingungen wesentlich ist (Turco et al., 1982). Unter der Voraussetzung, daß alle Teilchen kugelförmig und ungeladen sind, und die Masse der Aerosolteilchen erhalten bleibt, erhält man für die diskrete Koagulationsgleichung (Seinfeld, 1986):

$$\frac{dN_i}{dt} = - \underbrace{\sum_{j=1}^{\infty} N_j N_i K_{ji}}_1 + \frac{1}{2} \underbrace{\sum_{j=1}^i N_j N_k K_{jk}}_2 \quad (k = i - j) \quad (3.38)$$

Der erste Term gibt den Verlust von Teilchen der Größenklasse  $i$  durch Koagulation mit Teilchen aus allen Größenklassen an. Der zweite Term enthält den Anstieg in der Aerosolkonzentration  $N_i$ , wobei die Masse der kollidierenden Teilchen gleich der Masse von  $i$  ist. Auf Grund der Ununterscheidbarkeit der Teilchen ergibt sich der Faktor  $\frac{1}{2}$ .  $K_{ij}$  ist der Brownsche Koagulationskoeffizient für Teilchen der Größe  $i$  und  $j$ , welcher die Wahrscheinlichkeit für einen Zusammenstoß zwischen beiden angibt. Er wird nach Fuchs (1964) folgendermaßen berechnet:

$$K_{ij} = 2\pi (D_i + D_j) 2(r_i + r_j) \left[ \frac{2(r_i + r_j)}{2(r_i + r_j + g_{ij})} + \frac{8(D_i + D_j)}{2c_{ij}(r_i + r_j)} \right]^{-1} \quad (3.39)$$

$r_i$  kennzeichnet den Radius der Aerosolteilchen der  $i$ -ten Klasse und  $D_i$  den dazugehörigen Diffusionskoeffizienten. Der Diffusionskoeffizient ergibt sich unter Berücksichtigung der 'Cunningham-slip correction' (Phillips, 1975):

$$D_i = \frac{k_b T}{6\pi\eta r_i} \left[ \frac{5 + 4Kn_i + 6Kn_i^2 + 18Kn_i^3}{5 - Kn_i + (8 + \pi)Kn_i^2} \right] \quad (3.40)$$

$Kn_i$  steht für die Knudsenzahl der Aerosolteilchen in der Luft und  $\eta$  für die dynamische Viskosität. Es gilt ferner:

$$g_{ij} = \sqrt{g_i^2 + g_j^2}$$

$$c_{ij} = \sqrt{c_i^2 + c_j^2} \quad ,$$

wobei  $c_i = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m_i}}$  die thermische Geschwindigkeit der Teilchen,  $m_i$  ihre Masse und  $g_i$  ein Korrekturfaktor für das Nichtkontinuum ist mit:

$$g_i = \frac{1}{6r_i l_i} \left[ (2r_i + l_i)^3 \left( (2r_i)^2 + l_i^2 \right)^{\frac{3}{2}} \right] - 2r_i \quad .$$

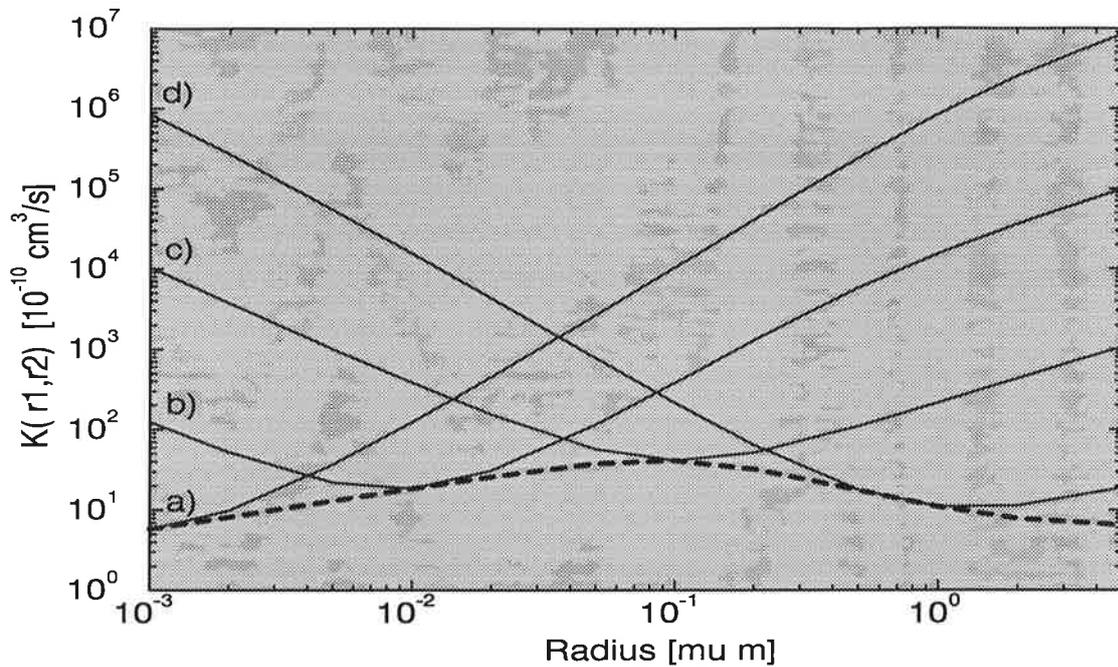


Abbildung 3.12: Koagulationskoeffizienten bei typischen stratosphärischen Bedingungen ( $T = 216 \text{ K}$ ,  $P=50 \text{ hPa}$ ) für verschieden große Aerosolteilchen mit Radien a)  $r_1 = 10^{-3} \mu\text{m}$ , b)  $r_1 = 10^{-2} \mu\text{m}$ , c)  $r_1 = 10^{-1} \mu\text{m}$ , d)  $r_1 = 1 \mu\text{m}$  in Abhängigkeit vom Radius  $r_2$ . Die gestrichelte Linie gibt die Koagulationsfunktion für gleich große Teilchen an.

Es ist dabei  $l_i = 8D_i/\pi c_i$ .

In Abbildung 3.12 sind für typische stratosphärische Bedingungen die Koagulationskoeffizienten für vier verschieden große Aerosolteilchen aufgetragen. Es ist zu erkennen, daß die Wahrscheinlichkeit für die Koagulation zweier gleich großer Teilchen am geringsten ist. Ungleich große Teilchen haben eine höhere Wahrscheinlichkeit zu kollidieren, da für größere Teilchen zwar einerseits die Diffusivität abnimmt ( $D \propto 1/r$ ), aber andererseits auch der Wirkungsquerschnitt ( $\sigma_q \propto r^2$ ) steigt. Die Interferenzen zwischen kleinen Wirkungsquerschnitten und sehr großer Beweglichkeit bei sehr kleinen Teilchen und vice versa zwischen den größeren Wirkungsquerschnitten und der geringeren Diffusivität bei größeren Teilchen sind die Ursache für das Maximum in der Koagulationsfunktion für gleich große Radien. Für die hier vorliegenden Bedingungen liegt das Maximum bei  $r = 0.1 \mu\text{m}$ .

Die Werte der Koagulationskoeffizienten stimmen gut mit Literaturangaben überein (Kritz, 1975; Schult, 1991).

In dem mikrophysikalischen Modell werden als Grenzbedingungen angenommen, daß keine kleineren Teilchen als die der ersten Größenklasse, und keine größeren als die der letzten existieren. Darüber hinaus wird vorausgesetzt, daß sich bei den durch Kollision entstandenen neuen Partikeln das Wasserdampfgleichgewicht sofort wieder einstellt.

Unter der Berücksichtigung der gewählten Diskretisierung der Größenverteilung in Gleichung 3.4, wird die Koagulation folgendermaßen berechnet:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j=1}^{i-1} K_{ji-1} \delta_{i-1j} N_{i-1} N_j \frac{m_j}{m_{i-1}} - \sum_{j=1}^i K_{ji} \tilde{N}_i N_j \frac{m_j}{m_i} - \sum_{j=i+1}^k K_{ji} N_i N_j \quad , \quad (3.41)$$

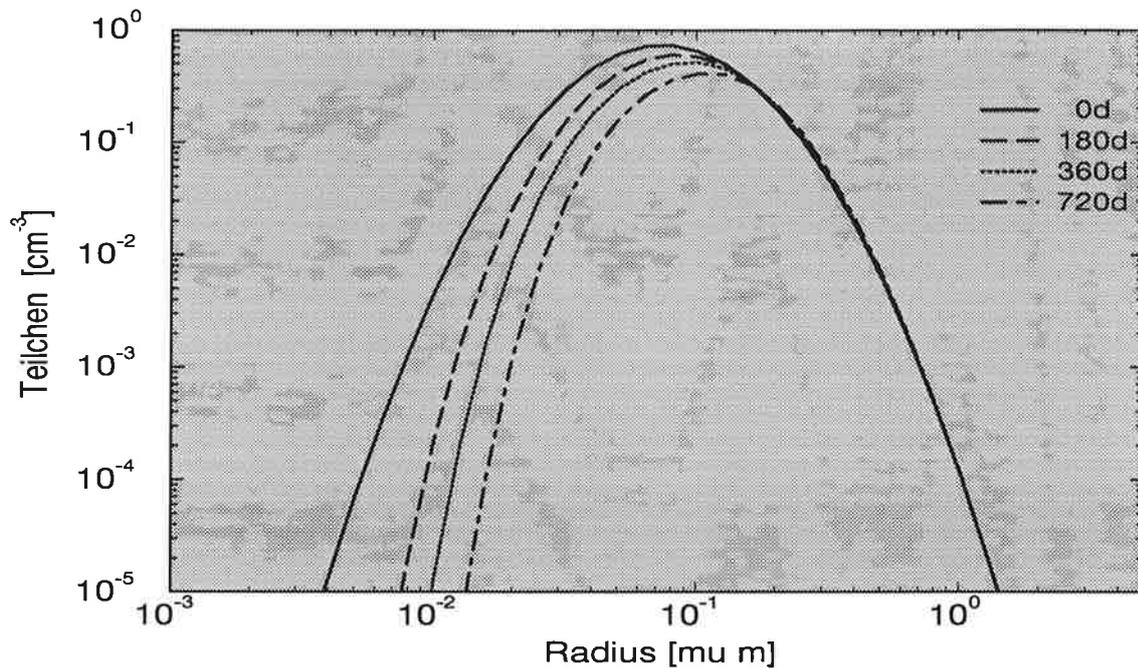


Abbildung 3.13: Zeitliche Änderung einer typischen Aerosolgrößenverteilung durch Koagulation in 20 km Höhe.

wobei  $\delta_{ij} = 1$  für  $i \neq j$  und  $\delta_{ij} = \frac{1}{2}$  für  $i = j$ .

Die Masse  $m_i$  bezeichnet hier die Gesamtmasse der Aerosolteilchen in der jeweiligen Größenklasse  $i$ . Gleichung 3.41 unterscheidet sich zu den von Kritz (1975) und Toon et al. (1988) aufgestellten diskreten Koagulationsgleichungen durch die Wahl der Masse des Aerosolteilchens  $m_i$  an Stelle seines Volumens  $v_i$  als normierende Größe. Die Masse wurde gewählt, da sie die durch den Kelvineffekt vorliegende unterschiedliche Dichte und Konzentration der Aerosolpartikel mit berücksichtigt.

Ein wesentliches Merkmal der Koagulation ist, daß sie quadratisch (!) von der Anzahl der Aerosolteilchen abhängt und damit in der Stratosphäre am wirksamsten in dem Maximum der Aerosolschicht in ungefähr 20 km Höhe ist.

Um den Einfluß der Koagulation auf die Entwicklung einer Größenverteilung abzuschätzen, wird für typische stratosphärische Bedingungen in 20 km Höhe ( $T = 216.5$  K,  $P = 50$  hPa) die zeitliche Änderung einer vorgegebenen Lognormalverteilung mit einem Moderadius von  $r_m = 0.075 \mu\text{m}$ , einer Standardabweichung von  $\sigma_s = 1.8$  und einer Teilchenkonzentration von  $N_0 = 5$  Teilchen/ $\text{cm}^3$  durch Koagulation nach einem halben, nach einem und nach zwei Jahren berechnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.13 dargestellt. Es zeigt sich, ähnlich wie bei Hamill et al. (1977) und Toon et al. (1979a), daß die Koagulation auf die großen Teilchen mit  $r > 0.2 \mu\text{m}$  keinen Einfluß hat, für die kleinen Teilchen mit  $r < 0.1 \mu\text{m}$  jedoch eine beachtliche Senke darstellt. Betrachtet man die diskrete Aerosolgrößenverteilung, so läßt sich dieser Vorgang einfach erklären. Ursache für die ungleiche Entwicklung ist die Tatsache, daß der Verlust der Teilchen pro Klasse durch Koagulation mit zunehmender Teilchengröße geringer wird. Kollidieren z.B. große Teilchen mit sehr kleinen Teilchen, so werden die kleinen Partikel vollständig aus ihrer Klasse

entfernt, für die großen Teilchen ist jedoch der Massenzuwachs oft zu gering, um eine größere Klasse zu erreichen. Die zeitliche Änderung der Aerosolgrößenverteilung durch Koagulation wird dabei auf Grund der quadratischen Abhängigkeit sehr stark durch die Gesamtteilchenanzahl  $N_0$  bestimmt. Für eine Abbildung 3.13 entsprechende Modellierung der zeitlichen Änderung der Aerosolgrößenverteilung durch Koagulation mit einer Gesamtanzahl von  $N_0 = 1$  Teilchen/cm<sup>3</sup> verschob sich der Moderadius der Verteilung wesentlich langsamer ( $\approx 1/4$ ) als für  $N_0 = 5$  Teilchen/cm<sup>3</sup>.

Aus Abbildung 3.13 kann man eine Verschiebung des Moderadius um ungefähr  $0.015 \mu\text{m}$  pro Jahr abschätzen, was einer Wachstumsrate von  $5 \cdot 10^{-16}$  m/s entspricht. Dieser Wert liegt ungefähr in der Größenordnung der Wachstumsrate durch Kondensation für eine H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration von  $10^5$  Moleküle/cm<sup>3</sup>, siehe Abbildung 3.10. Da die Koagulation unabhängig von der H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration ist, ist sie der entscheidende Prozeß für das Wachstum kleinerer Aerosolteilchen mit  $r < 0.1 \mu\text{m}$  bei niedrigen Schwefelsäurekonzentrationen und bei hohen Teilchenkonzentrationen. Ist jedoch die Schwefelsäurekonzentration nur um einen Faktor 10 höher, so ist der Koagulationsprozeß im Vergleich zum Kondensationsprozeß um eine Größenordnung geringer und bei entsprechend höheren H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentrationen vernachlässigbar.

### 3.2.4 Sedimentation

Aerosolteilchen fallen in dem Schwerfeld der Erde mit einer Geschwindigkeit, die durch Reibungskräfte und durch die Schwerkraft bestimmt wird. Unter der Voraussetzung, daß die Teilchen kugelförmig sind, erfolgt die Berechnung der Sedimentationsgeschwindigkeit nach der Stokes-Cunningham Gleichung (Pruppacher und Klett, 1978):

$$v_s = \frac{2(\rho_p - \rho_L) r^2 g}{9\eta} \underbrace{\left[ 1 + \frac{\tilde{\lambda}}{r} \left( A + B \exp -\frac{C r}{\tilde{\lambda}} \right) \right]}_{\star} \quad . \quad (3.42)$$

$\rho_p$  bezeichnet die Teilchendichte,  $\rho_L$  die Luftdichte,  $\eta$  die Viskosität,  $g$  die Schwerebeschleunigung und  $\tilde{\lambda}$  die mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle. Der  $\star$  Term bezeichnet die sogenannte 'Cunningham-slip-flow'-Korrektur mit den empirisch bestimmten Konstanten A, B und C für die nach Pruppacher und Klett (1978) gilt:  $A = 1.257$ ,  $B = 0.4$ ,  $C = -1.1$ .

In Abbildung 3.14 sind die Sedimentationsgeschwindigkeiten für verschieden große Aerosolteilchen dargestellt. Die relativ starke Zunahme der Sedimentationsgeschwindigkeit mit der Höhe bei kleinen Teilchen ( $r < \tilde{\lambda}$ ) ist durch den Anstieg in der freien Weglänge  $\tilde{\lambda}$  zu erklären. Die Sedimentationsgeschwindigkeit unterscheidet sich dabei zwischen kleinen und großen Aerosolteilchen um drei bis vier Größenordnungen. Schätzt man Absinkzeiten für unterschiedlich große Teilchen ab, so benötigt ein Aerosolteilchen mit einem Radius  $r = 1 \mu\text{m}$  eine Zeit von 3.5 Tagen, um aus einer Höhe von 30 km 1 km tief zu fallen. Aus 15 km Höhe braucht es für eine Fallhöhe von 1 km eine Zeit von 23 Tagen. Ein kleines Aerosolteilchen mit einem Radius von  $0.01 \mu\text{m}$  dagegen braucht in 30 km Höhe eine Zeit von ungefähr 1 Jahr, bzw in 15 km Höhe von 10.5 Jahren, um 1 km zu fallen. Für kleine Aerosolteilchen ist daher die Sedimentation nahezu vernachlässigbar, für die großen Teilchen ist sie der entscheidende Senkenterm in der Stratosphäre.

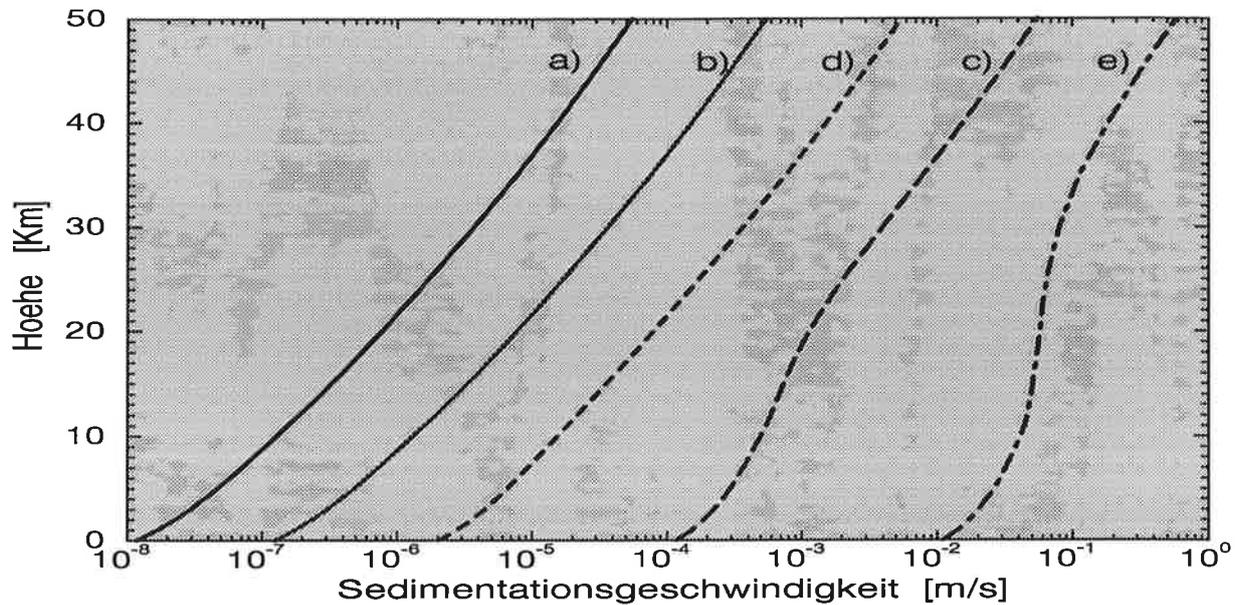


Abbildung 3.14: Vertikalprofile der Sedimentationsgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Höhe für verschiedene Teilchenradien mit a)  $r = 10^{-3} \mu\text{m}$ , b)  $r = 10^{-2} \mu\text{m}$ , c)  $r = 10^{-1} \mu\text{m}$ , d)  $r = 1 \mu\text{m}$ , e)  $r = 10 \mu\text{m}$ . Bei der Berechnung lagen Werte der U.S. Standard Atmosphäre zu Grunde.

In dem mikrophysikalischen Modell wird die zeitliche Änderung der Teilchenkonzentration durch Sedimentation

$$\frac{\partial n}{\partial t}_{\text{Sed.}} = \frac{\partial}{\partial z}(nv_s) \quad (3.43)$$

getrennt vom vertikalen Transport berechnet. Unter der Voraussetzung, daß die Teilchen in der Gitterbox gleichmäßig verteilt sind, wird die Sedimentation in dem Modell durch einen einfachen Senkenterm parameterisiert, der proportional zur Teilchendichte und zur Sedimentationsgeschwindigkeit ist.

Für den Nettoverlust an Teilchen in jeder Klasse  $i$  gilt dabei:

$$\Delta N_i = \frac{N_i v_s \Delta t}{\Delta z} \quad (3.44)$$

wobei  $\Delta t$  den Zeitschritt und  $\Delta z$  die Höhe der Modellschicht bezeichnet.

Diese Parameterisierung ist sicher sehr stark vereinfacht, vor allem, wenn man die Tatsache berücksichtigt, daß die vertikale Auflösung in dem Modell in der Stratosphäre sehr groß ist. Neben fehlenden zusätzlichen Information, die Werte für die Temperatur und Druck liegen nur für die Gitterbox bzw. für die obere und untere Grenze vor, ist es aber vor allem der größere Mehrbedarf an Rechenzeit, der ein zusätzliches Vertikalprofil für jede Gitterbox technisch unrealisierbar macht.

Die zweifellos elegantere Methode ist es, die Sedimentation gemeinsam mit dem vertikalen Transport zu berechnen. Dies ist zum einen auf Grund der Struktur des Zirkulationsmodells technisch sehr aufwendig, und zum anderen würden die Vorteile der Separation

von Sedimentation und vertikalem Transport, die in einem variablen mikrophysikalischer Zeitschritt sowie einem vom globalen Modell unabhängigen mikrophysikalischen Modell bestehen, entfallen.

# Kapitel 4

## Sensitivitätsstudien mit dem Boxmodell

Im folgenden wird untersucht, inwieweit das im letzten Kapitel vorgestellte mikrophysikalische Modell in einer Boxversion in der Lage ist, Bildung und Entwicklung des stratosphärischen Aerosols zu beschreiben. Es werden dabei zunächst die Boxversion des mikrophysikalischen Modells und die bei den Sensitivitätsstudien verwendeten Daten vorgestellt. Im Anschluß daran wird im zweiten Teil untersucht, inwieweit das Boxmodell die Größenverteilung des stratosphärischen Hintergrundaerosols wiedergeben kann. Es werden dabei Sensitivitätsstudien für unterschiedliche stratosphärische Höhen, Jahreszeiten und geographische Breiten durchgeführt. Darüber hinaus wird der Einfluß der Eingangsdaten sowie von verschiedenen mikrophysikalischen Parameterisierungen auf die Hintergrundverteilung studiert. Im letzten Teil dieses Kapitels wird untersucht, inwieweit das mikrophysikalische Boxmodell die beobachtete zeitliche Entwicklung in einer vulkanisch gestörten Atmosphäre beschreiben kann.

### 4.1 Einleitung

In dem vorhergehenden Kapitel 3 wurde das für den Einbau in ECHAM4 konzipierte Modell vorgestellt. Wie in Abbildung 3.1 gezeigt wird, werden Temperatur, Druck, gasförmige Schwefelsäure und Wasserdampf als Eingangsgrößen für das mikrophysikalische Modell benötigt. Sie müssen für die nachfolgenden Sensitivitätsstudien aus Beobachtungen bzw. Simulationen vorgeschrieben werden. Für die Schwefelsäurekonzentration ergibt sich dabei eine besondere Schwierigkeit, da sie nicht unabhängig von der Aerosolgrößenverteilung ist. Die gasförmige Schwefelsäure ist zum einen nicht nur eine Quelle für die Nukleation und die Kondensation, sondern hängt zum anderen auch ihrerseits über Kondensation und Verdunstung von der Anzahl der Aerosolteilchen ab. Es wird daher für die nachfolgenden Sensitivitätsstudien die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration nicht direkt vorgeschrieben, sondern über die mikrophysikalischen Prozesse und über die Umwandlung von  $\text{SO}_2$  mit OH berechnet:



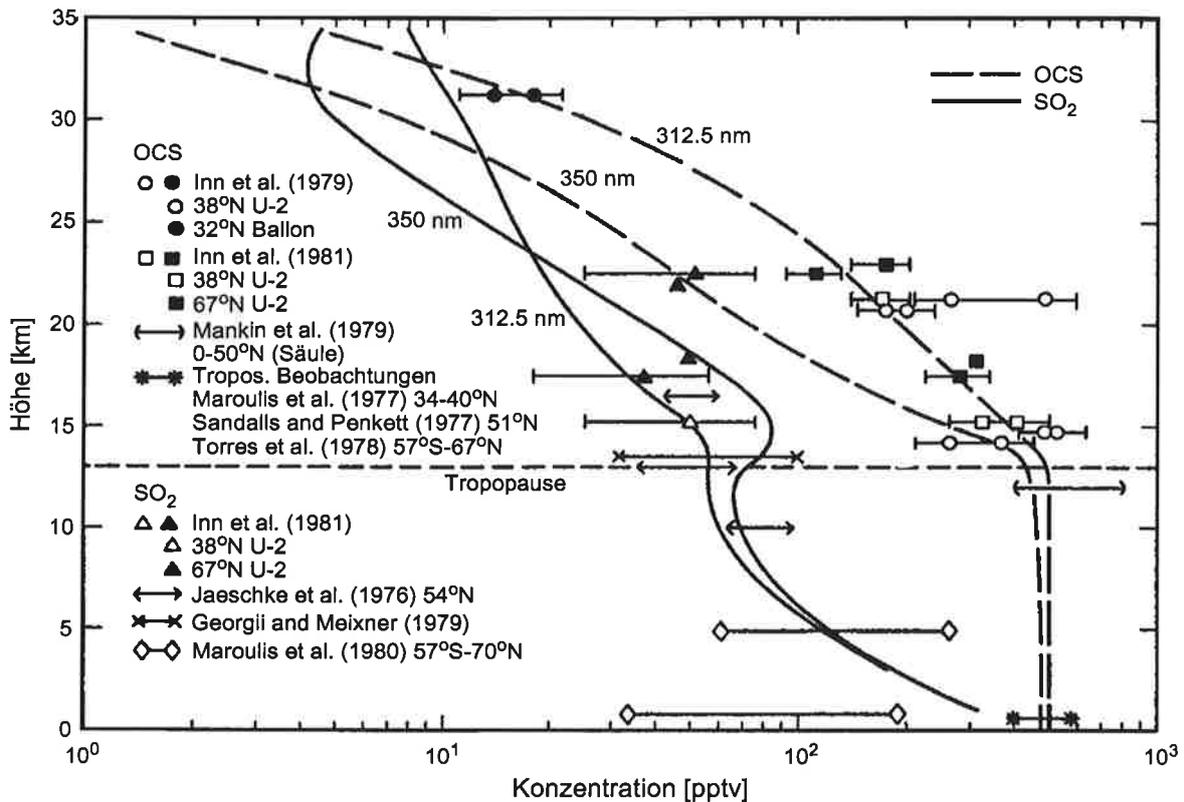


Abbildung 4.1: Vertikalprofil der SO<sub>2</sub>-Konzentration (Turco et al., 1981). Für jedes Profil ist die größte Wellenlänge, die bei der COS-Photodissoziation betrachtet wird, angegeben.

Die für die Reaktion benötigte Reaktionskonstante wird dabei dem JPL<sup>1</sup>-Bericht von de More et al. (1992) entnommen. Da der Schwerpunkt der hier vorgestellten Sensitivitätsstudien auf der Validierung des mikrophysikalischen Modells liegt, wurde auf die Mitführung eines kompletten stratosphärischen Chemiemodells verzichtet.

Für die Sensitivitätsstudien wurde desweiteren eine Modifikation des mikrophysikalischen Modells gegenüber der globalen Anwendung bei der Berechnung der Sedimentation vorgenommen. Um den Sedimentationsfluß an dem gewählten Punkt abzuschätzen, wurde für die vorliegenden Sensitivitätsstudien der Box eine Höhe von 1 m zugeschrieben. Die Sedimentationsgeschwindigkeit ist für jede Klasse jeweils für die obere Grenze  $v_{soG}$  und die untere  $v_{suG}$  berechnet worden.

Da die Verteilung über die ganze Box als konstant angenommen wird, läßt sich der Nettoverlust durch Sedimentation über die Differenzgeschwindigkeit ausrechnen. Die Differenz der Sinkgeschwindigkeiten wird als  $\Delta v_s$  bezeichnet:

$$\Delta v_s = v_{soG} - v_{suG} \quad (4.2)$$

<sup>1</sup>JPL: Jet Propulsion Laboratory

Für den Nettoverlust an Teilchen in jeder Klasse  $i$  gilt:

$$\Delta N_i = \frac{N_i \Delta v_{si} \Delta t}{\Delta z}, \quad (4.3)$$

wobei  $\Delta t$  den Zeitschritt und  $\Delta z = 1$  m die Höhe der Box kennzeichnet.

Für alle mit dem Boxmodul durchgeführten Sensitivitätsstudien wurde als Anfangsbedingung die Aerosolkonzentration Null gesetzt und für jedes gewählte Druckniveau (in hPa) realistische Temperaturen, OH-, H<sub>2</sub>O- und SO<sub>2</sub>-Konzentrationen vorgeschrieben. Als Datensätze für Temperatur, Druck, H<sub>2</sub>O und OH wurden zum einen Beobachtungsdaten (Rind et al., 1993; Pawson et al., 1993), und zum anderen gemittelte Daten aus einem 12 Jahre Feedback-Lauf des ECHAM3<sup>2</sup>-Modells mit homogener und heterogener Chemie von Steil (1997) verwendet, siehe Anhang. Meßdaten haben den großen Vorteil, daß sie als Eingabeparameter für einen Vergleich der Modellergebnisse mit Aerosolbeobachtungen besser geeignet sind als die ECHAM3-Daten. Simulationsdaten haben dagegen gegenüber den Beobachtungen den Vorteil, daß man eine in sich konsistente globale Verteilung der Temperatur, von H<sub>2</sub>O und OH vorliegen hat. Während globale Beobachtungen des stratosphärischen Wasserdampfes von Satellitenmessungen u.a. von SAGE<sup>3</sup> (Rind et al., 1993), HALOE<sup>4</sup> (Remsberg et al., 1996) und MLS<sup>5</sup> (Elson et al., 1996) vorliegen, existieren globale Beobachtungen der OH-Konzentration nicht. Beide Konzentrationen hängen aber eng über chemische Umwandlungsprozesse zusammen, so daß es schwierig ist, zueinander passende Datensätze von H<sub>2</sub>O und OH zu finden. Obwohl in den Modelldaten unterschiedlich starke regionale Abweichungen im Vergleich zu Beobachtungen zu erkennen sind, repräsentieren sie andererseits jedoch auch die im Hamburger Zirkulationsmodell ECHAM vorliegenden Bedingungen. Da das mikrophysikalische Modell für den Einbau in das Zirkulationsmodell entwickelt worden, sowie eine Kopplung mit dem Chemiemodell von Steil (1997) vorgesehen ist, bieten die Simulationsdaten gute Testbedingungen. Es werden daher im wesentlichen für die Sensitivitätsstudien die simulierten ECHAM3-Daten für Temperatur, H<sub>2</sub>O und OH in Abhängigkeit von der Höhe verwendet. Es werden jedoch im folgenden auch Sensitivitätsstudien mit Beobachtungen durchgeführt und die mit Beobachtungs- und Simulationsdaten durchgeführten Sensitivitätsstudien miteinander verglichen.

Da das Chemiemodell von Steil (1997) keine Schwefelchemie behandelt, muß für die SO<sub>2</sub>-Konzentration auf die wenigen Literaturdaten zurückgegriffen werden. Für stratosphärisches SO<sub>2</sub> existieren einige globale Satellitendaten von TOMS<sup>6</sup> (Krueger et al., 1995) und MLS (Read et al., 1993), da sie aber nur Säulenwerte angeben, sind sie für die vorliegende Anwendung nicht geeignet. Daher werden Daten für die ungestörte SO<sub>2</sub>-Konzentration aus einem simuliertem Vertikalprofil von Turco et al. (1981) verwendet, siehe Abbildung 4.1. Es wurde dabei das SO<sub>2</sub>-Profil für eine COS-Photodissoziation bis zu einer Wellenlänge von  $\lambda \leq 312.5$  nm ausgewählt, welches unterhalb 20 km sehr gut

---

<sup>2</sup>Datensätze für ECHAM4 liegen z.Zt. noch nicht vor. Derzeit wird das chemische Modell in ECHAM4 eingebaut.

<sup>3</sup>SAGE: Stratospheric Aerosol and Gas Experiment

<sup>4</sup>HALOE: HALogen Occultation Experiment

<sup>5</sup>MLS: Microwave Limb Sounder

<sup>6</sup>TOMS: Total Ozone Mapping Spectrometer

mit den Beobachtungen übereinstimmt. Oberhalb von 20 km liegen die Simulationswerte im Vergleich zu den Beobachtungen zu niedrig, jedoch existieren für diese Höhen auch wenig Beobachtungen.

Es bleibt festzuhalten, daß die für die Sensitivitätsstudien verwendeten Daten, besonders die Werte für  $\text{SO}_2$  und OH, Simulationsrechnungen entnommen worden und nur durch wenige oder indirekte Messungen validiert sind. Sie beinhalten somit Unsicherheiten, die man bei dem Vergleich von simulierten und beobachteten Aerosolverteilungen mitberücksichtigen muß. In Abschnitt 4.2 wird auf den Einfluß der Eingabegrößen noch anhand von Fallstudien im Detail eingegangen.

## 4.2 Das stratosphärische Hintergrundaerosol

### 4.2.1 Messungen

Es existieren zahlreiche Messungen des stratosphärischen Aerosols durch In-Situ-Meßverfahren (Teilchendetektoren) und Fernerkundungsverfahren (Satelliten, Lidar, Sonnenphotometer). Für die Validierung der von dem Boxmodell modellierten Aerosolgrößenverteilung ist vor allem die direkte Messung der Aerosolgrößenverteilung interessant. Die ersten In-Situ-Messungen des stratosphärischen Aerosols mit Teilchendetektoren stammen aus dem Jahr 1961 von Junge et al. (1961). Von Beginn der siebziger Jahre an liegt eine kontinuierliche Meßreihe des Vertikalprofils der stratosphärischen Aerosolgrößenverteilung für Laramie, Wyoming ( $41^\circ \text{ N}$ ) vor, wobei regelmäßig vertikale Ballonaufstiege in einem Abstand von ungefähr einem Monat durchgeführt worden sind. Bei den Ballonmessungen sind mit optischen Teilchenzählern Aerosolpartikel mit Radien  $r \geq 0.15 \mu\text{m}$  und  $r \geq 0.25 \mu\text{m}$  gemessen worden und seit 1983 auch mit einem CN-Detektor Teilchen mit Radien  $r \geq 0.01 \mu\text{m}$  (Hofmann et al., 1975; Hofmann und Rosen, 1981; Deshler et al., 1992a; Deshler et al., 1993).

Die Rolle, die stratosphärische Aerosolteilchen und polare stratosphärische Wolken beim Ozonabbau spielen, hat in den letzten Jahren dazugeführt, daß vermehrt Vertikalprofile des Aerosols aus der Arktis (Hofmann und Deshler, 1989; Schlager et al., 1990) und der Antarktis (Hofmann et al., 1989; Hofmann et al., 1992; Deshler et al., 1992b) vorliegen. Globale Beobachtungen der vertikalen Größenverteilungen des stratosphärischen Aerosols, die aus recht wenigen Messungen bestehen, sind u.a. in Rosen et al. (1975), Hofmann et al. (1976) und Hofmann und Rosen (1981) zu finden.

Im Rahmen von Meßkampagnen liegen besonders für die polaren Gebiete Flugzeugmessungen der vulkanisch ungestörten Aerosolgrößenverteilungen vor (Baumgardner et al., 1992; Wilson et al., 1992; Brock et al., 1995).

Eine der größten Schwierigkeiten bei der Beschreibung des stratosphärischen Aerosols ist die Frage, welcher Wert repräsentativ für das stratosphärische Hintergrundaerosol ist und somit die Größenverteilung des  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  Aerosols ohne vulkanische Einflüsse beschreibt. Eine Periode ohne starke vulkanische Einflüsse stellten in den letzten 20 Jahren die Jahre 1978 und 1979 dar. Für diese Jahre lagen die Werte in der optischen Dichte  $\tau$  für  $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$  unter 0.01 (Sato et al., 1993). Die Sensitivitätsstudien werden daher im folgenden im wesentlichen mit den in Hofmann und Rosen (1981) veröffentlichten

Werten aus den Jahren 1978–1979 verglichen.

In der Literatur werden unterschiedliche Verteilungsformen zur Beschreibung der Größenverteilung des stratosphärischen Hintergrundaerosols verwendet, z.B. modifizierte Gamma-Verteilungen, ZOL<sup>7</sup>-Verteilungen, Exponentialverteilungen und Lognormalverteilungen. In Russel et al. (1981) ist eine Übersicht über die wesentlichen, zur Beschreibung der Meßdaten verwendeten, Größenverteilungen und ihrer Parameter gegeben. Als 'klassische' Größenverteilung zur Beschreibung des Hintergrundaerosols hat sich in der Literatur in den letzten Jahren die von Pinnick et al. (1976) vorgeschlagene Lognormalverteilung durchgesetzt:

$$n(r) = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi r \ln \sigma_s}} \exp -\frac{\ln\left(\frac{r}{r_m}\right)^2}{2 \ln \sigma_s^2} \quad (4.4)$$

mit einem Moderradius von  $r_m = 0.0725 \mu\text{m}$  und einer Standardabweichung von  $\sigma_s = 1.86$ .  $N_0$  kennzeichnet die Gesamtteilchenanzahl.

Flugzeugmessungen von Wilson et al. (1992) mit Teilchendetektoren, die Aerosolteilchen mit Radien  $r \geq 0.04 \mu\text{m}$  nachweisen können, zeigen, daß in den polaren Gebieten oberhalb der Tropopause bimodale Verteilungen existieren. Ebenfalls sind bimodale Verteilungen in den Tropen in der oberen Tropo- und unteren Stratosphäre gemessen worden (C. Wilson, pers. Mitteilung).

In der Literatur angegebene wichtige Größen, die dem Vergleich der simulierten Größenverteilungen mit gemessenen sowie der gemessenen Größenverteilungen untereinander dienen, sind zum einen die Aerosolkonzentration  $N_{15}$  und  $N_{25}$ , die alle Teilchen mit Radien  $r \geq 0.15 \mu\text{m}$  bzw.  $r \geq 0.25 \mu\text{m}$  beinhalten, sowie das Größenverhältnis, 'Size ratio',  $N_{15}/N_{25}$ . Die simulierten Größenverteilungen werden im weiteren Verlauf dieses Abschnittes anhand der Teilchenkonzentration  $N_{15}$  und des Größenverhältnisses  $N_{15}/N_{25}$  mit den Beobachtungen verglichen. Dies hat den Vorteil, daß beide Parameter direkt gemessen worden sind und nicht wie eine Lognormal- oder eine andere Verteilung eine an den Datensatz angepaßte Verteilungsform darstellen. Bemerkenswert ist in diesem Zusammenhang auch, daß, wie bei den Messungen aus Laramie, ein CN-Teilchendetektor  $r \geq 0.01 \mu\text{m}$  und mehrere optische Teilchenzähler mit  $r \geq 0.1 \mu\text{m}$  verwendet worden sind, so daß für den Bereich zwischen  $0.01 \mu\text{m}$  und  $0.1 \mu\text{m}$  nur der integrale Wert der Teilchenanzahl bekannt ist. Das System ist daher über diesen Radienbereich unbestimmt und besitzt einen Freiheitsgrad, der in der Wahl der vorgegebenen Größenverteilung liegt.

#### 4.2.2 Sensitivitätsstudien

Es wurden zunächst Sensitivitätsstudien mit konstanten Eingabedaten über mehrere Jahre integriert. Es zeigte sich dabei generell, daß die Aerosolverteilungen nach einer Integrationszeit von 5 bis 10 Jahren in Abhängigkeit von der Temperatur und der Quellstärke entweder einen Gleichgewichtszustand erreichen, oder einen Grenzyklus durchlaufen.

Abbildung 4.2 a) zeigt für konstante Juli-Bedingungen in 50 hPa eine zeitliche Folge der simulierten Verteilungen des Grenzyklus im dreimonatigen Abstand. Es ist dabei

---

<sup>7</sup>ZOL: Zero-Order-Logarithmic

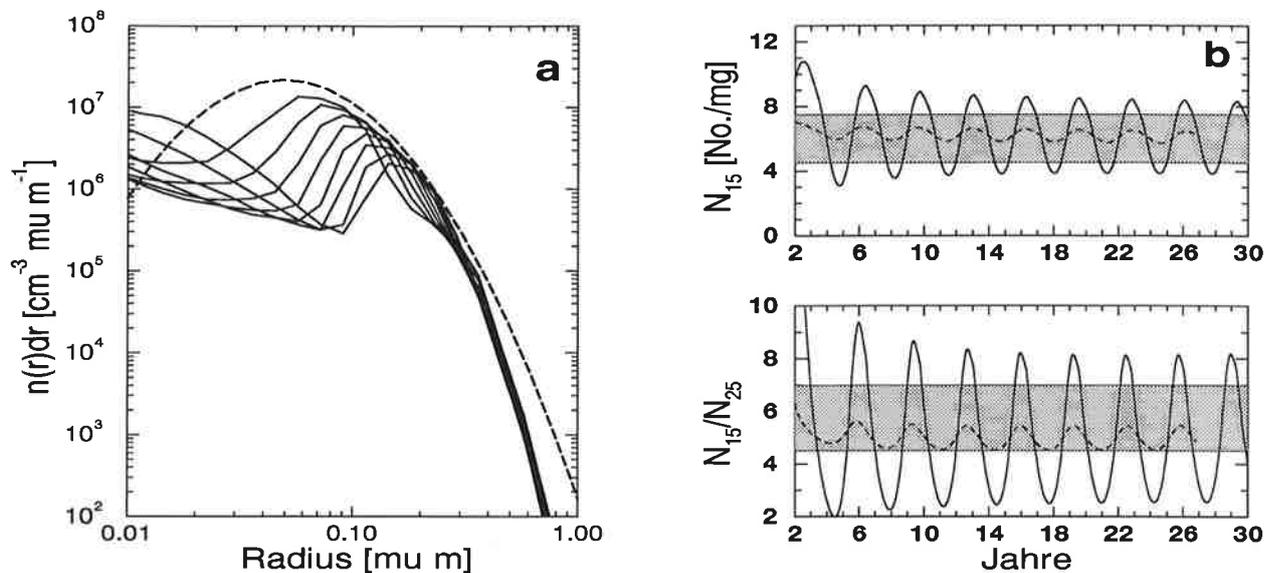


Abbildung 4.2: a) Vergleich einer mit dem Boxmodell simulierten Sequenz von typischen Hintergrundverteilungen im 3-Monatsabstand mit Beobachtungen; durchgezogene Linie: simulierte Größenverteilungen; gestrichelte Linien: typische Hintergrundverteilung mit  $r_m = 0.075 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.8$ . b) Zeitliche Entwicklung der Aerosolkonzentration  $r_m \geq 1.5 \mu\text{m}$  ( $N_{15}$ ), und des Größenverhältnisses ( $N_{15}/N_{25}$ ). Die gestrichelte Linie gibt das gleitende Mittel über vier Jahre und die graue Fläche kennzeichnet Werte aus Ballonmessungen von Hofmann und Rosen (1981).

deutlich zu erkennen, daß die Sequenz der modellierten Verteilungen durch eine typische, aus Beobachtungen abgeleitete, Hintergrundverteilung beschrieben werden kann. Berücksichtigt man die Tatsache, daß sich in der Natur auf Grund von Advektionsprozessen und saisonalen Veränderungen eine Überlagerung der Verteilungen einstellt und daß die Lognormalverteilung selbst nur eine an Daten angepaßte Größenverteilung ist, zeigt sich, daß das mikrophysikalische Modell in der Lage ist, die beobachtete Hintergrundverteilung realistisch zu beschreiben. Es bilden sich dabei bimodale Verteilungen aus, wie sie auch in der vulkanisch gestörten Atmosphäre und in polaren Regionen oberhalb der Troposphäre beobachtet werden. Die Ausbildung der bimodalen Verteilung wird im wesentlichen durch die Wechselwirkung zwischen Nukleation und Kondensation hervorgerufen, und im folgenden näher erläutert.

In Abbildung 4.2 b) ist die zeitliche Entwicklung der Aerosolkonzentration und des Größenverhältnisses dargestellt. Die Amplituden beider Werte überstreichen den beobachteten Bereich. Ungefähr 11 Jahre nach Beginn der Simulation erreichen die Werte einen Gleichgewichtszustand.

Der Grenzyklus ist das Ergebnis der Wechselwirkungen der verschiedenen mikrophysikalischen Prozesse, wie in Abbildung 4.3 schematisch dargestellt ist. Zu Beginn der Simulation liegen keine Teilchen vor, die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration ist sehr hoch, und somit bildet sich eine große Anzahl von Aerosolteilchen durch homogene Nukleation aus der Gasphase. Diese Teilchen wachsen durch Koagulation und Kondensation von gasförmiger Schwefelsäure an. Parallel dazu nimmt aber durch den Kondensationsprozeß die

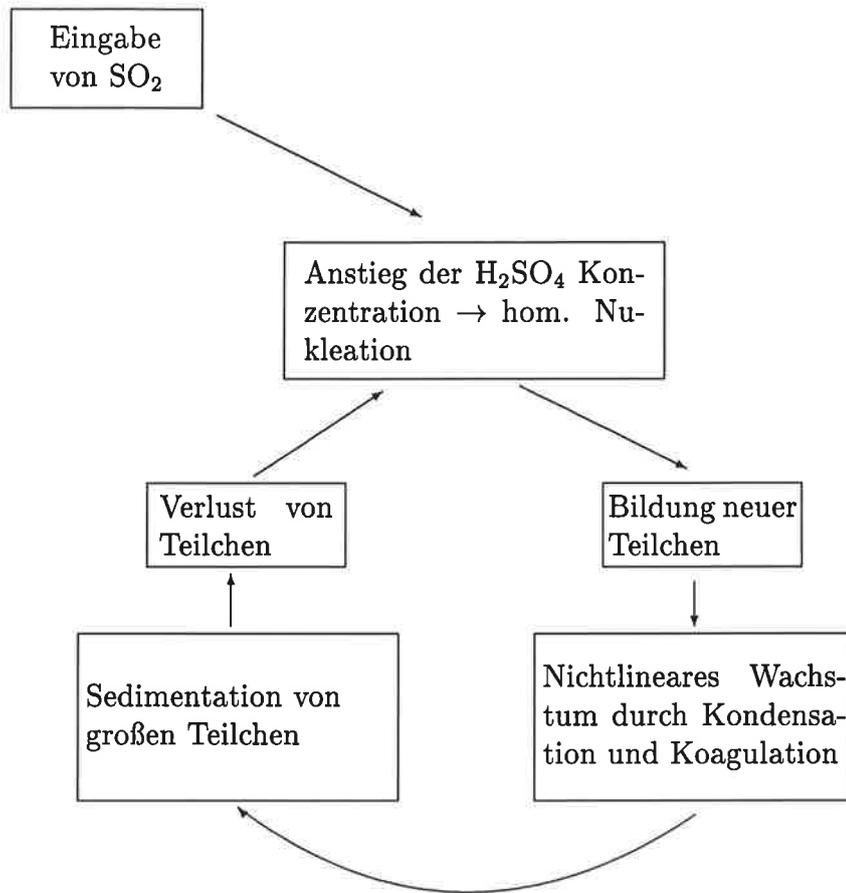


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des Grenzyklus

gasförmige  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration ab. Als Folge davon sinkt die Nukleationsrate und weniger neue Teilchen werden gebildet. Sind die Aerosolteilchen zu einer bestimmten Größe angewachsen, fallen sie durch Sedimentation aus der Box heraus. Damit steigt aber wieder die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration und folglich auch die Nukleationsrate. Die Aerosolkonzentration hängt über Nukleation und Kondensation von der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration ab bzw. vice versa.

Die Amplitude und die Periode des Zyklus bzw. die Möglichkeit eines stabilen Zustandes werden daher im wesentlichen über die Zeitkonstanten beider Prozesse bestimmt.

Bimodale Hintergrundverteilungen, wie sie in Abbildung 4.2 a) zu sehen sind, sind besonders dann stark ausgeprägt, wenn die Nukleation relativ stark ist. Zu diesen Zeitpunkten besitzen die in Abbildungen 4.2 b) dargestellten Aerosolkonzentrationen  $N_{15}$  und Größenverhältnisse  $N_{15}/N_{25}$  ihren minimalen Wert, weil nur noch wenige größere Aerosolteilchen vorhanden sind. Umgekehrt liegen die maximalen Werte für  $N_{15}$  und  $N_{15}/N_{25}$  für Zeiten vor, in denen die Nukleationsrate relativ gering ist.

Bei der Beschreibung des Boxmodells in Kapitel 3 ist aufgezeigt worden, daß sich bei der Nukleations- und der Kondensationsberechnung Unsicherheiten über mehrere Größen-

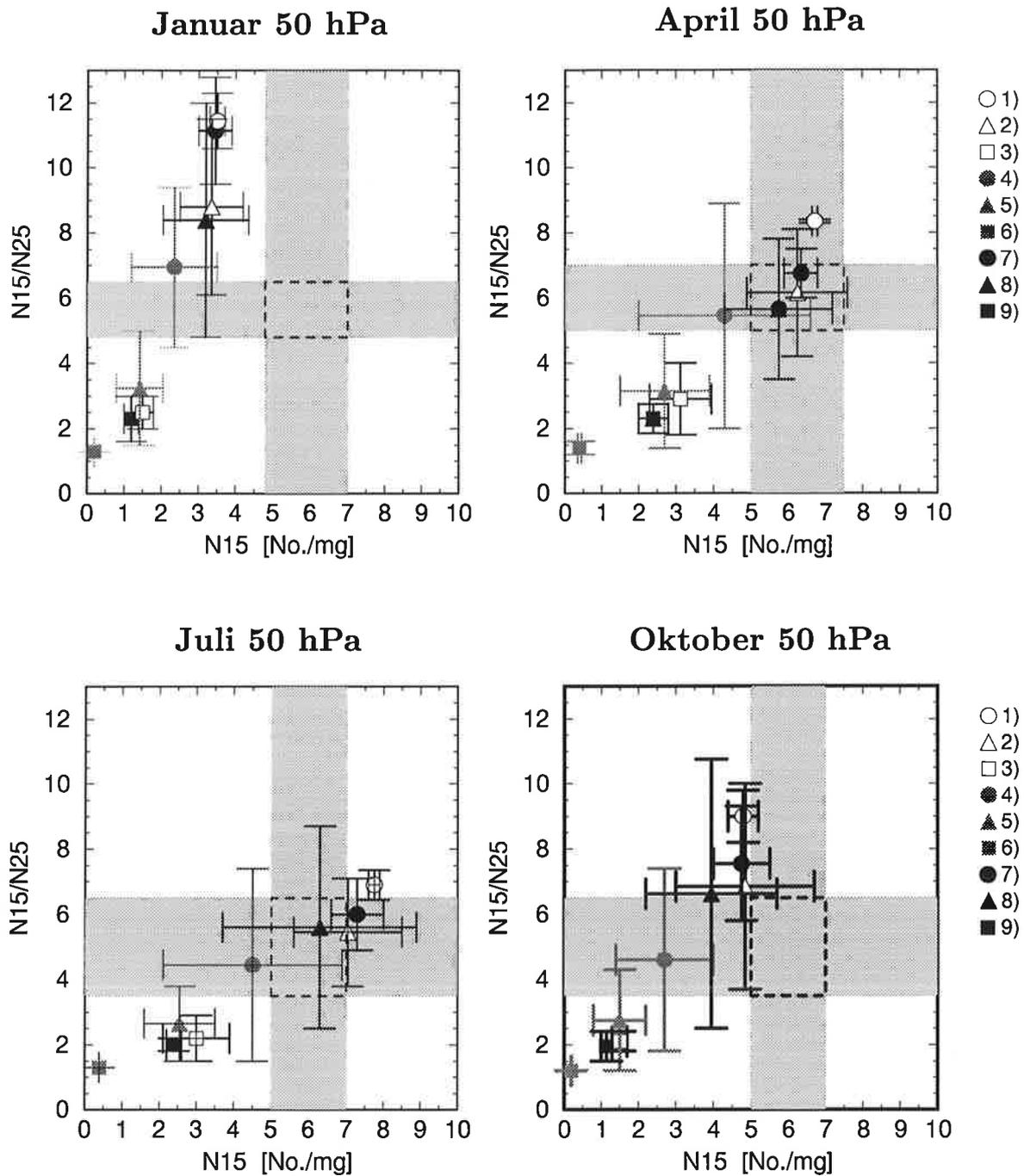


Abbildung 4.4: Abhängigkeit der Aerosolkonzentration  $N_{15}$  und des Größenverhältnisses  $N_{15}/N_{25}$  von der Nukleationsrate und dem Stoßkoeffizienten  $\alpha$ . Die Symbole bezeichnen die verschiedenen Stoßkoeffizienten, die Farben kennzeichnen die unterschiedlichen Nukleationsansätze, siehe Tabelle 4.1. Der graumelierte Bereich kennzeichnet Messungen von Hofmann und Rosen (1981).

Nukleationsrate/ $\alpha$	0.04	0.1	1
A	1	2	3
B	4	5	6
C	7	8	9

Tabelle 4.1: Übersicht über die neun verschiedenen Sensitivitätsstudien mit unterschiedlichen mikrophysikalischen Parameterisierungen.  $\alpha$  bezeichnet den Stoßkoeffizienten der gasförmigen Schwefelsäure auf dem Aerosol. Bei der Berechnung der Nukleationsrate kennzeichnet A den Ansatz nach der klassischen Theorie, B den nach der Hydrattheorie und C den nach der Hydrattheorie mit SCC-Korrektur.

ordnungen ergeben haben, je nachdem, welcher Ansatz zur Berechnung der homogenen Nukleationsrate, oder welcher Stoßkoeffizient  $\alpha$  für die Kondensation von gasförmiger Schwefelsäure auf dem Aerosol gewählt wird. So wächst z.B. die Aerosolgrößenverteilung durch die Kondensation von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  mit einem Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 0.04$  um 40 -mal langsamer als für  $\alpha = 1$ . Die Nukleationsraten können sich z.B. um einen Faktor  $10^6$  zwischen der klassischen und der Hydrattheorie unterscheiden. Es stellt sich daher im folgenden die Frage, welche Auswirkungen diese Unsicherheiten in der mikrophysikalischen Parameterisierung auf die Aerosolgrößenverteilungen haben.

Abbildung 4.4 zeigt die Einflüsse der unterschiedlichen mikrophysikalischen Parameterisierungen auf die Aerosolgrößenverteilung anhand von neun verschiedenen Kombinationen bzgl. der Nukleationsrate und des Stoßkoeffizienten  $\alpha$ , siehe Tabelle 4.1.

Die gezeigten Sensitivitätsstudien sind dabei für 50 hPa sowie konstante Januar, April, Juli und Oktober Bedingungen durchgeführt worden. Als Eingabedaten wurden die ECHAM3-Simulationsdaten für Temperatur,  $\text{H}_2\text{O}$  und OH verwendet. Zur besseren Übersicht sind die Simulationsergebnisse mit unterschiedlichen Nukleationsansätzen in Abbildung 4.4 in verschiedenen Schattierungen dargestellt und die Stoßkoeffizienten werden durch bestimmte Symbole gekennzeichnet. Die Fehlerbalken kennzeichnen dabei die Amplitude der periodischen Schwingung, fehlen sie, erreicht der Grenzyklus für diesen Fall in dem von  $N_{15}$  und  $N_{15}/N_{25}$  aufgespannten Phasenraum einen Fixpunkt und die Größenverteilung einen stationären Zustand.

Betrachtet man zunächst die Auswirkungen des Stoßkoeffizienten  $\alpha$  auf die Teilchenkonzentration  $N_{15}$  und auf das Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$ , liegen beide Parameter für  $\alpha = 1$  wesentlich niedriger als für  $\alpha = 0.1$  und  $\alpha = 0.04$ .

Eine Erklärung dafür bietet die unterschiedliche Gewichtung der Nukleations- und der Kondensationsprozesse in den Sensitivitätsstudien. Dies wird deutlicher, wenn man die über die Periode gemittelte Gleichgewichtskonzentration der gasförmigen  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Moleküle betrachtet, sie liegt z.B. im Juli bei 50 hPa bei folgenden Werten in [Moleküle/ $\text{cm}^3$ ]:

1: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 5.5 \cdot 10^6$	2: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 3 \cdot 10^6$	3: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 1 \cdot 10^6$
4: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 1 \cdot 10^7$	5: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 8 \cdot 10^6$	6: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 5 \cdot 10^6$
7: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 6 \cdot 10^6$	8: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 3.5 \cdot 10^6$	9: $\text{H}_2\text{SO}_4 = 2 \cdot 10^6$

In den Sensitivitätsstudien 3, 6 und 9, für die ein Stoßkoeffizient von  $\alpha = 1$  angenommen worden ist, liegen die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentrationen bei wesentlich niedrigeren Werten als bei den mit der entsprechenden Nukleationsrate, jedoch mit einem kleineren  $\alpha$  berechneten Studien. Da bei einem Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 1$  jedes  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Molekül, wenn es auf ein Aerosolteilchen trifft, von ihm absorbiert wird, wird mehr  $\text{H}_2\text{SO}_4$  verbraucht, was die niedrigere Gleichgewichtskonzentration im Vergleich zu  $\alpha = 0.1$  bzw.  $\alpha = 0.04$  erklärt. Gleichzeitig steht dadurch aber auch für die Nukleation weniger  $\text{H}_2\text{SO}_4$  zur Bildung neuer Teilchen zur Verfügung, wodurch die Nukleationsrate gesenkt wird und somit für  $\alpha = 1$  die kleineren Werte für  $N_{15}$  in Abbildung 4.4 erklärt werden. Die ebenfalls geringeren Werte für das Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$  entstehen dadurch, daß auf Grund des schnelleren Wachstums der Aerosolteilchen das Maximum der simulierten Größenverteilung für einen Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 1$  bei höheren Radien liegt als für die anderen beiden Stoßkoeffizienten.

Bei den Nukleationsraten liegen erwartungsgemäß die Werte für A und C dicht beieinander, da sich die Nukleationsraten nur um 1 bis 2 Größenordnungen unterscheiden, siehe Kapitel 3.2.1. Größere Unterschiede sind dagegen zu den Ergebnissen mit einer nach der Hydrattheorie berechneten Nukleationsrate (B) zu erkennen. So liegen z.B. die Werte der Sensitivitätsstudien 9 und 7 für  $N_{15}$  und  $N_{15}/N_{25}$  um einen Faktor 2 bis 3 auseinander. Die Teilchenkonzentration  $N_{15}$  ist für B deutlich niedriger als für A und C, da auf Grund der bis auf das  $10^6$ -fachen kleineren Nukleationsrate wesentlich weniger Teilchen gebildet werden. Da weniger Schwefelsäure bei der Nukleation nach B im Vergleich zu A und C benötigt wird, liegt die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gleichgewichtskonzentration bei höheren Werten, so daß die gebildeten Aerosolteilchen durch Kondensation wesentlich schneller wachsen können als bei den entsprechenden Sensitivitätsstudien nach A und C. Das Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$  besitzt daher ebenfalls für alle drei  $\alpha$ -Werte im Vergleich zu A und C für B wesentlich geringere Werte. Es zeigt sich somit, daß sich die Aerosolgrößenverteilung erheblich unterscheiden kann, je nachdem, welcher Ansatz bei der Parameterisierung der Nukleation und der Kondensation berücksichtigt worden ist. Die geeignete mikrophysikalische Parameterisierung kann daher nur auf Grund der Übereinstimmung der Simulationsergebnisse mit den Beobachtungen ausgewählt werden, wobei sich diese in Abhängigkeit von der Modellkonfiguration, z.B. Berücksichtigung unlöslicher Teilchen durchaus ändern können.

Vergleicht man die Ergebnisse dieser Sensitivitätsstudien mit den grau gekennzeichneten Aerosol-Messungen von Hofmann und Rosen (1981) für das stratosphärische Hintergrundaerosol der Jahre 1978–1979, zeigt sich generell, daß die Sensitivitätsstudien mit  $\alpha = 1$  und einer homogenen Nukleationsrate nach der Hydrattheorie im Vergleich zu den Beobachtungen zu niedrig liegen.

Die Werte für  $N_{15}$  und  $N_{15}/N_{25}$  für April, Juli und Oktober liegen dagegen bei den Sensitivitätsstudien (1, 2, 7, 8) mit A und C sowie  $\alpha < 1$  in dem beobachteten Bereich. Für Januar zeigen sich für alle Sensitivitätsstudien große Diskrepanzen zwischen Simulation und Beobachtung, auf die im weiteren Verlauf noch näher eingegangen wird. Diese bis auf Januar in 50 hPa sehr gute Übereinstimmung zwischen Simulation

und Beobachtung ist um so höher zu bewerten, wenn man bedenkt, daß die Ergebnisse durch Vorgaben von konstanten Quellen und Senken für eine idealisierte Atmosphäre erzielt worden, und daß keine advektiven und diffusiven Prozesse und keine heterogene Nukleation mitberücksichtigt worden sind.

Die in den Boxsimulationen erhaltenen Gleichgewichtskonzentrationen für  $\text{H}_2\text{SO}_4$  sind dagegen mit Werten zwischen  $10^6$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  und  $10^7$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  um das 10 bis 100 fache zu groß im Vergleich zu dem von Arnold und Bührke (1983) gemessenen Wert von  $10^5$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ . Eine Ursache dafür mag in der groben Parameterisierung der Schwefelchemie liegen. Ein weiterer wichtiger Punkt ist, daß bei diesen Sensitivitätsstudien keine Kondensationsteilchen mit einem unlöslichen Kern betrachtet worden sind, deren Existenz die Aerosolgrößenverteilung und auch die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration über heterogene Nukleation entscheidend beeinflussen kann. Dies bleibt in dem mit dem Zirkulationsmodell und mit einem stratosphärischen Schwefelchemiemodul gekoppelten mikrophysikalischen Modell zu überprüfen.

Zusammenfassend zeigt sich, daß das mikrophysikalische Modell die beobachteten Teilchenkonzentrationen und Größenverhältnisse in 50 hPa sehr gut wiedergeben kann, wenn ein Stoßkoeffizient von  $\alpha < 1$  angenommen wird und die Nukleationsraten entweder klassisch (A), oder nach der Hydrattheorie mit SCC-Korrektur (C) berechnet werden. Die nachfolgenden Sensitivitätsstudien werden daher, wenn es nicht ausdrücklich anders erwähnt wird, mit einem Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 0.04$  und einer Nukleationsrate nach der Hydrattheorie mit SCC-Korrektur berechnet.

In Abbildung 4.4 sind Simulationen und Beobachtungen für 50 hPa miteinander verglichen worden. Es stellt sich daher im weiteren Verlauf die Frage, wie gut sie für andere Druckniveaus übereinstimmen. In den Abbildungen 4.5, 4.6 und 4.7 ist ein Vergleich von Boxsimulationen für 30 hPa, 50 hPa, 73 hPa und 100 hPa mit Ballonmessungen aus den Jahren 1978–1979 von Hofmann und Rosen (1981) dargestellt. Die verwendeten Meßdaten sind dabei in drei Perioden zu je 4 Monaten unterteilt, so daß in Abbildung 4.5 Boxsimulationen für konstante Januarbedingungen mit Profilen für die Monate November bis Februar, in Abbildung 4.6 Simulationen für konstante Aprilbedingungen mit Profilen von März bis Juni und in der Abbildung 4.7 Sensitivitätsstudien für konstante Juli- und Oktoberbedingungen mit Profilen von Juli bis Oktober verglichen werden. Die für die Sensitivitätsstudien verwendeten Eingabedaten sind in Tabelle A.1 im Anhang zusammengefaßt.

Zunächst wird die Winterperiode betrachtet, siehe Abbildung 4.5. Für die Teilchenkonzentration  $N_{15}$  wird dabei der Verlauf der beobachteten Profile, welcher durch ein Anwachsen der Teilchenkonzentration ausgehend von 30 hPa zu 50 hPa, einem relativ konstanten Wert bis 70 hPa und dann einem erneuten Anwachsen, der Teilchenkonzentration bei 100 hPa gekennzeichnet ist, gut wiedergegeben, Es ist dabei zu beachten, daß die Beobachtungen für einen Druck größer als 70 hPa eine relativ große Varianz zeigen. Wie sich jedoch schon in Abbildung 4.4 angedeutet hat, liegen für 30 hPa und 50 hPa die simulierten Teilchenkonzentrationen mit Werten von 2 No./ $\text{mg}^8$  bzw. 4 No./mg im Vergleich zu den beobachteten Werten im Bereich von 3 No./mg – 6 No./mg bzw. 4 No./mg – 7 No./mg deutlich zu niedrig. Eine Ursache dafür ist, daß im Winter die

---

<sup>8</sup>No./mg gibt die Anzahl der Teilchen pro mg Luft an

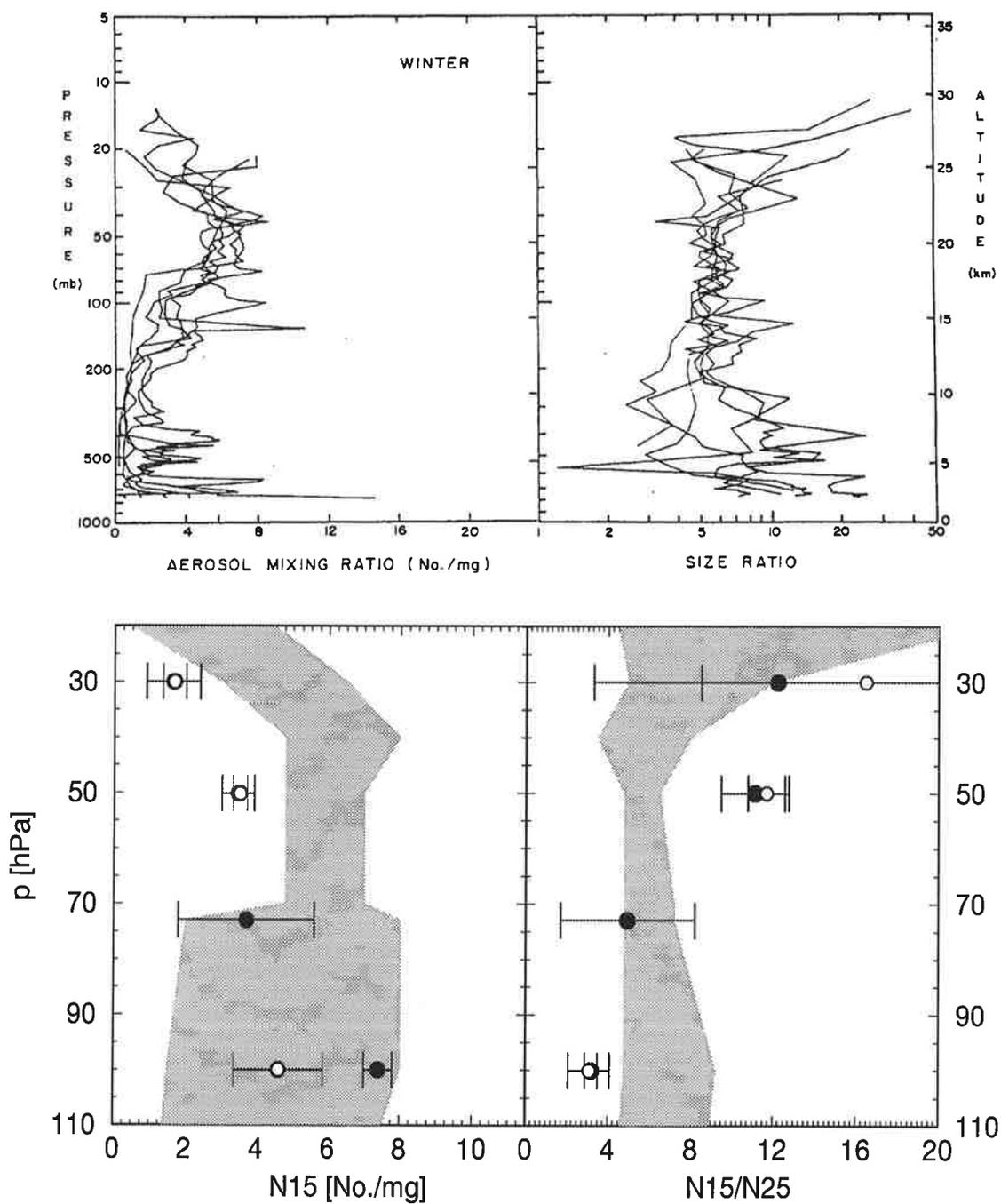


Abbildung 4.5: Vergleich von Profilen der Aerosolkonzentration ( $r \geq 0.15\mu\text{m}$ ) und des Größenverhältnisses ( $N_{15}/N_{25}$ ) für die Monate November bis Februar 1978–1979 aus Hofmann und Rosen (1981)(oberes Bild) mit Boxsimulationen für permanente Januarbedingungen (unteres Bild). Die dunklen Kreise markieren dabei Eingabedaten aus ECHAM3–Simulationen, die hellen aus Beobachtungen (T (Pawson et al., 1993),  $\text{H}_2\text{O}$  (Rind et al., 1993)).

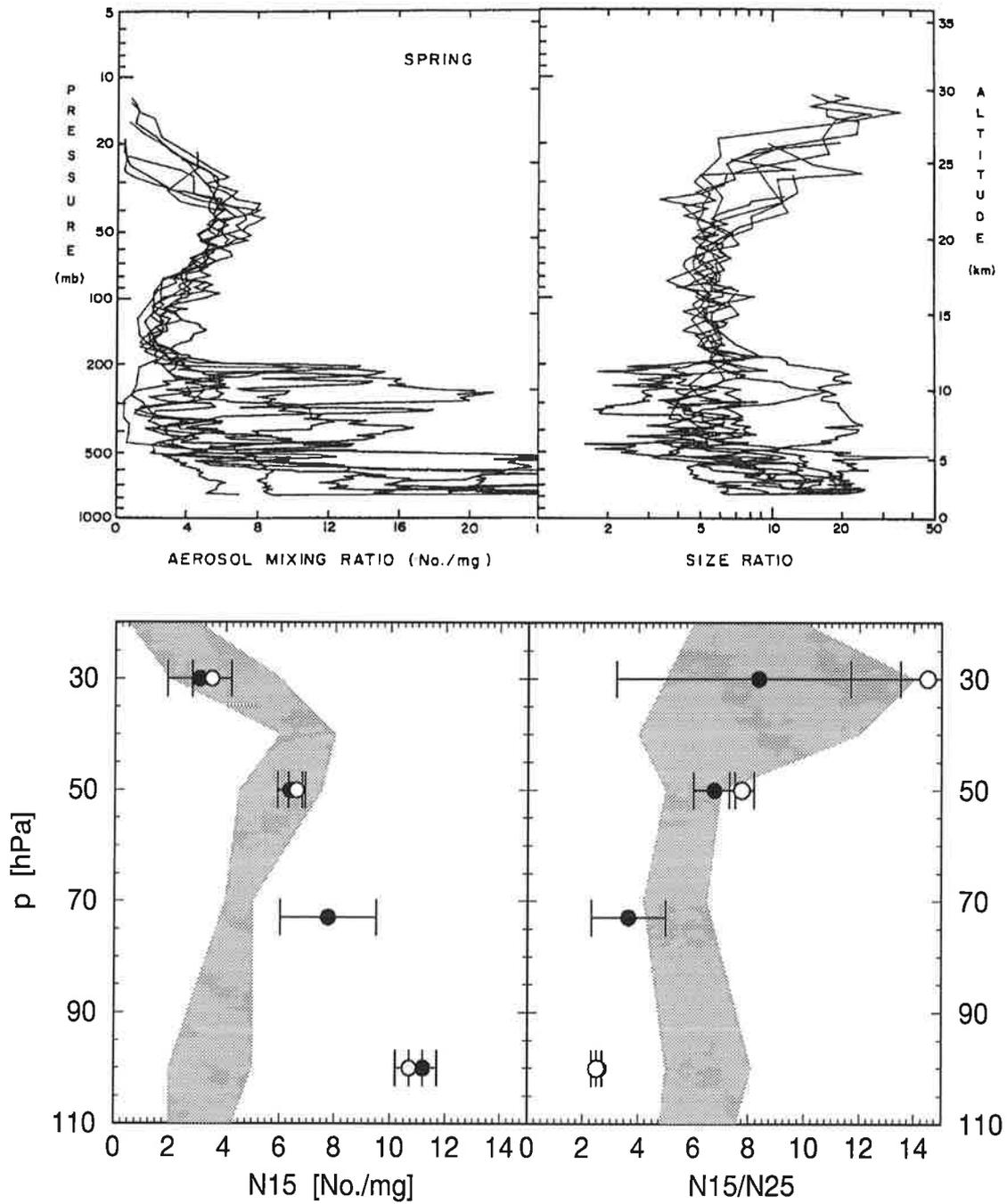


Abbildung 4.6: Vergleich von Profilen der Aerosolkonzentration ( $r \geq 0.15\mu\text{m}$ ) und des Größenverhältnisses ( $N_{15}/N_{25}$ ) für die Monate März bis Juni 1978–1979 aus Hofmann und Rosen (1981)(oberes Bild) mit Boxsimulationen für permanente Aprilbedingungen (unteres Bild). Die dunklen Kreise markieren dabei Eingabedaten aus ECHAM3–Simulationen, die hellen aus Beobachtungen (T (Pawson et al., 1993),  $\text{H}_2\text{O}$  (Rind et al., 1993)).

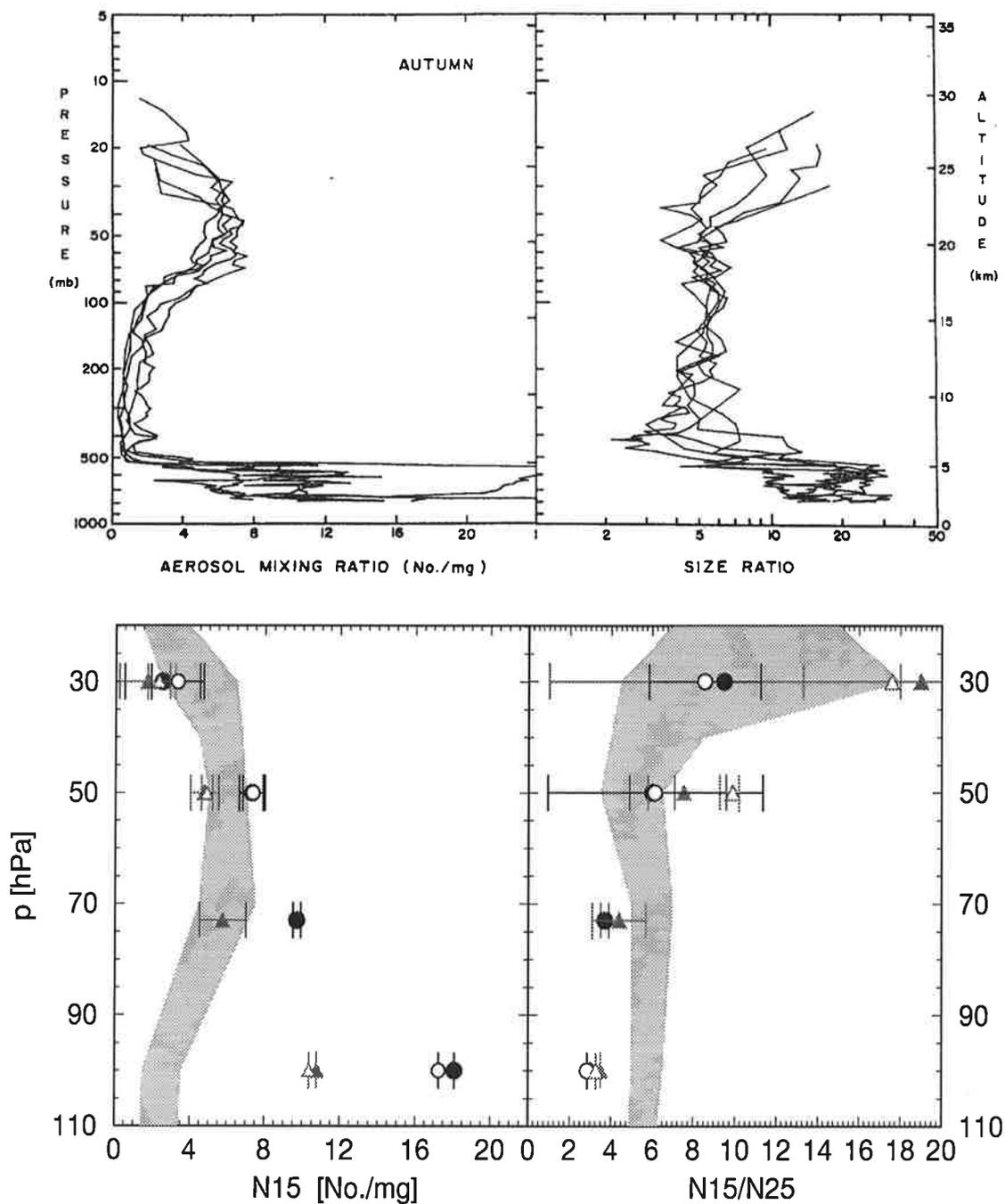


Abbildung 4.7: Vergleich von Profilen der Aerosolkonzentration ( $r \geq 0.15\mu\text{m}$ ) und des Größenverhältnisses ( $N_{15}/N_{25}$ ) für die Monate Juli bis Oktober 1978–1979 aus Hofmann und Rosen (1981) (oberes Bild) mit Boxsimulationen für permanente Julibedingungen (Kreise) und Oktoberbedingungen (Dreiecke) (unteres Bild). Die dunklen Symbole markieren dabei Eingabedaten aus ECHAM3-Simulationen, die hellen aus Beobachtungen (T (Pawson et al., 1993),  $\text{H}_2\text{O}$  (Rind et al., 1993)).

OH-Konzentration relativ niedrig ist und dadurch zu wenig  $\text{H}_2\text{SO}_4$  gebildet wird. Bei den Sensitivitätsstudien in Abbildung 4.5 liegt für 50 hPa die im Vergleich zum Jahresmittel von  $3.7 \cdot 10^5$  Moleküle/cm<sup>3</sup> OH relativ geringe Hydroxyl-Konzentration von  $2.3 \cdot 10^5$  Moleküle/cm<sup>3</sup> über die ganze Integrationszeit vor, während das beobachtete Aerosol den vollständigen Jahreszyklus, und damit auch Zeiten mit höherer OH-Konzentration durchlaufen hat. Die geringere OH-Konzentration im Oktober von  $4.7 \cdot 10^5$  Moleküle/cm<sup>3</sup> gegenüber der OH-Konzentration im Juli mit  $5.8 \cdot 10^5$  Moleküle/cm<sup>3</sup> erklärt auch, warum die Teilchenkonzentration  $N_{15}$  in Abbildung 4.7 für Oktober geringer ist als für Juli, obwohl Temperatur und Wasserdampfgehalt sich nur geringfügig unterscheiden. Auf den Einfluß der Eingabeparameter auf die Simulationsergebnisse wird im weiteren Verlauf noch näher eingegangen.

Während sich in Abbildung 4.6 und 4.7 im Gegensatz zu Abbildung 4.5 die simulierten Teilchenkonzentration für  $N_{15}$  für 30 hPa und 50 hPa in dem von Hofmann und Rosen (1981) beobachteten Bereich befinden, liegen sie dagegen für 73 hPa und 100 hPa deutlich über dem gemessenen Bereich. Grund dafür ist, daß in Laramie im Sommer die Tropopause in einer Höhe zwischen 14 km und 15 km im Winter aber nur in einer Höhe zwischen 9 km und 10 km liegt (Hofmann et al., 1975). Durch die hohe Tropopause im Bereich von 100 hPa im Sommer, werden Aerosolteilchen in dieser Höhe durch turbulente Vermischung sowie durch Auswaschprozesse entfernt. Diese Prozesse, die eine zusätzliche Senke für die Aerosolteilchen darstellen, sind in dem für die Stratosphäre konzipierten mikrophysikalischen Modell nicht enthalten und können daher nicht beschrieben werden. Der Einfluß der Tropopausenhöhe auf die vertikale Verteilung der Teilchenkonzentration  $N_{15}$  zeigt sich sehr deutlich anhand des konkaven Profils. Für die Wintermonate in Abbildung 4.5, wenn die Tropopause über Laramie sehr niedrig ist, fällt die beobachtete Teilchenkonzentration relativ langsam ab und erreicht bei 200 hPa Werte unter 3 No./mg, während sie in Abbildung 4.7 für die durch eine hohe Tropopause gekennzeichneten Monate, Juli–Oktober, schon bei 100 hPa diesen Wert unterschritten hat.

Die Profile des simulierten Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$  liegen in Abbildung 4.5 für 30 hPa und 73 hPa im Bereich der Beobachtungen, für 100 hPa dagegen liegen sie mit Werten bei 3 im Vergleich zum beobachteten Bereich mit Werten zwischen 4 und 8 zu niedrig. Ein ähnliches Bild zeigt sich für  $N_{15}/N_{25}$  in Abbildung 4.6 und 4.7, wo die Werte für 30 hPa, 50 hPa und 73 hPa im beobachteten Bereich liegen, während die Werte für 100 hPa zu klein sind. Die zu geringen Werte des Größenverhältnisses bei 100 hPa lassen sich durch die im Boxmodell nicht berücksichtigte vertikale Diffusion erklären.

Generell zeigen die Beobachtungen für alle drei Meßperioden ein ähnliches Profil in der Aerosolkonzentration und im Größenverhältnis, wobei die Aerosolkonzentration einen konkaven Verlauf nimmt und das Größenverhältnis über einen großen Bereich relativ konstant bleibt, und dann ab einer bestimmten Höhe sehr stark anwächst. Die Höhe des Maximums in der Aerosolkonzentration und des Wendepunktes im Größenverhältnis sind dabei jahreszeitlich unterschiedlich und werden von der Tropopausenhöhe bestimmt. Auch in den Simulationen gleichen sich in allen drei Abbildungen die vertikalen Profile von  $N_{15}$  und  $N_{15}/N_{25}$ . Mit der Höhe nehmen die simulierten Aerosolkonzentrationen ab, und die Größenverhältnisse zu. Das Boxmodell kann damit nicht die beobachtete Abnahme in der Aerosolkonzentration zwischen 50 hPa und 70 hPa und die Stabilität im

Größenverhältnis ab 50 hPa und höher wiedergeben. Grund für die mit zunehmenden Druck größer werdende Diskrepanz ist, daß das Boxmodell auf Grund seiner Konzeption keine Diffusion und keine advektiven Prozesse berücksichtigt. Es ist daher um so erstaunlicher, wie gut das Modell für viele Beobachtungspunkte die beobachteten Größenordnungen richtig wiedergibt.

Modellsimulationen für 10 hPa sind ebenfalls durchgeführt worden. Es erfolgte jedoch bei diesem Druck keine Aerosolbildung, was mit den Messungen von Hofmann und Rosen (1981) konform ist. Auch dieses Ergebnis bestätigt, daß das mikrophysikalische Modell physikalisch sinnvoll reagiert.

Um abzuschätzen, inwieweit sich beobachtete Temperaturen und beobachtete  $H_2O$ -Konzentrationen auf die Simulationsergebnisse auswirken, sind in den Abbildungen 4.5, 4.6 und 4.7 zum Vergleich Ergebnisse mit den Beobachtungsdaten für 30 hPa, 50 hPa und 100 hPa als Initialisierungsparameter dargestellt. Es zeigt sich dabei, daß sich für  $N_{15}$  die Sensitivitätsstudien mit Simulationsdaten und Beobachtungsdaten nicht wesentlich voneinander unterscheiden. Die Abweichung in der Aerosolkonzentration bei 100 hPa in Abbildung 4.5 wird im weiteren Verlauf näher erläutert. Größere Unterschiede sind in Abbildung 4.5, 4.6 und 4.7 für  $N_{15}/N_{25}$  in 30 hPa zu erkennen. Betrachtet man die Eingangsdaten für 30 hPa in Tabelle A.1, so fällt auf, daß die Simulationsdaten für  $H_2O$  im Vergleich zu den Beobachtungsdaten um die Hälfte kleiner sind.  $H_2O$  entsteht im wesentlichen in der Stratosphäre durch Methanoxidation, diese wird jedoch bei den mit dem Zirkulationsmodell berechneten  $H_2O$ -Konzentrationen nicht berücksichtigt. Auch in den Temperaturdaten ist für 30 hPa ein Unterschied zwischen Beobachtungs- und Simulationsdaten zu erkennen. Es deutet sich somit an, daß die Eingabedaten einen erheblichen Einfluß auf die Aerosolgrößenverteilung haben. Dieser Effekt wird im folgenden näher untersucht.

Abbildung 4.8 zeigt für Januar und für Juli die Abhängigkeit der Aerosolgrößenverteilung von der  $H_2O$ -, der  $SO_2$ - und der  $OH$ -Konzentration sowie von der Temperatur für 50 hPa und 73 hPa. Betrachtet man zunächst den Einfluß der Temperatur auf die Teilchenkonzentration  $N_{15}$  und auf das Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$ , so ist für alle vier Fälle ein Anwachsen in der Teilchenkonzentration bei einer Temperaturerniedrigung um 5 K und entsprechend eine Abnahme der Aerosolkonzentration bei einer Temperaturerhöhung um 5 K zu beobachten. Das Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$  verhält sich entsprechend zur Aerosolkonzentration und nimmt für tiefere Temperaturen zu und für höhere ab. Wie Abbildung 3.5 im vorhergehenden Kapitel zeigt, steigt die Nukleationsrate bei konstanten Konzentrationen von  $H_2O$  und  $H_2SO_4$  für niedrigere Temperaturen bzw. sinkt vice versa für höhere Temperaturen. Die Verschiebung der Aerosolgrößenverteilung bei einer Temperaturveränderung läßt sich somit entsprechend den in Abbildung 4.4 beobachteten Unterschieden zwischen den einzelnen Nukleationsraten erklären. Da die Nukleationsrate nicht linear von der Temperatur abhängt, siehe Abbildung 3.5, wirkt sich die Temperaturänderung unterschiedlich stark auf die Aerosolgrößenverteilung aus. Die durch eine Temperaturdifferenz von  $\pm 5$  K hervorgerufene Veränderung in der Größenverteilung ist somit tendenziell für alle 4 in Abbildung 4.8 betrachteten Fälle gleich, jedoch reduziert sich z.B. für Juli bei einer Temperaturerhöhung von 5 K die mittlere Aerosolkonzentration um 19% von 9.7 No./mg auf 7.8 No./mg in 73 hPa, aber um 26 % von 7.3 No./mg

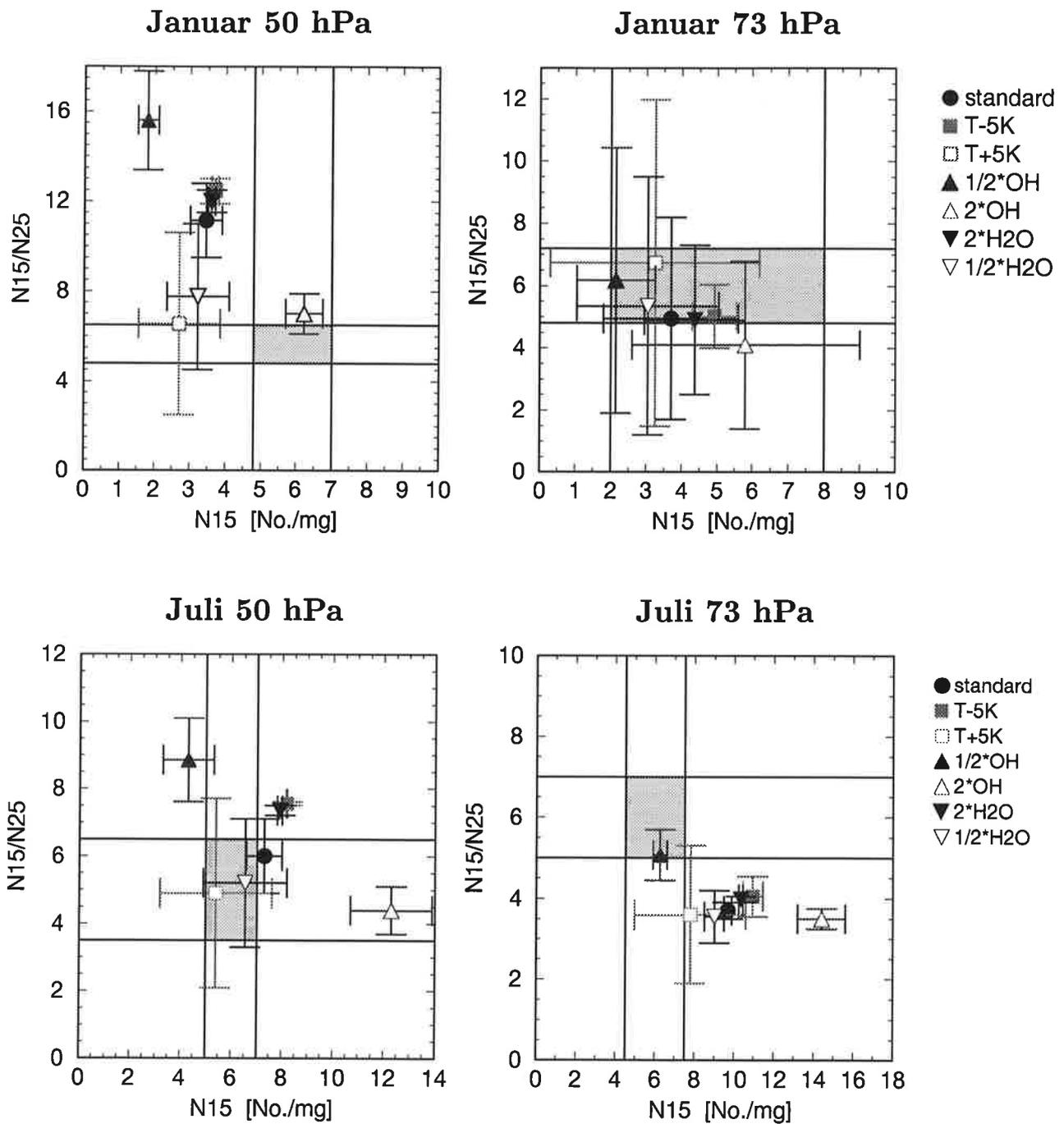


Abbildung 4.8: Abhängigkeit der Aerosolkonzentration  $N_{15}$  und des Größenverhältnisses  $N_{15}/N_{25}$  von den Initialisierungsbedingungen. Die Symbole bezeichnen die unterschiedlichen Eingangsparameter. Die graue Fläche kennzeichnet den Meßbereich von Hofmann und Rosen (1981). Es ist die unterschiedliche Skalierung der einzelnen Monate zu beachten.

auf 5.4 No./mg in 50 hPa. Für 73 hPa im Januar ist in den Sensitivitätsstudien eine starke Schwankung in der Aerosolkonzentration und in dem Größenverhältnis bei einer Temperaturerhöhung um 5 K von 221 K auf 226 K zu beobachten. Grund dafür ist, daß bei einer Temperatur von 226 K die homogene Nukleation sehr schwach ausgeprägt ist, so daß Teilchenbildung nur in geringem Ausmaße stattfindet.

Der bereits erwähnte Unterschied in der Teilchenkonzentration  $N_{15}$  in Abbildung 4.5 bei 100 hPa läßt sich auf die 2.5 K Temperaturunterschied zwischen beobachteter (217.75 K) und ECHAM-Temperatur (215 K) zurückführen. Interessanterweise ist jedoch für  $N_{15}$  in Abbildung 4.6 kein Unterschied zwischen Simulationsdaten und Beobachtungsdaten zu erkennen, obwohl die beobachtete Temperatur mit 213.25 K um 2.25 K niedriger liegt als die aus der ECHAM3-Simulation mit  $T = 216$  K. Im Gegensatz zu den Januar-daten unterscheiden sich im April bei 100 hPa auch die Werte für die  $H_2O$ -Konzentration mit 3 ppmv zu 5 ppmv.

Wie Abbildung 4.8 verdeutlicht, zeigt sich bei einer Veränderung der  $H_2O$ -Konzentration ein analoges Änderungsmuster in der Aerosolgrößenverteilung wie bei einer Temperaturänderung. Bei einer Verdopplung der  $H_2O$ -Konzentration ist ein Ansteigen in der Teilchenkonzentration  $N_{15}$  und im Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$  zu beobachten und bei einer Erniedrigung der  $H_2O$ -Konzentration um die Hälfte eine Verringerung beider Werte. Durch ein Ansteigen in der  $H_2O$ -Konzentration wird, wie ebenfalls im vorhergehenden Kapitel in Abbildung 3.4 aufgezeigt, die Nukleationsrate erhöht. Die durch eine veränderte relative Feuchte veränderte Nukleationsrate ist, in Analogie zu den Temperaturänderungen, Ursache für die beobachtete unterschiedliche Entwicklung der Aerosolgrößenverteilung. Es ist dabei zu berücksichtigen, daß in der Natur oftmals eine Temperaturerniedrigung mit einer Erniedrigung der  $H_2O$ -Konzentration bzw. eine Temperaturerhöhung mit einem Ansteigen der relativen Feuchte einhergeht, so daß sich diese Effekte gegenseitig puffern können. Dies zeigt sich auch bei dem schon erwähnten Vergleich zwischen den Ergebnissen mit beobachteten und simulierten Eingabedaten für konstante Aprilbedingungen bei 100 hPa in Abbildung 4.6. Hier heben sich die Effekte auf Grund von höherer Temperatur und höherer  $H_2O$ -Konzentration (216 T/5 ppmv) in den ECHAM3-Daten einerseits, und von niedrigerer Temperatur und niedrigerer  $H_2O$ -Konzentration (213.75 T/3 ppmv) aus den Beobachtungen andererseits, nahezu gegenseitig auf.

Da in den Sensitivitätsstudien die Quellstärke der  $H_2SO_4$ -Konzentration proportional zur OH- und zur  $SO_2$ -Konzentration ist, wird die Veränderung der Aerosolgrößenverteilung bezüglich beider Konzentrationen durch eine Verdopplung bzw. eine Halbierung der Quellstärke betrachtet. Wird die Quellstärke verdoppelt, erhöht sich entsprechend zur  $H_2O$ -Änderung die Aerosolteilchenkonzentration  $N_{15}$ . Im Gegensatz zur  $H_2O$ -Änderung verringert sich jedoch das Größenverhältnis bei einer Erhöhung der OH/ $SO_2$ -Konzentration. Das unterschiedliche Verhalten in dem Größenverhältnis erklärt sich aus der Tatsache, daß durch die Verdopplung der Quellstärke die  $H_2SO_4$ -Konzentration erhöht wird. Eine Erhöhung der  $H_2SO_4$ -Konzentration hat jedoch nicht nur Auswirkungen auf die Nukleationsrate, sondern auch auf das Wachstum der Aerosolteilchen durch Kondensation. Ist wesentlich mehr  $H_2SO_4$  vorhanden, können die Aerosolteilchen schneller wachsen und die Aerosolgleichgewichtsverteilung verschiebt sich zu höheren Radien, wodurch das Größenverhältnis gesenkt wird. Der Einfluß, den eine Veränderung der

SO<sub>2</sub>/OH-Konzentration auf die Aerosolgrößenverteilung hat, ist erheblich, so erhöhen und erniedrigen sich die Teilchenkonzentrationen bei einer Verdopplung bzw. Halbierung der Quellstärke um mehr als 50%.

Ballonmessungen aus Laramie (Hofman, 1990) und Lidarmessungen aus Garmisch (Jäger und Wege, 1990) zeigten einen Anstieg in der Masse des stratosphärischen Hintergrund-aerosols in dem Zeitraum von 1979–1989. Für den Anstieg in der Sulfatmasse ist dabei nach Hofmann (1990) ein Erhöhung der SO<sub>2</sub>-Konzentration entweder durch anthropogene SO<sub>2</sub>-Emissionen oder durch einen Anstieg der COS-Konzentration verursacht. Die Zunahme der Aerosolmasse geht dabei mit einer relativ hohen Anzahl größerer Teilchen einher, was einem kleineren Größenverhältnis entspricht. Diese Tendenz wird ebenfalls in den Sensitivitätsstudien in Abbildung 4.8 bei einer Erhöhung der SO<sub>2</sub>-Konzentration beobachtet. Der in der unteren Stratosphäre beobachtete Temperaturtrend von -0.34 C° pro Dekade (Nicholls et al., 1996) ist dagegen noch zu gering, um eine signifikante Änderung in der Aerosolgrößenverteilung zu bewirken. Wäre er jedoch stärker ausgeprägt, würde eine größere Anzahl kleinerer Aerosolteilchen beobachtet werden. Abbildung 4.8 verdeutlicht somit den Einfluß, den die Umgebungsbedingungen und eventuell anthropogen verursachte Veränderungen auf die Entwicklung der Größenverteilung haben.

Zusammenfassend ist dabei festzuhalten, daß Temperatur- und H<sub>2</sub>O-Änderungen ein anderes Änderungsmuster in der Aerosolgrößenverteilung in den Boxstudien hervorrufen, als Änderungen der SO<sub>2</sub>-Konzentration. Während bei einer Temperatur- und einer H<sub>2</sub>O-Änderung eine Erhöhung der Aerosolkonzentration mit einer Erhöhung des Größenverhältnisses einhergeht, verhalten sich bei einer Veränderung der SO<sub>2</sub>/OH-Konzentration Aerosolkonzentration und Größenverhältnis umgekehrt. Um die jahreszeitlichen Variationen in der Temperatur und in den chemischen Konzentrationen mit zu berücksichtigen, sind Sensitivitätsstudien mit monatlich veränderten Eingabedaten durchgeführt worden. Als Eingabedaten sind dafür monatlich gemittelte Daten für Temperatur, H<sub>2</sub>O und OH aus dem ECHAM3 T21 12-Jahreslauf (Steil, 1997) verwendet worden.

Abbildung 4.9 zeigt einen Vergleich dieser Boxmodellergebnisse für 41° N mit den Beobachtungen von Hofmann und Rosen (1981) sowie mit eindimensionalen Simulationen von Rosen et al. (1978) und Turco et al. (1979a). Bei den Beobachtungen liegen gemittelte Profile aus den Jahren 1979 für Herbst und Winter vor, die Hofmann und Rosen (1981) als repräsentativ für Gleichgewichtsbedingungen in Laramie annahmen. Das Modell von Rosen et al. (1978) basiert auf der analytischen Lösung der Koagulation, Kondensation, Sedimentation und der turbulenten Diffusion. Das wichtigste Kennzeichen des Rosen et al.-Modells ist, daß eine an die in Laramie Mitte 1974 vorliegende Bedingungen angepaßte H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Wachstumsschicht angenommen worden ist. Die daraus resultierende gaussförmige H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Verteilung ist in 20 km Höhe mit einem maximalen Wert von  $1.2 \cdot 10^6$  Moleküle/cm<sup>3</sup> zentriert worden. Im Modell von Turco et al. (1979a) dagegen wird die H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration aus den Vorläufergasen COS und SO<sub>2</sub> über stratosphärische Schwefelreaktionen berechnet. Turco et al. (1979a) berücksichtigten in ihrem stratosphärischen Aerosolmodell Kondensation, Koagulation, heterogene Nukleation, turbulente Diffusion und Sedimentation. In Abbildung 4.9 sind die Modellergebnisse von Turco et al. (1979a) mit zwei verschiedenen Profilen des Diffusionskoeffizienten gerechnet worden, dem von Wofsy und McElroy (1973) und dem von Hunten (1975). Das Hunten-

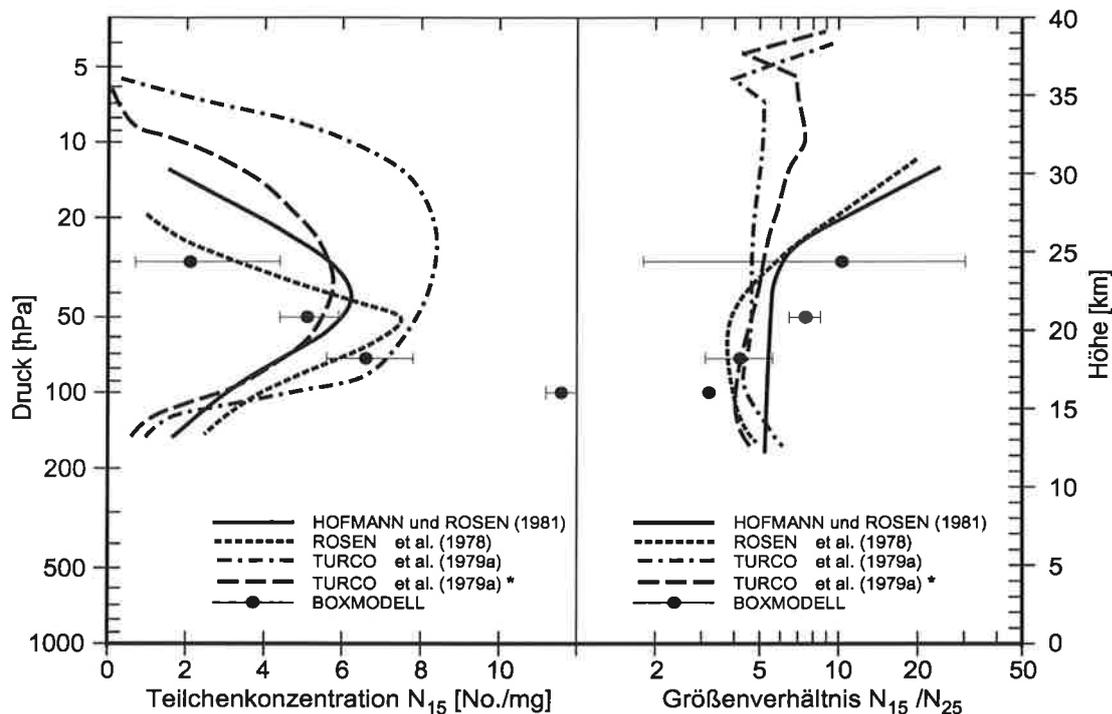


Abbildung 4.9: Vergleich der simulierten Aerosolkonzentration  $N_{15}$  und des simulierten Größenverhältnisses  $N_{15}/N_{25}$  mit Meßprofilen von Hofmann und Rosen (1981) sowie Simulationen von Rosen et al. (1978) und Turco et al. (1979a). Die Simulationen von Turco et al. (1979a) unterscheiden sich in der Wahl des Profils des Diffusionskoeffizienten. Die mit \* gekennzeichnete Simulation ist mit dem Hunten-Profil gerechnet worden.

Profil hat oberhalb von 15 km niedrigere Werte als das Wofsy-McElroy-Profil, so daß beim letzteren schnellere vertikale Diffusion stattfindet. Abbildung 4.9 zeigt deutlich den großen Einfluß des Diffusionsprofils auf die Aerosolteilchenkonzentration. Während die Simulation mit dem Wofsy-McElroy-Profil die Beobachtungen um mehr als das Doppelte überschätzen, geben die Simulationen mit dem Hunten-Profil sie relativ gut wieder. Die vertikale Diffusion ist in dem Boxmodell, da es für den Einbau in ein Zirkulationsmodell entwickelt worden ist, nicht berücksichtigt. Das Boxmodell ist deshalb auch nicht in der Lage, die Abnahme der Aerosolkonzentration in geringeren Höhen und die Stabilität des Größenverhältnisses zu simulieren.

Betrachtet man zunächst die Teilchenkonzentration  $N_{15}$ , so zeigen die mit einem Jahreszyklus in der Temperatur sowie in der  $H_2O$ - und in der  $OH$ -Konzentration gerechneten Boxmodellergebnisse ein ähnliches Verhalten wie die Ergebnisse für konstante Bedingungen. Die Werte für 100 hPa sind, wie auch in den Abbildungen 4.6 und 4.7 auf Grund des fehlenden vertikalen Austausches, zu hoch. Die Teilchenkonzentration  $N_{15}$  für 50 hPa stimmt dagegen gut mit den Beobachtungen überein. In 30 hPa liegen die Teilchenkonzentrationen zwar mit Werten zwischen 4.4 No./mg und 0.7 No./mg und einem mittleren Wert bei 2.1 No./mg gegenüber den Beobachtungen zu niedrig, doch stimmen die Werte sehr gut mit dem simulierten Profil von Rosen et al. (1978) überein. Das Rosen et al.-Profil ist an Beobachtungsdaten für das Jahr 1974 angepaßt worden, wo eine niedrigere vertikale Ausdehnung der Aerosolschicht und eine höhere Aerosolkonzentration in

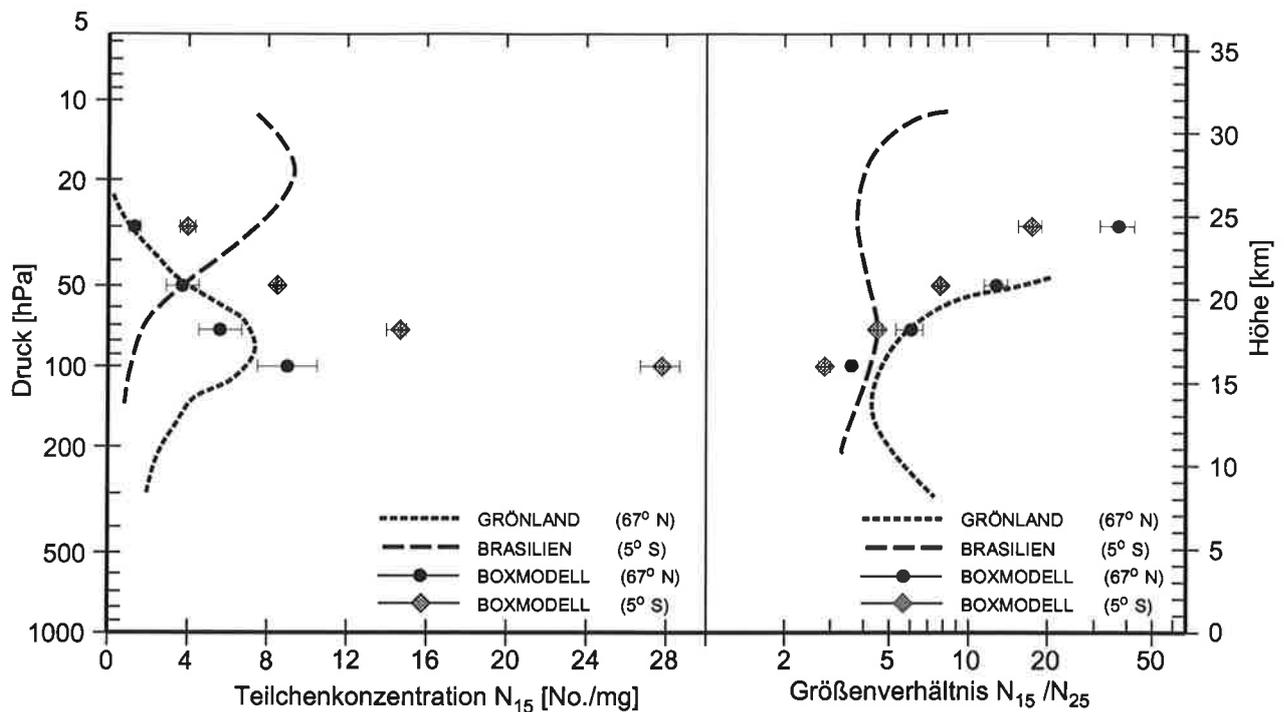


Abbildung 4.10: Vergleich der simulierten Aerosolkonzentration  $N_{15}$  und des simulierten Größenverhältnisses  $N_{15}/N_{25}$  mit Meßprofilen von Hofmann und Rosen (1981) für die nördlichen Breiten und die Tropen.

Laramie beobachtet worden sind. Es ist desweiteren zu berücksichtigen, daß die Vertikalprofile in Laramie von 1979 oberhalb von 21 km wesentlich höhere Mischungsverhältnisse und kleinere Größenverhältnisse haben als 1978 (Hofmann und Rosen, 1981). Bedenkt man ferner, daß in den Boxstudien Werte aus den ECHAM3-Simulationen mit zu niedrigen  $H_2O$ -Konzentrationen verwendet worden sind, so kann man festhalten, daß das Boxmodell die Teilchenkonzentration in den mittleren Breiten oberhalb von 18 km wiedergeben kann. Eine entsprechende Aussage gilt auch für das Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$ . Das Boxmodell ist in der Lage, den oberhalb von 21 km – 25 km beobachteten Anstieg des Größenverhältnisses zu beschreiben. Dieser Anstieg ist nach Hofmann und Rosen (1981) ein entscheidendes Kriterium für alle Aerosolmodelle, da er die Höhe markiert, wo das Wachstum der Aerosolteilchen durch Kondensation aufhört. Das Wachstum der Aerosolteilchen durch Kondensation bzw. ihre Verkleinerung durch Verdunstung wird im wesentlichen vom Sättigungsdampfdruck der gasförmigen Schwefelsäure bestimmt, siehe Tabelle 3.1. Danach müßte ein Ansteigen im Größenverhältnis wie bei den Profilen von Turco et al. erst in  $\approx 35$  km Höhe beobachtet werden. Das Ansteigen des Größenverhältnisses mit der Höhe in den Boxsimulationen, welche keine vertikalen Austauschprozesse berücksichtigen, weist darauf hin, daß für diesen Effekt im wesentlichen die Sedimentation von großen Teilchen verantwortlich ist.

Abbildung 4.9 zeigt, daß das Boxmodell in der Lage ist, die Beobachtungen in  $41^\circ$  N wiederzuspiegeln, es stellt sich daher die Frage, inwieweit es Messungen aus anderen Breiten wiedergeben kann. In Abbildung 4.10 sind Modellergebnisse für eine nördlichere Breite ( $67^\circ$  N) und für eine äquatoriale Breite ( $5^\circ$  S) im Vergleich zu Beobachtungen (Hofmann

und Rosen, 1981) aufgeführt. Die beobachteten Werte stammen von zwei Messungen aus Grönland und drei aus Brasilien, also im Gegensatz zu den Beobachtungen aus Laramie, aus einem recht spärlichen Datensatz. Bei dem Vergleich in Abbildung 4.10 fällt vordergründig auf, daß die Teilchenkonzentrationen  $N_{15}$  und die Größenverhältnisse  $N_{15}/N_{25}$  für  $67^\circ$  N sehr gut mit den Beobachtungen übereinstimmen, für  $5^\circ$  S jedoch erhebliche Differenzen zwischen Simulationen und Beobachtungen zeigen. Für die nördlichere Breite geben die Werte für  $N_{15}$  bei 30 hPa, 50 hPa mit 1.3 No./mg und 3.7 No./mg die beobachteten Werte sehr gut wieder. Der Wert für 73 hPa liegt ein wenig zu niedrig, was sich aber durch Unsicherheiten in den Eingabedaten sehr gut erklären läßt. Auch die Werte für das Größenverhältnis geben den beobachteten Verlauf für 50 hPa und 73 hPa mit Werten von 12.08 und 6.05 sehr gut wieder. Für 100 hPa zeigen sich auf Grund der fehlenden vertikalen Advektion und Diffusion auch bei  $67^\circ$  N die schon bei  $41^\circ$  N aufgetretenen Unterschiede. Da jedoch das Maximum in der Aerosolkonzentration auf Grund der niedrigen Tropopausenhöhe in den hohen Breiten bei 80 hPa liegt, und damit niedriger als das Maximum von  $41^\circ$  N bei 50 hPa, sind die Unterschiede bei 100 hPa nicht so gravierend wie für die mittleren Breiten.

Für die Tropen mit einer sehr hohen Tropopause und damit verbunden sehr hochreichenden konvektiven Prozessen liegt das Maximum in der Aerosolteilchenkonzentration in den Beobachtungen mit 10 No./mg zwischen 10 hPa und 20 hPa, danach ist auf Grund starker vertikaler Austauschprozesse ein Absinken in der Aerosolkonzentration mit kleiner werdender Höhe zu beobachten. Auch der vertikale Verlauf des Größenverhältnisses zeigt, daß für die Tropen zwischen 20 km–30 km vertikale Austauschprozesse eine wichtige Rolle spielen. Das Boxmodell, in dem als vertikaler Austauschprozeß nur die Sedimentation berücksichtigt ist, ist daher nicht in der Lage, die Beobachtungen zu reproduzieren.

## 4.3 Das vulkanische Aerosol

In diesem Abschnitt wird untersucht, inwieweit das Boxmodell in der Lage ist, die zeitliche Entwicklung der Aerosolgrößenverteilung nach einer vulkanischen Störung zu beschreiben.

### 4.3.1 Messungen

Durch die Eruptionen hochreichender und schwefelhaltiger Vulkane, wie des El Chichón im April 1982 und des Pinatubo im Juni 1991, sind zusätzliche Mengen von  $\text{SO}_2$  in die Stratosphäre gebracht worden. Durch die Erhöhung der  $\text{SO}_2$ -Konzentration wurde die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration erheblich vergrößert und als Folge davon über Nukleation, Kondensation und Koagulation die Aerosolgrößenverteilung wesentlich gestört. So konnten Hofmann und Rosen (1983) 45 Tage nach dem Ausbruch des El Chichón in 25 km eine hochgradig bimodale Verteilung mit Moderadien bei  $0.02 \mu\text{m}$  und  $0.7 \mu\text{m}$  messen. Messungen der Aerosolgrößenverteilung nach dem Ausbruch des Pinatubo bestätigten den bimodalen Charakter des vulkanisch gestörten Aerosols. So zeigten vertikale Aerosolprofile aus Laramie ( $41^\circ$  N) von Deshler et al. (1992a,1993), daß die Aerosolgrößenverteilungen unterhalb von 21 km am besten durch eine bimodale Lognormalverteilung und

oberhalb von 22 km am besten durch eine unimodale Größenverteilung charakterisiert werden. Die zu Anfang in Laramie beobachtete hohe zeitliche und vertikale Variabilität in den Aerosolgrößenverteilungen war dabei nach einem halben Jahr verschwunden. Auch Sonnenphotometer- (Russel et al., 1993), Lidar- (Valero und Pilewskie, 1992) und Flugzeugmessungen (Wilson et al., 1993) konnten bimodale Größenverteilungen nach dem Pinatuboausbruch messen. In der Nähe der Tropopause wurde bis März 1992 sogar eine trimodale Größenverteilung beobachtet, wobei der dritte Mode sich aus mit Schwefelsäure überzogenen Aschepartikeln zusammensetzte (Pueschel et al., 1994). Neben der Ausbildung einer bimodalen Struktur ist für das vulkanische Aerosol im Vergleich zum Hintergrundaerosol eine Verschiebung der Aerosolgrößenverteilung zu größeren Radien zu beobachten, welche durch den Anstieg des effektiven Radius gekennzeichnet ist. Der effektive Radius  $r_{\text{eff}}$  ist ein in der Literatur häufig verwendeter Parameter, um die Veränderung von Teilchengrößenverteilungen zu beschreiben und hat den Vorteil, unabhängig von der Anzahl der Aerosolteilchen und der zur Beschreibung gewählten Verteilungsform zu sein. Er ist definiert über (Hansen und Travis, 1974):

$$r_{\text{eff}} = \frac{M_3}{M_2} \quad , \quad (4.5)$$

wobei  $M_m$ , das  $m$ -te Moment der Größenverteilung, gegeben ist durch:

$$M_m = \int \frac{dn(r)}{dr} r^m dr \quad . \quad (4.6)$$

Anhand des effektiven Radius läßt sich darüber hinaus nach Lacis et al. (1992) die Klimawirksamkeit des stratosphärischen Aerosols ablesen. Ist  $r_{\text{eff}}$  größer als  $2 \mu\text{m}$ , so ist im globalen Mittel eine Erwärmung der Erdoberfläche zu beobachten, da der Treibhauseffekt des Aerosols den Albedo-Effekt überwiegt.

Im ersten Monat nach der Pinatuboeruption wurden sehr viele kleine Teilchen und sehr viele große Teilchen beobachtet, so daß sich der effektive Radius mit Werten bis  $0.2 \mu\text{m}$  nicht wesentlich von den präeruptiven Werten für  $r_{\text{eff}}$ , die im Bereich von  $0.17 \pm 0.07 \mu\text{m}$  liegen, unterscheidet (Russel et al., 1996). In den folgenden Monaten bis ein Jahr nach dem Ausbruch ist ein Anstieg des effektiven Radius auf Werte von  $0.5 \mu\text{m}$  bis  $1 \mu\text{m}$ , je nach Meßinstrument, beobachtet worden, siehe Abbildung 4.13. Ein weiterer wichtiger Parameter für die veränderte Größenverteilung des stratosphärischen Aerosols nach einem Vulkanausbruch ist die Oberflächenkonzentration. Die Oberflächenkonzentration ist die für die heterogene Chemie und damit die für den Abbau von Ozon entscheidende Größe. Nach dem Pinatuboausbruch im Juni 1991 wurden Oberflächenkonzentrationen in der Größenordnung von  $20 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$  –  $100 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$  beobachtet (Russel et al., 1993; Thomason et al., 1997). Diese waren um ein oder zwei Größenordnungen höher als die von Hitchmann et al. (1994) angegebenen über 10-Jahre gemittelten Werte zwischen  $2 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$  und  $5 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ , die geringer vulkanisch gestört waren, bzw. dem von der WMO (1992) empfohlenen Datensatz im Bereich von  $0.5 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$  –  $1.75 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ .

### 4.3.2 Sensitivitätsstudien

Die durch einen starken Vulkanausbruch hervorgerufenen Veränderungen in der Aerosolgrößenverteilung mit einem mikrophysikalischen Boxmodell ohne advective und diffusive

Prozesse und ohne stratosphärische (Schwefel-)Chemie zu simulieren, ist mit starken Einschränkungen behaftet. Da in dem Modell keine Komponenten mit einem unlöslichen Kern berücksichtigt worden sind, können Aschepartikel, die die Aerosolgrößenverteilung in den ersten Monaten mit beeinflussen, nicht mit berücksichtigt werden.

Durch vulkanische Eruptionen werden ungefähr 10 bis 100 mal mehr  $\text{H}_2\text{O}$ - als  $\text{SO}_2$ -Moleküle in die Atmosphäre gebracht (Tabazadeh und Turco, 1993). Diese Werte sind jedoch ungewiß, da ein großer Teil des bei einer Vulkaneruption emittierten Wasserdampfes in der Troposphäre kondensiert und ausregnet. Eine erhöhte  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration in der Stratosphäre beschleunigt einerseits Wachstum und Teilchenbildung durch homogene Nukleation, andererseits werden auch für ein  $\text{SO}_2$ -Molekül ungefähr drei  $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle verbraucht und somit parallel die  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration reduziert. Ebenfalls bietet  $\text{H}_2\text{O}$  eine Quelle für  $\text{OH}$ -Moleküle, die ihrerseits durch die Gasphasenreaktion mit  $\text{SO}_2$  (Gleichung 4.1) reduziert werden. Bekki et al. (1996) zeigten, daß die  $\text{OH}$ -Konzentration, durch sehr starke Vulkaneruptionen wie die der des Toba vor 73500 Jahren mit einer 100-fach höheren Schwefelemission als der des Pinatubo, wesentlich reduziert wird. Für den Pinatubo war jedoch in den entsprechenden Simulationen keine bemerkenswerte  $\text{OH}$ -Reduktion zu beobachten. Da  $\text{OH}$ - und  $\text{H}_2\text{O}$ -Änderungen nur für sehr starke Vulkaneruptionen einen nennenswerten Einfluß auf die Größenverteilung haben und zudem, um diese Veränderungen mit zu berücksichtigen, ein komplettes homogenes Chemiemodell mit interaktiver Photolyseberechnung notwendig wäre, werden bei den vorliegenden Simulationen konstante  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{OH}$ -Konzentrationen angenommen. Die durch einen Vulkanausbruch verursachte Störung wird somit im folgenden nur durch eine erhöhte  $\text{SO}_2$ -Konzentration simuliert, die dann im weiteren Verlauf der Integration über die Reaktion mit  $\text{OH}$  solange reduziert wird, bis sie ihren Hintergrundwert erreicht.

Für die nachfolgenden Sensitivitätsstudien wird dabei, soweit nicht anders erwähnt, die für  $41^\circ \text{N}$  (Laramie) und konstante Julibedingungen in 50 hPa vorliegende Aerosolverteilung als Hintergrundverteilung angenommen.

In Abbildung 4.11 ist die zeitliche Veränderung der Aerosolgrößenverteilung mit einer anfänglichen  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $10^{10}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ , die um das 300-fache über dem Hintergrundwert von  $3.6 \cdot 10^7$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  liegt, dargestellt. In den ersten zwei Diagrammen für 5 und 10 Tage nach Beginn der Störung, ist deutlich die Ausbildung eines 'Nukleationsmodes' zu erkennen, der durch die Bildung neuer Teilchen durch homogene Nukleation entsteht und der Hintergrundverteilung überlagert ist. Nach 30 Tagen sind die neugebildeten Teilchen durch  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Kondensation sehr schnell gewachsen, so daß sich der Moderadius von  $0.02 \mu\text{m}$  zu  $0.09 \mu\text{m}$  hin verschoben hat. Für den Kondensationsprozeß wird dabei sehr viel  $\text{H}_2\text{SO}_4$  verbraucht, so daß parallel dazu die Nukleationsrate sinkt. Als Folge davon ist nach einem Monat die Teilchenkonzentration im Bereich  $0.01 \mu\text{m} < r < 0.03 \mu\text{m}$  wesentlich kleiner als bei der anfänglichen Hintergrundverteilung. Nach einem Jahr liegen die Teilchenkonzentrationen mit Radien  $r < 0.05 \mu\text{m}$  unterhalb von 1 Teilchen/ $\text{m}^3$ , während sich die Aerosolgrößenverteilung zu höheren Radien verschoben hat. Der Moderadius liegt dabei mit einem Wert von  $0.22 \mu\text{m}$  deutlich über den Hintergrundwerten. Drei Jahre nach der Störung ist in der Aerosolverteilung wieder eine starke bimodale Struktur zu erkennen, wobei die Teilchenradien nur geringfügig größer sind als bei der Hintergrundverteilung. Nach fünf Jahren sind gestörte

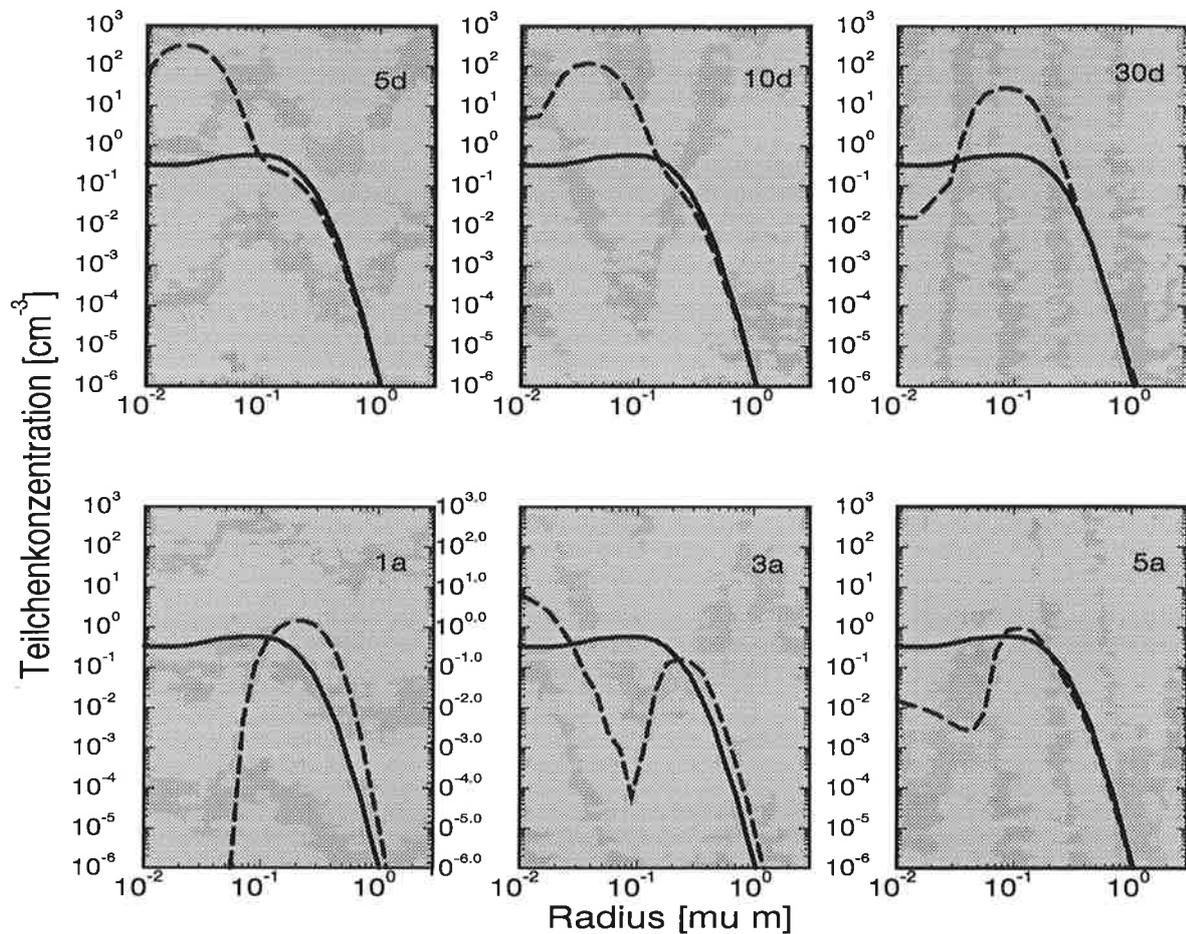


Abbildung 4.11: Simulation einer vulkanischen Störung bei 20 km, 41°N mit einer anfänglichen SO<sub>2</sub>-Konzentration von  $1 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-3}$ . Die gestrichelte Linie beschreibt die gestörte Verteilung, die durchgezogene die Hintergrundverteilung für  $t_0$ . Die Zeit nach der Störung ist in jedem Diagramm oben rechts angegeben.

und ungestörte Aerosolverteilungen für Radien größer  $r > 0.15 \mu\text{m}$  identisch. Wie im vorhergehenden Abschnitt Kapitel 4.2 gezeigt wurde, wird das stratosphärische Hintergrundaerosol in den Boxsimulationen nicht durch eine konstante Verteilung, sondern durch einen periodischen Zyklus von Verteilungen beschrieben, welche auch bimodale Strukturen haben, siehe Abbildung 4.2. Bei einer vulkanischen Störung laufen daher im mikrophysikalischen Modell die gleichen Prozesse ab, wie sie auch bei dem Grenzyklus des Hintergrundaerosols beobachtet wurden, siehe Abbildung 4.3. Die in den Boxsimulationen simulierte vulkanische Störung verstärkt damit im wesentlichen die bei der Simulation der Hintergrundverteilung ablaufenden Prozesse. Die ein bis zwei Jahre nach einer vulkanischen Störung beobachteten bimodalen Verteilungen können daher nicht unmittelbar vom Boxmodell wiedergeben werden.

Es ist diffizil, anhand des in Abbildung 4.11 dargestellten Vergleiches zwischen gestörter und ungestörter Aerosolverteilung, die Dauer einer vulkanischen Störung zu bestimmen. Hierfür bietet sich als Alternative die zeitliche Veränderung des effektiven Radius an. In der Tabelle 4.2 sind die mittleren effektiven Radien und die dazugehörigen Amplituden der Hintergrundverteilungen für die in Tabelle 4.1 aufgeführten verschiedenen Kombinationen zwischen Nukleationsrate und Stoßkoeffizient  $\alpha$  aufgeführt.

Aus Tabelle 4.2 ist sehr gut zu ersehen, daß die effektiven Radien für die Sensitivitäts-

Kombination	$r_{\text{eff}} [\mu\text{m}]$	$\Delta r_{\text{eff}} [\mu\text{m}]$
1:	0.162	$\pm 0.020$
2:	0.182	$\pm 0.025$
3:	0.295	$\pm 0.045$
4:	0.246	$\pm 0.058$
5:	0.310	$\pm 0.045$
6:	0.556	$\pm 0.017$
7:	0.172	$\pm 0.009$
8:	0.195	$\pm 0.035$
9:	0.321	$\pm 0.030$

Tabelle 4.2: Effektiver Radius für simulierte Hintergrundverteilungen in Abhängigkeit von ihrer mikrophysikalischen Parameterisierung nach Tabelle 4.1.

studien mit einem Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 1$  deutlich größer sind als die für  $\alpha < 1$ , da ihre Gleichgewichtsverteilungen bei höheren Radien liegen, siehe auch Abbildung 4.4. Der effektive Radius für die Sensitivitätsstudie 6) mit einer Nukleationsrate nach der Hydrattheorie und einem Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 1$  liegt z.B. mit seinem Hintergrundwert von  $r_{\text{eff}} = 0.55 \mu\text{m}$  im Bereich der nach dem Ausbruch des Pinatubo gemessenen Werte. Die mittleren effektiven Radien für die Sensitivitätsstudien 1, 2, 7 und 8 liegen dagegen im beobachteten Bereich von  $0.17 \pm 0.07 \mu\text{m}$ . Die effektiven Radien bestätigen somit das in Kapitel 4.2 anhand der Aerosolgrößenverteilung und des Größenverhältnisses gewonnene Ergebnis, daß die Boxsimulationen die Beobachtungen für Nukleationsraten nach A und C und Stoßkoeffizienten mit  $\alpha < 1$  gut wiedergeben.

Ausgehend von einer Nukleationsrate nach C und einem Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 0.04$  wird im folgenden untersucht, welche Auswirkungen eine vulkanischen Störung auf den effektiven Radius hat, und inwieweit die Boxsimulationen mit Beobachtungen übereinstimmen.

In Abbildung 4.12 a) ist der zeitliche Verlauf des effektiven Radius für sieben verschiedene  $\text{SO}_2$ -Konzentrationen dargestellt. In Abbildung 4.12 b) und 4.12 c) wird die Abhängigkeit des effektiven Radius von der mikrophysikalischen Parameterisierung für eine anfängliche  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $10^{11}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  aufgezeigt. Die Abhängigkeit der zeitlichen Entwicklung von  $r_{\text{eff}}$  vom Stoßkoeffizienten wird anhand der Sensitivitätsstudien 7 ( $\alpha = 0.04$ ), 8 ( $\alpha = 0.1$ ) und 9 ( $\alpha = 1$ ) ausgetestet, die Abhängigkeit von der Nukleationsrate anhand der Studien 7 (C), 1 (A) und 4 (B).

Es fällt dabei zunächst in Abbildung 4.12 a) auf, daß, unabhängig von der Höhe der  $\text{SO}_2$ -Konzentration, der effektive Radius zwei bis drei Jahre nach der Störung am Anfang relativ schnell absinkt und daß nach vier bis fünf Jahren die Werte für das Hintergrundaerosol wieder erreicht werden. Die hier vorliegenden Abklingzeiten liegen damit in der nach dem El Chichón und dem Pinatubo beobachteten Größenordnung.

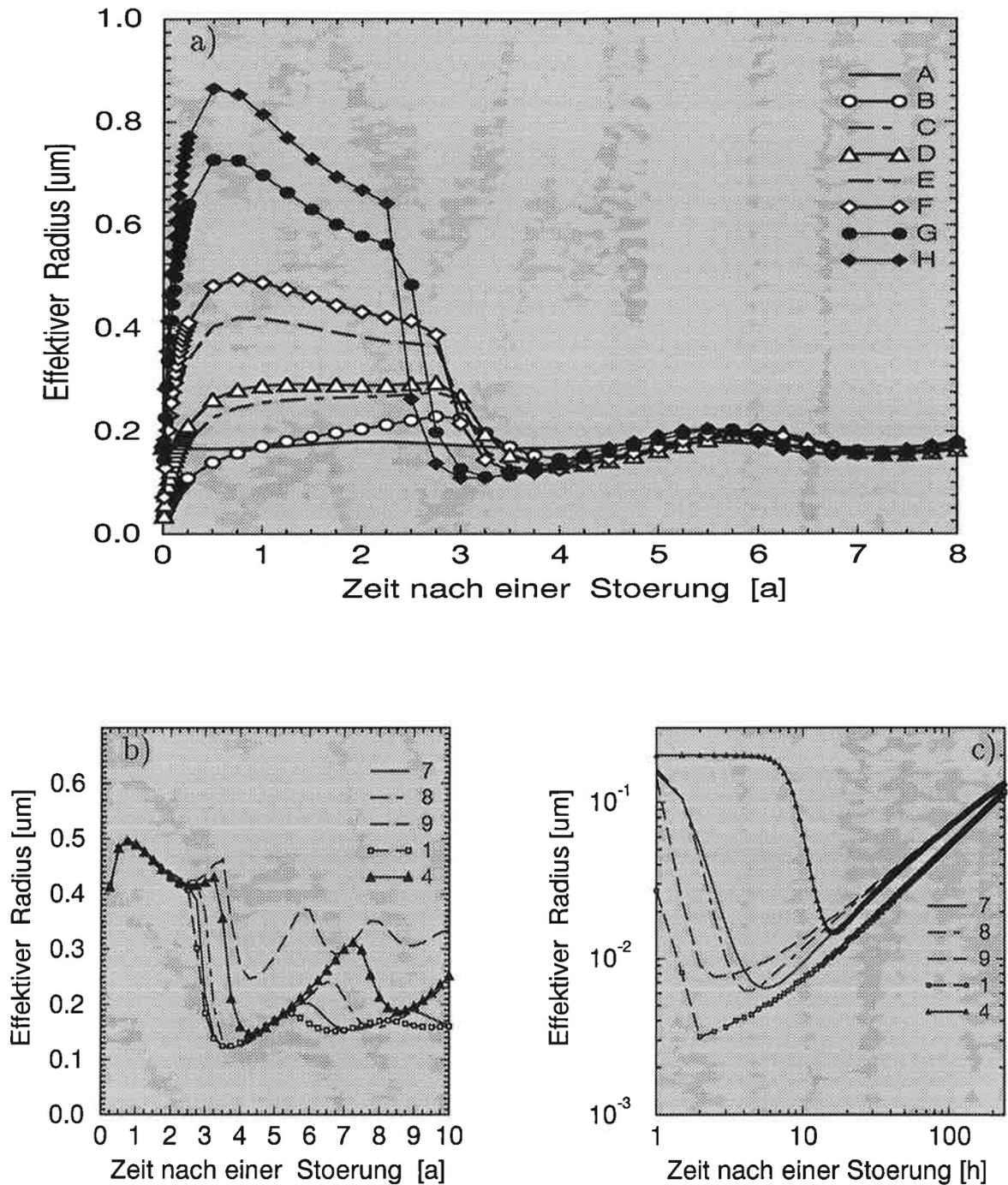


Abbildung 4.12: a) Änderung des effektiven Radius in Abhängigkeit von der anfänglichen  $\text{SO}_2$ -Konzentration in  $[\text{Moleküle}/\text{cm}^3]$ : B)  $1 \cdot 10^9$ , C)  $5 \cdot 10^9$ , D)  $1 \cdot 10^{10}$ , E)  $5 \cdot 10^{10}$ , F)  $1 \cdot 10^{11}$ , G)  $5 \cdot 10^{11}$ , H)  $1 \cdot 10^{12}$ . A) kennzeichnet den Wert der Hintergrundverteilung mit einer vorgeschriebenen  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $3.6 \cdot 10^7$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ . b) Änderung des effektiven Radius in Abhängigkeit von der mikrophysikalischen Parameterisierung (Tabelle 4.1) für eine  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $1 \cdot 10^{11}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ . c) entsprechend b) für die ersten 10 Tage.

Die in Abbildung 4.12 gezeigten Ergebnisse zeigen damit vor allem auch, daß das mikrophysikalische Modell stabil ist, da es nach einer externen Störung wieder in den Gleichgewichtszustand zurückkommt. Die Stärke der vorgegebenen  $\text{SO}_2$ -Störung bestimmt dabei die Größe des effektiven Radius sowie den Zeitpunkt und den Grad des exponentiellen Abfalls. Das Anwachsen des effektiven Radius, das in den ersten ein bis zwei Jahren zu beobachten ist, läßt sich durch die gegenüber der ungestörten Atmosphäre verstärkten Kondensations- und Koagulationsprozesse erklären. Die Aerosolteilchen wachsen in einer eruptiv gestörten Atmosphäre wesentlich schneller, da die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration gegenüber dem Hintergrundwert um ein Vielfaches höher ist, siehe auch Abbildung 3.11. Durch die erhöhte Kernbildung erhöht sich die Teilchenzahl pro Volumen, so daß auch die Koagulation erheblich verstärkt wird. Koagulation und Kondensation verschieben die Aerosolverteilung zu größeren Radien und damit den effektiven Radius zu höheren Werten. Die Sedimentation der Aerosolteilchen ist unabhängig von der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration. Sie wird nur indirekt über die Teilchengröße nach einer Störung beeinflusst. Der raschere Abfall des effektiven Radius bei höheren  $\text{SO}_2$ -Konzentrationen in Abbildung 4.12 a) läßt sich dadurch sehr gut erklären. Auffallend ist bei dem Abklingverhalten des effektiven Radius, daß er nach zwei bis drei Jahren deutlich absinkt. So fällt z.B. für eine  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $10^{12}$  Moleküle/cm<sup>3</sup> der effektive Radius von  $r_{\text{eff}} = 0.864 \mu\text{m}$  mit einer charakteristischen Zeit ( $1/e$ ) von 6.05 Jahren nach einem halben Jahr auf  $r_{\text{eff}} = 0.647 \mu\text{m}$  ab, um dann innerhalb eines dreiviertel Jahres mit einer charakteristischen Zeit von 1.2 Jahren auf  $r_{\text{eff}} = 0.131 \mu\text{m}$  abzufallen. Die Erklärung für den bei allen  $\text{SO}_2$ -Konzentrationen beobachteten Abfall findet man in Abbildung 4.11. Dort ist zu erkennen, daß drei Jahre nach der Störung die Anzahl der Aerosolteilchen mit Radien  $r < 0.1 \mu\text{m}$  durch Nukleation und Kondensation wieder sehr stark angestiegen ist, während die Anzahl der großen Partikel durch Sedimentation immer geringer wird.

In Abbildung 4.12 b) fällt zunächst auf, daß der effektive Radius in den ersten zweieinhalb Jahren unabhängig von der Parameterisierung der Nukleation und der Kondensation ist. Eine Erklärung dafür findet sich bei der Betrachtung des zeitlichen Verlaufs des effektiven Radius in den ersten 10 Tage nach der Störung in Abbildung 4.12 c). Dort zeigt sich, daß in den ersten Tagen der effektive Radius je nach Parameterisierungsansatz unterschiedlich verläuft, jedoch für alle Sensitivitätsstudien  $r_{\text{eff}}$  unter den Wert des Hintergrundaerosols sinkt.

Dieses anfängliche Absinken des effektiven Radius nach einer  $\text{SO}_2$ -Störung erklärt sich aus der Tatsache, daß zu Beginn die homogene Nukleation sehr groß ist und daß damit auch die Anzahl der kleinen Partikel die der größeren um mehrere Größenordnungen übersteigt. Während für den Sensitivitätstest 1) mit der höchsten Nukleationsrate der effektive Radius  $r_{\text{eff}}$  am schnellsten absinkt und seinen Minimalwert nach zwei Stunden erreicht hat, ist das Abfallen für 4) mit einer um  $10^6$ -fachen kleineren Nukleationsrate deutlich langsamer. Für 4) wird der Minimalwert erst nach 36 Stunden erreicht. Da parallel die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration durch Kondensation auf den Aerosolteilchen geringer wird, liegt der minimale effektive Radius mit  $r_{\text{eff}} = 0.015 \mu\text{m}$  bei 4) höher als bei 1) mit  $r_{\text{eff}} = 0.003 \mu\text{m}$  und 7) mit  $r_{\text{eff}} = 0.006 \mu\text{m}$ . Die geringeren Unterschiede beim anfänglichen Absinken des effektiven Radius zwischen den Sensitivitätsstudien mit einem unter-

schiedlichen Stoßkoeffizienten  $\alpha$  zeigen, daß die Nukleation in den ersten Zeitschritten der dominante Prozeß ist. Bei einem Stoßkoeffizienten von  $\alpha = 1$  wachsen die Aerosolteilchen schneller und es steht weniger  $\text{H}_2\text{SO}_4$  für die Nukleation zur Verfügung. Dies erklärt den Minimalwert von  $r_{\text{eff}} = 0.008 \mu\text{m}$  nach 2.5 h bei 9) im Vergleich zu dem von 7) mit  $r_{\text{eff}} = 0.006 \mu\text{m}$  nach 5.5 h.

Im weiteren Verlauf gewinnt dann auf Grund der höheren Teilchenzahl der Koagulationsprozeß gegenüber der Nukleation und der Kondensation immer mehr an Bedeutung, so daß sich die effektiven Radien der verschiedenen Sensitivitätsstudien annähern. Abbildung 4.12 b) zeigt, daß drei Monate nach der Störung der effektive Radius unabhängig von der mikrophysikalischen Parameterisierung verläuft. Die Entwicklung der Aerosolgrößenverteilung in den ersten Jahren wird, bis auf die ersten Tage, daher im wesentlichen durch Koagulation und Sedimentation bestimmt. Erst wenn durch die Konversion von Hintergrund- $\text{SO}_2$  mit OH die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration wieder anwächst und damit Nukleations- und Kondensationsprozesse wieder an Bedeutung gewinnen, sind Unterschiede zwischen den verschiedenen Parameterisierungen erkennbar. Das Abklingen der vulkanischen Störung und das Erreichen der Hintergrundwerte hängt dabei von der Parameterisierung der Nukleation und der Kondensation ab. Für eine höhere Nukleationsrate und für einen kleineren Stoßkoeffizient ist der ungestörte Zustand schneller wieder erreicht.

Zusammenfassend zeigt sich, daß, *unabhängig von der Stärke der Störung*, nach vier bis fünf Jahren der Hintergrundwert wieder erreicht ist. Abbildung 4.12 a) und b) bestätigen damit die Ergebnisse von Pinto et al. (1989), die anhand des eindimensionalen Turco/Toon-Modells zeigten, daß sich vulkanische Störungen selbst beschränken. In den vorliegenden Studien sind jedoch keine indirekten Effekte starker Vulkanausbrüche wie eine Temperaturänderung, Ozonänderung oder Änderung der Zirkulationsstruktur mit berücksichtigt worden, die nachhaltig die stratosphärische Hintergrundkonzentration des Aerosols stören können. Endgültige Aussagen über einen bei starken Vulkanausbrüchen vorliegenden Puffer- bzw. Limitierungsmechanismus sind daher nur in einem globalen Modell unter Berücksichtigung aller Wechselwirkungen möglich.

Flugzeugmessungen (Hoff, 1992) zeigten Anfang Juli 1991, also gut drei Wochen nach der Pinatuboeruption, in mittleren Breiten eine atmosphärische  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $20 \mu\text{atm m}$ . Eine  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $1 \cdot 10^{11}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  entspricht daher in etwa der nach dem Pinatubo vorliegenden Konzentration<sup>9</sup>. Abbildung 4.13 zeigt eine Zusammenstellung der nach dem Pinatubo aus Fernerkundungs- und In-Situ-Messungen abgeleiteten effektiven Radien (Russel et al., 1996). Vergleicht man die für eine Anfangskonzentration von  $1 \cdot 10^{11}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  in der Box berechneten effektiven Radien mit diesen Beobachtungen, so stimmen sie sehr gut überein. So liegen nicht nur die simulierten effektiven Radien mit Werten von  $0.48 \mu\text{m}$  nach einem halben und nach einem Jahr und mit einem Wert von  $0.43 \mu\text{m}$  nach zwei Jahren im Bereich der Beobachtungen, sondern auch der anfänglich rasche Anstieg und das Maximum nach einem dreiviertel Jahr und der relativ langsame Abfall werden sehr gut wiedergegeben. Der aus den Beobachtungsdaten ermittelte exponentielle Anstieg erreicht sein Maximum ein Jahr nach der

<sup>9</sup> $1 \mu\text{atm m} = 2.69 \cdot 10^{13}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ , d.h.  $20 \mu\text{atm m} = 5.38 \cdot 10^{15}$  Moleküle/ $\text{cm}^2$ . Auf eine vertikale Höhe von 5 km verteilt, ergibt sich damit eine  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $\approx 1 \cdot 10^{11}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ .

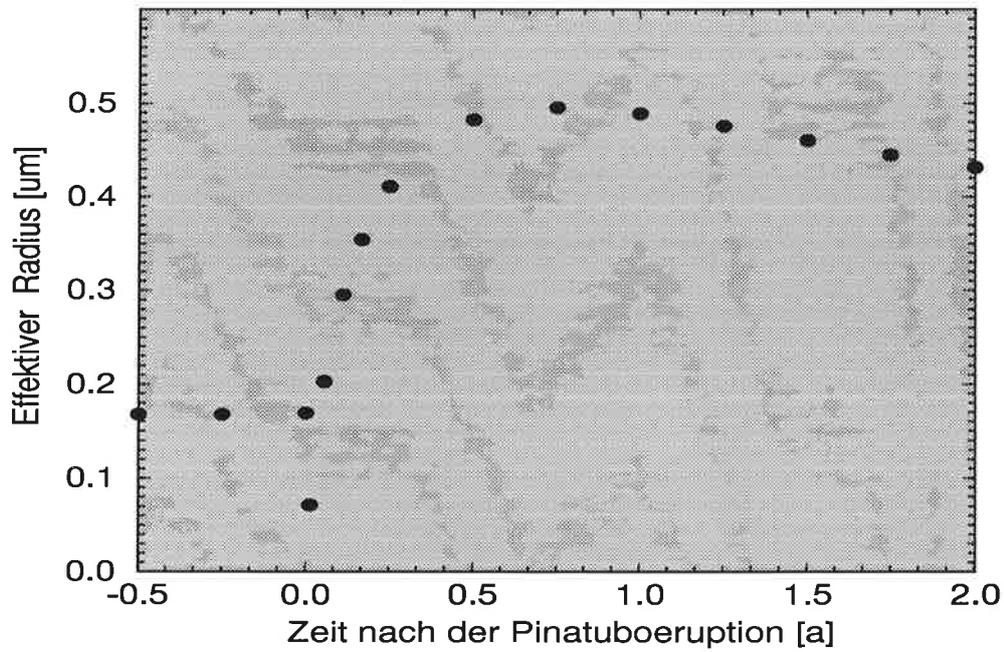
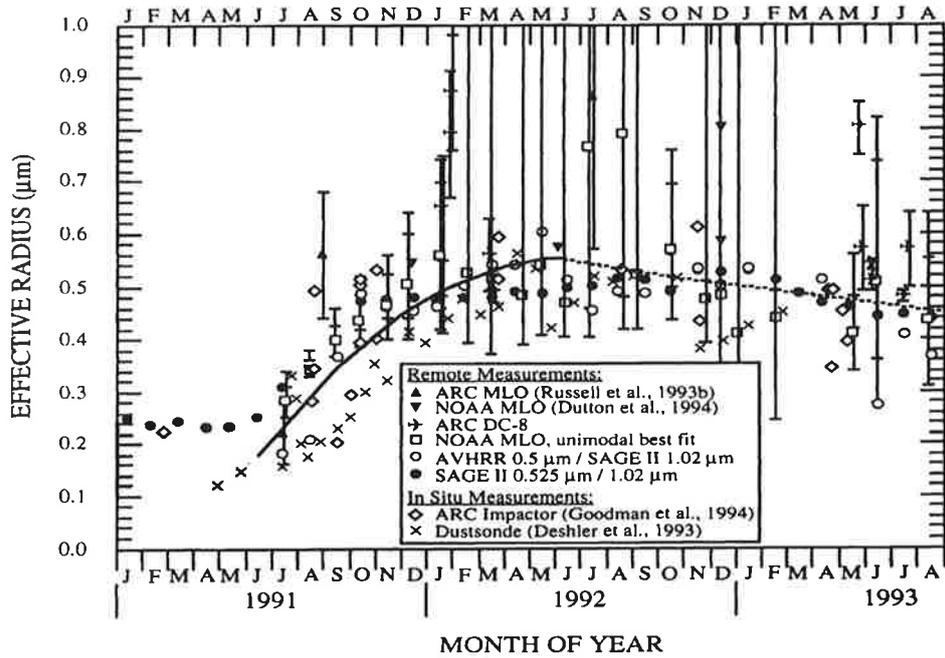


Abbildung 4.13: Vergleich der nach dem Pinatuboausbruch beobachteten effektiven Radien (Russell et al., 1996) mit Ergebnissen der Boxsimulation für eine  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $1 \cdot 10^{11}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ .

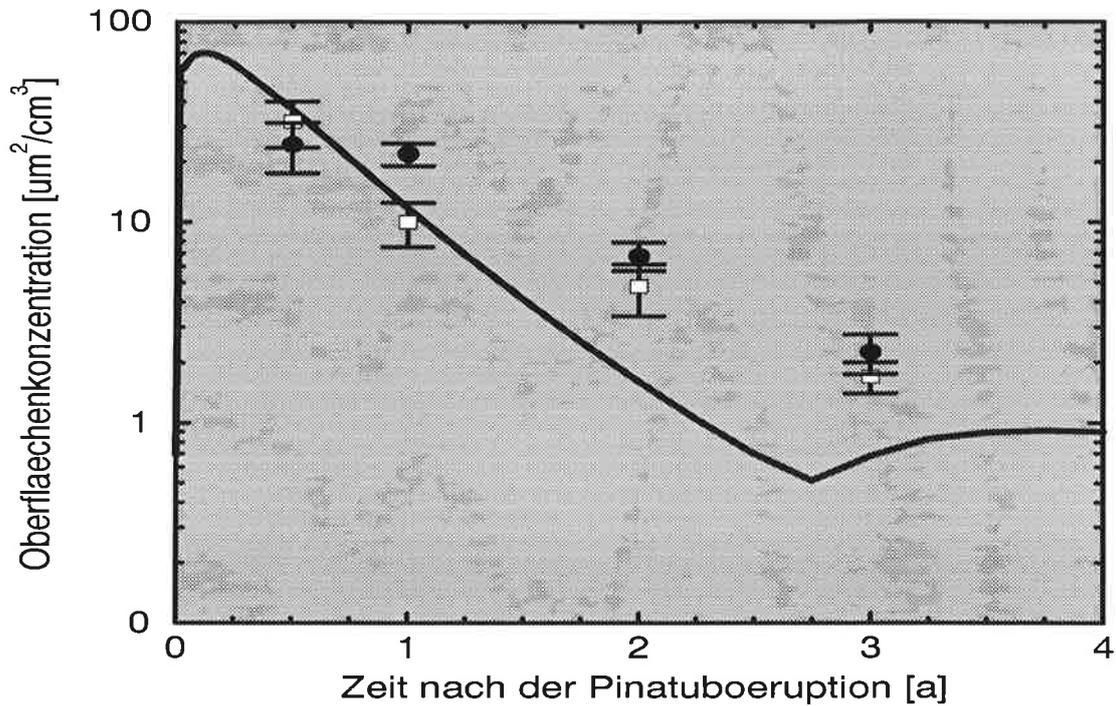


Abbildung 4.14: Simulation der Oberflächenkonzentration nach einer Pinatubo ähnlichen vulkanischen Störung in 20 km Höhe, mit einer anfänglichen  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $10^{11}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$ . Die Kreise bezeichnen Messungen von Deshler et al. (1993) und die Vierecke SAGE-Messungen von Thomason et al. (1997).

Eruption, also ein wenig später als in der Box. Die in Messungen in mittleren nördlichen Breiten (Deshler et al., 1993) beobachteten effektiven Radien zeigen jedoch ebenfalls ein Maximum ein dreiviertel Jahre nach dem Ausbruch. Die zum Teil in den einzelnen Messungen beobachteten Schwankungen lassen sich durch Inhomogenitäten in der Pinatubowolke und durch advective Prozesse erklären. Die beobachteten effektiven Radien sind nur über eine Zeit von zwei Jahren dargestellt. Die von Russel et al. (1996) abgeschätzte exponentielle Abklingzeit des effektiven Radius, die in Abbildung 4.13 durch die gestrichelte Kurve dargestellt ist, wird mit vier Jahren angegeben. Das im Boxmodell modellierte Abklingverhalten nach einer vulkanischen Störung in einer Zeit von vier bis fünf Jahren liegt damit im Bereich der Beobachtungen. Da die zeitliche Änderung des effektiven Radius mit einer anfänglichen  $\text{SO}_2$ -Konzentration von  $10^{11}$  Moleküle/ $\text{cm}^3$  sehr gut den nach dem Pinatuboausbruch beobachteten Verlauf wiedergibt, ist es interessant zu überprüfen, inwieweit dies auch für die beobachteten Oberflächenkonzentrationen zutrifft.

In Abbildung 4.14 ist die zeitliche Änderung der Oberflächenkonzentration für die obigen Bedingungen dargestellt. Zum Vergleich sind Messungen von Deshler et al. (1993) und Thomason et al. (1997) nach einem halben Jahr bzw. nach ein, zwei und drei Jahren eingetragen. Es ist deutlich zu erkennen, daß die Boxsimulation nach einem halben Jahr mit einem Wert von  $40 \mu\text{m}^2/\text{cm}^3$  sehr gut mit den Messungen von Laramie (Deshler et al., 1993) im Maximum der Wolke übereinstimmt und auch in dem aus SAGE-Daten abgeleiteten Bereich liegt. Auch ein Jahr nach der Störung liegt die mit dem mikrophysika-

lischen Modell berechnete Oberflächenkonzentration im Bereich der SAGE-Messungen, aber schon niedriger als die in Laramie beobachtete Konzentration. Das im Vergleich zu den Beobachtungen raschere Abklingverhalten der modellierten Oberflächenkonzentration kristallisiert sich im weiteren Verlauf der Simulation immer mehr heraus. So liegt in der Simulation nach zwei Jahren ein Wert von  $2 \mu\text{m}^2/\text{cm}^3$  vor, der in den Satellitendaten ebenfalls erst ein Jahr später beobachtet worden ist. Der Grund dafür liegt an der fehlenden Sedimentation des vulkanisch gestörten Aerosols aus den oberen Schichten in die zu betrachtende Schicht, wodurch der exponentielle Abfall der Oberflächenkonzentration gedämpft wird. So ist z.B. nach dem Ausbruch des Pinatubo anhand von Lidarmessungen ein Herabsinken der Aerosolwolke um 4 km pro Jahr in einem Zeitraum vom Winter 91/92 bis Winter 92/93 auf Grund der effektiveren Sedimentation in den höheren Schichten beobachtet worden (Jäger et al., 1995). In den beobachteten Oberflächenkonzentrationen ist dementsprechend, im Gegensatz zu den simulierten, eine Überlagerung des vulkanischen Abklingverhaltens mit Sedimentationseffekten zu finden. Simulationen von Zhao et al. (1995a) mit dem eindimensionalen Modell für verschiedene Höhen bestätigen dies. So fällt die Oberflächenkonzentration in 25 km Höhe in den Simulationen von Zhao et al. (1995a) deutlich schneller ab, als in 17 km Höhe. In 25 km Höhe sinkt die Oberflächenkonzentration ähnlich der Boxsimulation schon nach 900 Tagen unter  $1 \mu\text{m}^2/\text{cm}^3$ .

Dieser in Abbildung 4.14 dargestellte Vergleich der Oberflächenkonzentration macht die Limitierung von Boxsimulationen vulkanischer Störungen deutlich. Es bleibt aber hervorzuheben, daß das mikrophysikalische Modell in der Boxversion die in einer vulkanisch gestörten Atmosphäre beobachteten Prozesse dennoch sehr gut widerspiegeln kann.

## 4.4 Zusammenfassung

Anhand von Sensitivitätsstudien ist das mikrophysikalische Modell für stratosphärisches  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Aerosol in einer Boxversion validiert worden. Für typische stratosphärische Bedingungen und unter Vorgabe realistischer  $\text{SO}_2$ - und OH-Konzentrationen entwickelt sich ein Grenzyklus in dem von der Aerosolkonzentration und dem Größenverhältnis aufgespannten Phasenraum. Dieser Grenzyklus wird durch die Wechselwirkung von Kondensation und Nukleation bestimmt. Es bilden sich dabei für das Hintergrund aerosol, je nach Gewichtung der einzelnen Prozesse, monomodale oder bimodale Verteilungen aus. Die Sequenz der modellierten Hintergrundverteilungen einer Periode des Zyklus kann durch eine Lognormalverteilung, wie sie aus Messungen abgeleitet wurde, beschrieben werden.

Ein Vergleich mit Beobachtungen zeigt, daß das mikrophysikalische Modell die beobachteten Teilchenkonzentrationen und Größenverhältnisse für hohe und mittlere Breiten oberhalb von 73 hPa sehr gut wiedergeben kann. Das Modell ist dabei in der Lage, den beobachteten sehr starken Anstieg des Größenverhältnisses oberhalb von 50 hPa wiederzugeben, sowie die Abnahme in der Aerosolkonzentration  $N_{15}$ . Für 10 hPa konnte keine Aerosolbildung simuliert werden, was mit Beobachtungen konform ist. Da in dem Boxmodell keine Advektion und vertikale Diffusion berücksichtigt worden ist, können Beobachtungen aus den Tropen oder aus Höhen mit starken vertikalen Austauschprozessen

nicht realistisch wiedergegeben werden.

Ein Vergleich von Sensitivitätstests mit unterschiedlicher mikrophysikalischer Parametrisierung ergab, daß die Aerosolkonzentration  $N_{15}$ , das Größenverhältnis  $N_{15}/N_{25}$  sowie der effektive Radius am besten mit Messungen übereinstimmen, wenn ein Stoßkoeffizient von  $\alpha < 1$  angenommen wird und die Nukleationsraten entweder klassisch (A) oder nach der Hydrattheorie mit SCC-Korrektur (C) berechnet werden. Bei der Abhängigkeit der Sensitivitätsstudien von den Eingabedaten zeigte sich, daß Temperatur- und  $H_2O$ -Änderungen ein anderes Änderungsmuster in der Aerosolgrößenverteilung in den Boxstudien hervorrufen als Änderungen der  $SO_2/OH$ -Konzentration. Während bei einer Temperatur- und einer  $H_2O$ -Änderung eine Erhöhung der Aerosolkonzentration mit einer Erhöhung des Größenverhältnisses einhergeht, verhalten sich bei einer Veränderung der  $SO_2$ -Konzentration Aerosolkonzentration und Größenverhältnis umgekehrt.

Das mikrophysikalische Modell ist in der Lage, den nach einem Vulkanausbruch beobachteten raschen Anstieg des effektiven Radius sowie das relative langsame Abklingen auf seinen Hintergrundwert wiederzugeben. Sensitivitätstests in Abhängigkeit von der Stärke der vulkanischen Störung zeigen, daß die relative Änderung des effektiven Radius in Abhängigkeit von der Stärke zunimmt, den Hintergrundwert jedoch unabhängig von dem Störpotential nach vier bis fünf Jahren wieder erreicht. Die Boxergebnisse zeigen somit ohne Berücksichtigung indirekter Effekte, daß sich vulkanische Störungen in ihrer zeitlichen Dauer selbst limitieren.

Eine Boxsimulation der Pinatuboeruption konnte die maximale Stärke des beobachteten effektiven Radius und seinen zeitlichen Verlauf sehr gut wiedergeben. Die nach dem Pinatuboausbruch beobachteten Oberflächenkonzentrationen konnten von dem mikrophysikalischen Modell in dem ersten Jahr ebenfalls sehr gut reproduziert werden. Im weiteren Verlauf sanken die Simulationsergebnisse im Vergleich zu den Messungen jedoch zu schnell ab. Grund für diese Diskrepanz ist, daß in den Boxstudien das Hereinsedimentieren vulkanisch gestörten Aerosols aus höheren Schichten nicht berücksichtigt wird.

Zusammenfassend zeigt sich, daß das mikrophysikalische Modell die Entwicklung und Bildung des stratosphärischen Aerosols in der ungestörten und in der gestörten Atmosphäre sehr gut wiedergibt. Auf Grund der in dem mikrophysikalischen Boxmodell nicht berücksichtigten Advektion und vertikalen Diffusion, ist ein Vergleich der Simulationsergebnisse mit Beobachtungen schwierig. Es zeigt sich dennoch eine sehr gute Übereinstimmung für Höhen, in denen die vertikalen Austauschprozesse weniger signifikant sind. Das in dem vorherigen Kapitel 3 vorgestellte und in diesem Kapitel ausgetestete mikrophysikalische Modell ist somit für den Einbau in ein Zirkulationsmodell geeignet.



# Kapitel 5

## Simulation der Pinatuboepisode

Die Pinatuboepisode bietet eine einzigartige Gelegenheit, den stratosphärischen Transport in einem Zirkulationsmodell zu testen, da für diesen Zeitraum eine sehr große Anzahl von Beobachtungen vorliegen. Ziel dieses Kapitel ist es daher, anhand des Ausbruchs des Mt. Pinatubo im Juni 1991 und der anschließenden Ausbreitung der Vulkanwolke zu untersuchen, inwieweit ECHAM4 in der Lage ist, den stratosphärischen Transport in dem Zeitraum von Juni 1991 bis Dezember 1992 richtig zu beschreiben. Der dreidimensionale Transport ist der wesentliche Faktor, der die globale Ausbreitung einer Vulkanwolke bestimmt. Somit ist die Untersuchung der Transportcharakteristik in einem globalen Zirkulationsmodell von entscheidendem Interesse, da nur mit einem zufriedenstellenden stratosphärischen Transport die Bedeutung einer vulkanischen Störung für die Dynamik und die Chemie herausgearbeitet werden kann. Desweiteren läßt sich aus den Transportuntersuchungen ableiten, inwieweit es jetzt bereits sinnvoll ist, ein komplexes mikrophysikalisches Modell, wie das in Kapitel 3 und 4 vorgestellte, mit dem Zirkulationsmodell zu kombinieren.

Im folgenden wird zunächst anhand von Beobachtungen ein Überblick über die globale Ausbreitung der Aerosolwolke nach der Pinatuboeruption gegeben. Anschließend wird das Pinatuboexperiment vorgestellt und danach die Ergebnisse der Pinatubosimulationen mit Satelliten- und Lidarbeobachtungen verglichen und diskutiert. Abschließend wird ein Ausblick auf eine Pinatubosimulation mit der vertikal höherauflösenden Version ECHAM4-L39 gegeben.

### 5.1 Die globale Ausbreitung der Pinatubowolke

Nach mehr als zwei Monaten ständig wachsender Aktivität verbunden mit kleineren Emissionen, brach in der Zeit vom 9. Juni 1991 bis zum 17. Juni 1991 der Vulkan Pinatubo auf der philippinischen Insel Luzon ( $15.14^\circ$  N,  $120.35^\circ$  E) in einer Folge von starken Eruptionen aus. Die größte Eruption dauerte über 15 Stunden und fand vom 15. Juni bis zum 16. Juni statt. Der Plume reichte dabei bis zu einer Höhe von 30 km, wobei der größte Teil der Masse in einem Bereich von 20 km – 27 km konzentriert war (McCormick et al., 1995). Die bei der Eruption in die Atmosphäre injizierte  $\text{SO}_2$ -Masse wurde aus TOMS-Messungen mit 14 Mt – 26 Mt abgeschätzt (Krueger et al.,

1995). Der Pinatuboausbruch ist damit der größte Vulkanausbruch in diesem Jahrhundert. Die Ausbreitung der Vulkanwolke sowie die damit verbundenen Auswirkungen auf das atmosphärische System wurden durch zahlreiche flugzeug- und ballongetragene In-Situ Meßverfahren sowie aktive (Lidar-) und passive Fernerkundungsverfahren (Satelliten, Sonnenphotometer) erforscht. Eine detaillierte komperative Übersicht über die verschiedenen Beobachtungen und Meßmethoden zur Ausbreitung und Entwicklung des Pinatuboaerosols sind in Russel et al. (1996) zu finden.

Der Ausbruch des Pinatubo fand zur Zeit der östlichen Phase der QBO<sup>1</sup> statt. Die Eruptionswolke breitete sich daher schnell in Ost-West Richtung aus und umrundete innerhalb von 22 Tagen die Erde einmal (Bluth et al., 1992). Die exponentielle Lebensdauer bezüglich der Umwandlung von SO<sub>2</sub> mit OH zu H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> betrug dabei 35 Tage (Bluth et al., 1992; Read et al., 1993). Zunächst erstreckte sich die Wolke dabei in einem Band zwischen 20° S und 30° N (McCormick und Veiga, 1992; Stowe et al., 1992). In den ersten Monaten blieb der größte Teil der Wolke in diesem Breitenband gebunden. Zwar wurden schon Anfang Juli erhöhte Aerosolkonzentration in nördlichen mittleren Breiten gemessen (Jäger, 1991), diese entstammten jedoch der Präeruption vom 14. Juni. Der Transport in die mittleren und hohen nördlichen Breiten wurde hauptsächlich durch ein mit dem asiatischen Monsun verbundenes troposphärisches, quasi-stationäres antizyklonales Zirkulationssystem angetrieben. Zusätzlicher polwärts gerichteter Aerosoltransport war in der Nordhemisphäre gekoppelt mit einem Übergang von Sommer- auf Winterzirkulation und mit verstärkter planetarer Wellenaktivität verbunden. Beobachtungen zeigten, daß das Aerosol unterhalb 18 km die hohen nördlichen Breiten vor der Bildung des polaren zyklonalen Wirbels im Herbst 1991 erreichte und in den Wirbel eingeschlossen wurde (Neuber et al., 1994). Oberhalb von 20 km und im Zentrum des Polarwirbels wurde erst ab Mitte März ein signifikanter Anstieg in der Aerosolkonzentration gemessen (Rosen et al., 1992).

Auffallend bei der Ausbreitung der Pinatubowolke war der anfängliche Transport in die südliche Hemisphäre bis ungefähr 20° S, wo sich ein starker meridionaler Gradient ausbildete. Die Stärke dieser frühen über den Äquator hinausgehenden Ausbreitung der Pinatubowolke steht dabei im Gegensatz zu früheren Beobachtungen von subtropischen Vulkanen, wie dem El Chichón (17° N, 93° W), deren Aerosolladung hauptsächlich in der eigenen Hemisphäre blieb. Antizyklonale Zellen, die an die südlichen Subtropen grenzten, könnten nach Trepte et al. (1993) Ursache für die nach Süden gerichtete Ausbreitung sein.

Simulationen von Young et al. (1994) dagegen deuten daraufhin, daß der anfängliche südwärts gerichtete Transport durch lokale Zirkulationsänderungen auf Grund verstärkter IR<sup>2</sup>-Absorption, die durch die erhöhte Aerosolkonzentration hervorgerufen wird, bedingt war. Durch den Ausbruch des Cerro Hudson (45.90° S, 79.96° W) zwischen dem 12.-15. August 1991 wurde die Aerosolkonzentration südlich von 55° S in einer Schicht von 12 km-15 km zusätzlich verstärkt. Durch den Cerro Hudson gelangten 1.5 Mt SO<sub>2</sub> in die Atmosphäre (Doiron, 1991), was einem Zehntel der SO<sub>2</sub>-Menge des Pinatubo entspricht. Die Auswirkungen des Cerro Hudson beschränkten sich auf die untere Stra-

---

<sup>1</sup>QBO: Quasi-Biennial Oscillation

<sup>2</sup>IR: Infrarot

tosphäre südlich von 40° S . So wurden z.B. Einflüsse des Cerro Hudson in der Antarktis im australen Frühjahr 1991 beobachtet (Deshler et al., 1992b; Hofmann et al., 1992). Global betrachtet sind die Auswirkungen des Cerro Hudsons im Vergleich zum Pinatubo zu vernachlässigen.

Während sich die Pinatubowolke zunächst von der Tropopause bis zu einer Höhe von 30 km erstreckte, erreichte sie Ende Dezember über den Tropen eine Höhe von 40 km (Trepte et al., 1993). Ursachen dafür waren zum einen der vertikale Transport der Aerosolwolke durch die Brewer–Dobson–Zirkulation sowie ein verstärktes Ansteigen des Aerosols in der östlichen Phase der QBO. Ein zusätzlicher Anstieg der Aerosolwolke wurde durch lokale Aerosolheizung, ‘Lofting’, hervorgerufen, deren Ursachen in der mit der erhöhten Aerosolkonzentration verbundenen verstärkten Absorption von terrestrischer und naher solarer IR–Strahlung (Stenchikov et al., 1997) lagen.

Anhand einer Lidarzeitreihe, die DeFoor et al. (1992) auf Mauna Loa aufgenommen haben, ist das Lofting der Aerosolwolke im Sommer 1991 deutlich zu erkennen. Berechnungen mit einem Zweistromstrahlungsübertragungsmodell von Kinne et al. (1992) zeigten einen vertikalen Aufstieg der Vulkanwolke von 1.5 km hervorgerufen durch Heizraten von 0.3 K/Tag.

Nach einem Jahr entspricht die geographische Verteilung der optischen Dicke der auch in vulkanisch ruhigen Episoden beobachteten Bandstruktur (Trepte et al., 1994); d.h. die maximale optische Dicke ist über den Tropen und in hohen Breiten zu finden, während sich in den Subtropen ein Minimum ausbildet.

Ende 1993, zweieinhalb Jahre nach dem Ausbruch, lag die stratosphärische Aerosolladung im Bereich von fünf Mt (McCormick et al., 1995) bis zwei Mt (Baran und Foot, 1994) und damit in der Nähe des präeruptiven Wertes von zwei Mt.

## 5.2 Das Pinatuboexperiment

Es existieren in der Literatur einige Veröffentlichungen, die die globale Ausbreitung der Pinatubowolke mit Hilfe von dreidimensionalen Modellen untersuchen.

So liegen dreidimensionale Transportsimulationen der Pinatubo–Aerosolwolke mit dem NCAR<sup>3</sup> CCM2<sup>4</sup> Klimamodell, in einer 35–Schichtenversion mit 2 km Auflösung bis 50 km Höhe, von Boville et al. (1991) für einen Zeitraum von 180 Tagen vor. In dieser Pinatubosimulation wurde die Aerosolwolke als passiver Tracer gerechnet und nur der Transport durch großräumige Bewegungen und nicht aufgelöste turbulente Wirbel betrachtet; Senken in der Troposphäre, wie das Auswaschen und Ausregnen, wurden vernachlässigt. Boville et al. (1991) ließen in dieser kurz nach der Eruption des Pinatubo publizierten Simulation das Modell im Klimamode laufen, so daß ein direkter Vergleich mit Beobachtungen nicht möglich war. Im Gegensatz zu Boville et al. (1991) wurde die mit einem mechanistischen Modell durchgeführte dreidimensionale Pinatubosimulation von Young et al. (1994) mit beobachteten Geopotentialfeldern an der unteren Modellgrenze (300 hPa) angetrieben. Young et al. (1994) parameterisierten die Umwandlung von SO<sub>2</sub>

---

<sup>3</sup>NCAR: National Center of Atmospheric Research

<sup>4</sup>CCM2: Community Climate Model, Version 2

mit OH zu  $\text{H}_2\text{SO}_4$  mit der beobachteten Halbwertszeit von 35 Tagen und berücksichtigten keine mikrophysikalischen Prozesse. Ihre 75-tägigen Simulationen zeigen, daß die dynamischen Auswirkungen der durch die Aerosolwolke hervorgerufenen lokalen Heizung den Transport in den ersten Wochen sehr stark beeinflussen. Sie sind die wesentliche Ursache für den anfänglichen Transport in die südliche Hemisphäre. Auf diesen Effekt wird in Kapitel 5.3 noch genauer eingegangen.

Auch die einmonatigen passiven Tracersimulationen von Fairlie (1995) mit dem mechanistischen SMM<sup>5</sup> Modell (untere Grenze 100 hPa), in denen er sich mit der anfänglichen Ausbreitung der Aerosolwolke beschäftigte, zeigten einen Einfluß der durch die erhöhte Aerosolladung hervorgerufenen lokalen Heizung.

Mit einem globalen dynamischen Modell, das eine linearisierte Schwefelchemie beinhaltet, simulierten Pudykiewicz und Dastoor (1995) die globale Verteilung der Pinatubo-Aerosolwolke über einen Zeitraum von 50 Tagen. Die in dem Modell verwendete linearisierte Schwefelchemie berücksichtigt dabei die Konversion von  $\text{SO}_2$  mit OH zu Sulfat sowie eine Parameterisierung der Auswaschprozesse. Die Größenverteilung der Aerosole wird jedoch nicht explizit berechnet.

Das hier vorgestellte Experiment zum Transport des Pinatuboaerosols unterscheidet sich von den bisher durchgeführten dreidimensionalen Simulationen durch die Integrationsdauer von eineinhalb Jahren, die die Jahre April 1991 bis Dezember 1992 beinhaltet, sowie durch die Berücksichtigung des troposphärischen Schwefelkreislaufes.

Die Simulationen sind dabei mit dem ECHAM4 L19-Modell in einer spektralen Auflösung von T30 durchgeführt worden. Um mit dem Klimamodell ECHAM4 den bestimmten Zeitraum von 1991 bis 1992 richtig zu simulieren, werden die prognostizierten Modellgrößen immer wieder an die Beobachtungswerte angepaßt. Auf das dabei verwendete Assimilationsverfahren wird im folgenden Abschnitt 5.2.1 ausführlich eingegangen.

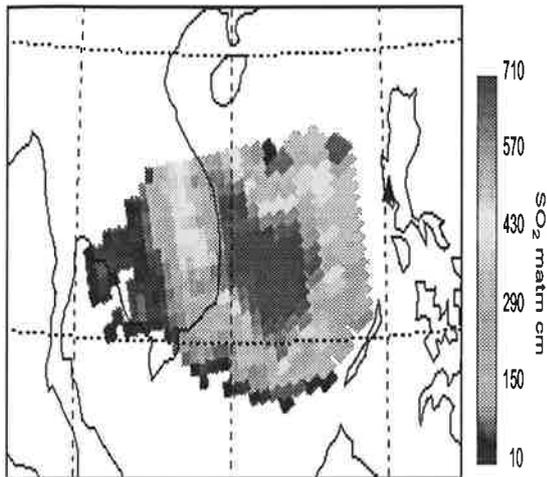
Es wird bei den vorliegenden Simulationen zunächst nach Gleichung 4.1 nur die Konversion von  $\text{SO}_2$  mit OH zu Sulfat ohne explizite Berücksichtigung der Mikrophysik und der stratosphärischen Schwefelchemie berechnet. Für die OH-Daten werden monatlich gemittelte Felder aus ECHAM3-Simulationen entnommen (Steil, 1997). Zusätzlich wird der in Kapitel 2.2 beschriebene troposphärische Schwefelkreislauf von Feichter et al. (1996) verwendet, der die Entfernungsprozesse des Aerosols in den Wolken und durch Niederschlag berücksichtigt. Für die Initialisierung der Pinatubowolke wurden 17 Mt  $\text{SO}_2$  über 19 Gitterpunkte in einem Bereich von  $0^\circ - 18.55^\circ \text{ N}$  und von  $96^\circ \text{ E} - 118^\circ \text{ E}$  entsprechend den TOMS-Beobachtungen vom 16. Juni 1991 verteilt, siehe Abbildung 5.1. Die Initialmasse von 17 Mt  $\text{SO}_2$  entspricht dabei dem von Read et al. (1993) aus MLS-Daten abgeleiteten Wert und liegt in dem von Krueger et al. (1995) angegebenen Bereich der TOMS-Daten.

Die  $\text{SO}_2$ -Masse eines Gitterpunktes ist über zwei Modellschichten verteilt worden, wobei 2/3 der Masse in der 2. Modellschicht mit einem mittleren Druckniveau von 30 hPa und 1/3 der Masse in der 3. Modellschicht mit einem mittleren Druckniveau von 50 hPa initialisiert worden sind. Diese vertikale Aufteilung ist an Beobachtungen angelehnt, wobei berücksichtigt worden ist, daß das ECHAM4-L19-Modell nur eine vertikale Auflösung bis 30 km besitzt und die oberste Schicht zwischen 25 km–30 km als Grenzschicht fun-

---

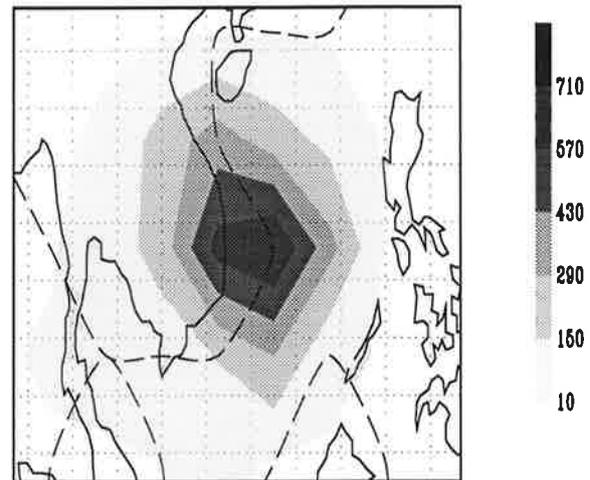
<sup>5</sup>SMM: Stratosphere-Mesosphere Modell

## TOMS



16. Juni 1991

## ECHAM4



16. Juni 1991

Abbildung 5.1: Initialisierung der Pinatubowolke. Vergleich der aus TOMS-Messungen ermittelten SO<sub>2</sub>-Säulenmasse (Sprod et al., 1993) mit der in ECHAM4 vorgegebenen Säulenmasse SO<sub>2</sub> in [matm cm] in einem Bereich von 5° N – 21.5° N und 95° E – 125° E. Die gestrichelten Linien in dem rechten Bild geben die Land-Seemaske des ECHAM4-T30-Modells wieder.

giert. Die obere Grenze des in dieser Arbeit verwendeten Modells bei 10 hPa und die sehr grobe vertikale Auflösung in der Stratosphäre mit Schichtdicken von 2 km – 4 km, siehe Abbildung 2.1, sind auch der wesentliche Grund dafür, daß eine interaktive Simulation mit dem ECHAM4-L19-Modell nicht sinnvoll erscheint. Bei einer Anhebung der Aerosolwolke um 1.5 km würde der größte Teil der Wolke in die oberste Schicht gelangen und damit sowohl der Transport wie auch der durch das Lofting hervorgerufene dynamische Effekt durch die Grenzbedingungen des Zirkulationsmodells limitiert sein. Es wird jedoch der Strahlungsantrieb durch die erhöhte Aerosolkonzentration auf Grund der Pinatuboeruption berechnet, um abzuschätzen, welche dynamischen Effekte mit einer transienten Pinatubosimulation erzielt werden, siehe Kapitel 5.3.5.

### 5.2.1 Assimilation der Pinatuboepisode

Für die Assimilation der Pinatuboepisode wird ein Newton'sches Relaxationsverfahren, das sogenannte Nudging, verwendet, welches auch als Datenassimilationsystem in Wettervorhersagemodellen angewendet wird (Hoke und Anthes, 1976; Krishnamurti et al., 1991; Brill et al., 1990). Jeuken et al. (1996) adaptierten diese Technik erstmalig für das Klimamodell ECHAM4.

Die Nudgingmethode zwingt den Modellzustand in Richtung der Beobachtungsdaten, indem es einen nicht-physikalischen Term zu den Modellgleichungen addiert. Da ECHAM4 ein spektrales Modell ist, kann das Nudgingverfahren im Spektralraum angewendet werden. Dadurch ist die Möglichkeit gegeben, bei höher auflösenden Modellen nicht mehr

alle Komponenten zu relaxieren und somit Rechenzeit zu sparen. Bei den hier vorliegenden Rechnungen mit einer spektralen Auflösung von T30 werden alle Spektralkomponenten bis auf die erste Komponente relaxiert, da diese das globale Mittel repräsentiert und die Erhaltung von Masse und Drehimpuls nicht verletzt werden soll.

Unter Anwendung des Nudgingverfahrens gilt für die zeitliche Entwicklung einer beliebigen prognostischen Größe  $A(t)$  :

$$\frac{\partial A}{\partial t} = F^m(A, t) + K_N(A, t) (A^{obs}(t) - A(t)) \quad , \quad (5.1)$$

wobei  $A^{obs}(t)$ , den beobachteten Wert,  $K_N(A, t)$  den Relaxationskoeffizienten, und  $F^m$ , den Forcingterm, der die Entwicklung von  $A(t)$  beschreibt, repräsentiert. Für die Integration von  $A(t)$  wird ein semi-implizites finites Differenzenschema in zwei Schritten verwendet. Zuerst werden das Modellforcing  $F^m$  und ein neuer Wert für die prognostische Variable  $A^*(t + \Delta t)$  errechnet und daran anschließend, in einem zweiten Schritt, der Relaxationsterm, so daß sich folgende Gleichung für  $A(t + \Delta t)$  ergibt:

$$A(t + \Delta t) = (A^*(t + \Delta t) + 2\Delta t K_N(A, t) A^{obs}(t + \Delta t)) / (1 + 2\Delta t K_N(A, t)) \quad . \quad (5.2)$$

Somit ist  $A(t + \Delta t)$  ein gewichtetes Mittel aus dem von dem Modell vorhergesagten Wert  $A^*(t + \Delta t)$  und dem beobachteten Wert  $A^{obs}(t + \Delta t)$ .

Die größten Schwierigkeiten in der Anwendung des Nudgingverfahrens liegen in der Auswahl der zu relaxierenden Variablen und in der Wahl des optimalen Nudgingkoeffizienten. Ist der Relaxationskoeffizient zu groß gewählt, kann es zu einer Unterdrückung von subskaligen Prozessen und damit zu Instabilitäten in dem Modell kommen. Ursache dafür ist, daß ohne Assimilationsverfahren ein physikalisches Gleichgewicht zwischen parameterisierten<sup>6</sup> und dynamischen Größen existiert. Durch Anwendung des Nudgingverfahrens werden nicht nur die prognostischen Größen in Richtung der Beobachtungen relaxiert, sondern auch die parameterisierten Größen daran gehindert, einen Gleichgewichtszustand zu erreichen. Man hat dadurch ein kontinuierliches spin-up Problem vorliegen, welches um so größer ist, je stärker das Modell adjustiert wird. Ist dagegen der Relaxationskoeffizient zu klein gewählt, wird keine Annäherung an die Beobachtungen erzielt.

In Anlehnung an Jeuken et al. (1996) werden in dieser Arbeit Vorticity, Divergenz, Bodendruck und Temperatur relaxiert, wobei für die Koeffizienten folgende, zeitlich konstante Werte gewählt werden:

$$\begin{aligned} \text{Divergenz:} & \quad K_N = 1 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \\ \text{Vorticity:} & \quad K_N = 5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} \\ \text{Bodendruck:} & \quad K_N = 1 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \\ \text{Temperatur:} & \quad K_N = 1 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} \end{aligned}$$

Als Beobachtungswerte können sowohl Rohdaten als auch analytische Beobachtungen verwendet werden. Für die vorliegenden Assimilationen werden spektrale 'first guess'

<sup>6</sup>durch physikalische Parameterisierungen abgeleitete Größen, wie z.B. die diabatische Heizung

Felder des ECMWF verwendet, die eine gute Näherung des beobachteten atmosphärischen Zustandes darstellen. In Gegenden mit wenigen Beobachtungen, z.B. große Bereiche der Tropen, repräsentieren die Daten im wesentlichen die ECMWF-Modellergebnisse und können daher mit Unsicherheiten behaftet sein. Die ECMWF-Felder enthalten 6-Stunden-Vorhersagen für Temperatur, Vorticity, Divergenz und Bodendruck. Da die Analysedaten nur alle sechs Stunden vorliegen, werden sie linear über den Zeitraum interpoliert. Die Analysen liegen in einer spektralen Auflösung von T106 vor und werden für das Assimilationsverfahren auf eine spektrale Größe von T30 reduziert. Durch das Abschneiden der Analysedaten bei der Großkreiswellenzahl 30 wird dem ECHAM-Modell ein künstlicher Forcingterm aufgezwungen, da die Analysedaten für T30 mehr Informationen über kleinskaligere Prozesse enthalten als die Simulationen des ECHAM-Modells in T30 Auflösung. Somit wird das Zirkulationsmodell an Prozesse relaxiert, die es gar nicht beinhaltet, was zu Ungenauigkeiten führen kann.

Obwohl dem ECMWF-Modell dieselben vertikalen Hybridlevel wie dem ECHAM-Modell zu Grunde liegen, werden in beiden Modellen unterschiedliche Orographien verwendet. Das ECHAM-Modell benutzt eine gemittelte Orographie, während in dem ECMWF-Modell eine 'envelope' Orographie verwendet wird, bei der lokale Abweichungen auf das gemittelte Feld addiert werden. Die Unterschiede treten besonders stark in gebirgigen Gegenden auf und betragen einige 100 Meter. Um Fehler zu vermeiden, wird daher zwischen beiden Orographien vertikal interpoliert.

Zusätzlich werden Meeresoberflächentemperaturen und Bodentemperaturen alle 24 Stunden aus den ECMWF-Daten vorgeschrieben, wobei durch die Interpolation von einem sehr hoch aufgelösten Gitter auf ein grob aufgelöstes Ungenauigkeiten in Gegenden mit starkem Land-Seecontrast auftreten können.

Zusammenfassend kann man trotz oben diskutierter Fehlerquellen davon ausgehen, daß durch Anwendung der Nudgingtechnik die Modelldynamik der beobachteten Dynamik in guter Näherung entspricht (Jeuken et al., 1996). Somit bietet das Nudgingverfahren ein wirkungsvolles Werkzeug, um die Dynamik bestimmter Zeitabschnitte, wie z.B. die Pinatuboepisode, mit dem ECHAM4-Modell zu modellieren.

## 5.3 Ergebnisse und Diskussion

### 5.3.1 Assimilierte Pinatubosimulation

Abbildung 5.2 zeigt die modellierte globale Ausbreitung der Pinatubowolke anhand der stratosphärischen Aerosolsäulenmasse ein, zwei, drei und vier Wochen nach der Eruption. Die simulierte Wolke breitet sich schnell westwärts mit der assimilierten östlichen Phase der QBO aus. Nach einer Woche erstreckt sich die Wolke in einem Band von Zentralafrika bis Indonesien, und nach drei Wochen hat die Pinatubo-Aerosolwolke die Erde einmal umrundet. Der zeitliche Verlauf entspricht damit  $\text{SO}_2$ -Beobachtungen von TOMS (Bluth et al., 1992). Im Unterschied zu den Beobachtungen ist in den Simulationen jedoch kein anfänglicher Transport über den Äquator hinweg in die südliche Hemisphäre zu finden. Das Pinatuboaerosol ist in der Simulation in einem Band zwischen dem Äquator und  $30^\circ$  N gebunden, in den Beobachtungen dagegen zwischen  $20^\circ$  S

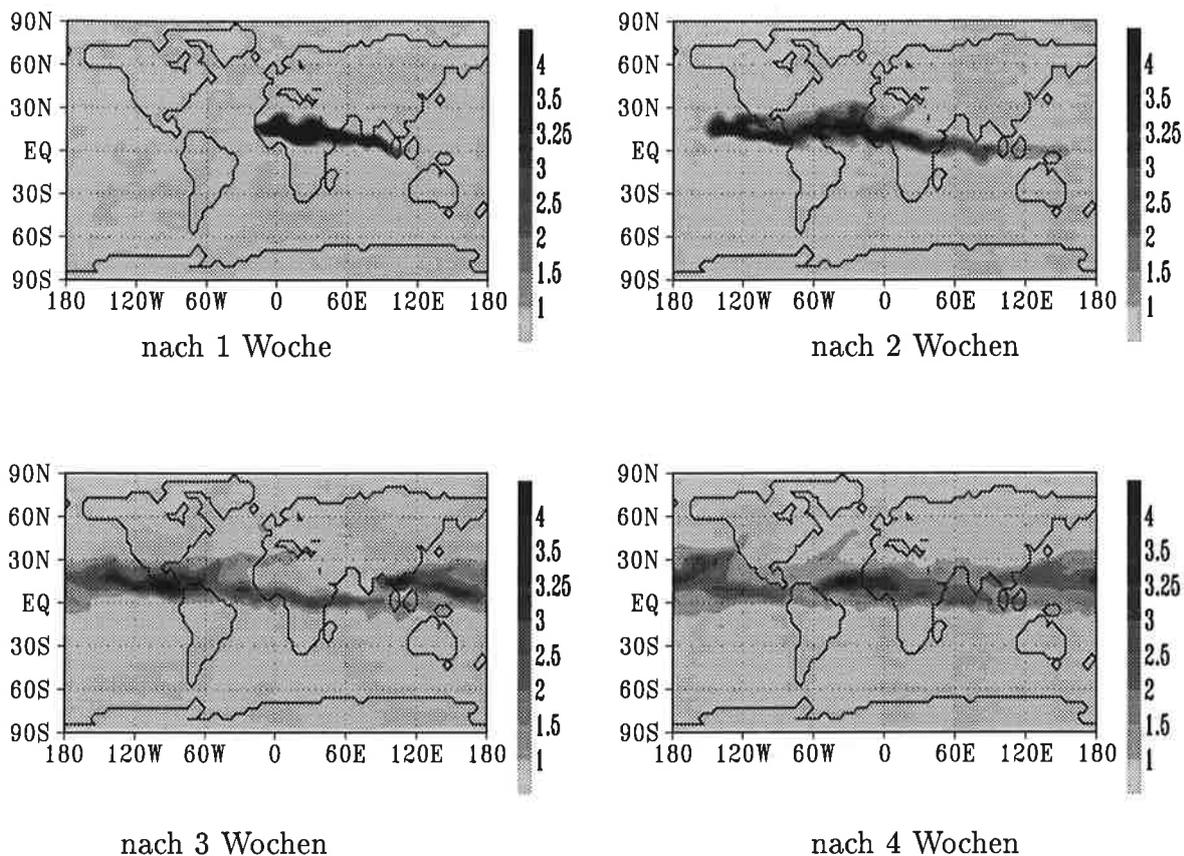


Abbildung 5.2: Anfängliche Ausbreitung des Pinatuboaerosols in  $[10^2 \text{ g/cm}^2]$   $\text{SO}_2$ .

und  $30^\circ \text{ N}$  (McCormick und Veiga, 1992). Die anfängliche zeitliche Ausbreitung der Pinatubowolke wird von dem ECHAM4-Modell in guter Übereinstimmung mit den Beobachtungen wiedergeben. Bei der geographischen Verteilung sind Unterschiede in den südlichen Subtropen festzustellen, auf die im weiteren Verlauf des Kapitels noch näher eingegangen wird.

Inwieweit Modellergebnisse und Beobachtungen über einen Zeitraum von eineinhalb Jahren übereinstimmen, läßt sich anhand der Aerosolmasse am besten validieren, da das Modell direkt die zeitliche Veränderung der Massenmischungsverhältnisse berechnet. In Abbildung 5.3 wird die simulierte globale Sulfatmasse mit Beobachtungen des HIRS<sup>7</sup> Instrumentes (Baran und Foot, 1994) an Bord der operationell agierenden NOAA/NESDIS<sup>8</sup>-Satelliten verglichen. Um aus den Beobachtungen Abschätzungen über die globale Aerosolladung nach dem Ausbruch des Pinatubo herzuleiten, verwendeten Baran und Foot (1994) die Transmission des HIRS-Kanal an Bord von NOAA 10/12 in einem Wellenlängenbereich von  $8.3 \mu\text{m}$ , der sensitiv auf das Aerosol reagiert, und die Transmission des HIRS -  $12.5 \mu\text{m}$ -Kanal an Bord von NOAA 11, der nicht sehr sensitiv auf Aero-

<sup>7</sup>HIRS: High-Resolution Infrared Radiation Sounder

<sup>8</sup>NOAA/NESDIS: National Oceanographic Atmospheric Administration/National Environmental Satellite Information Services

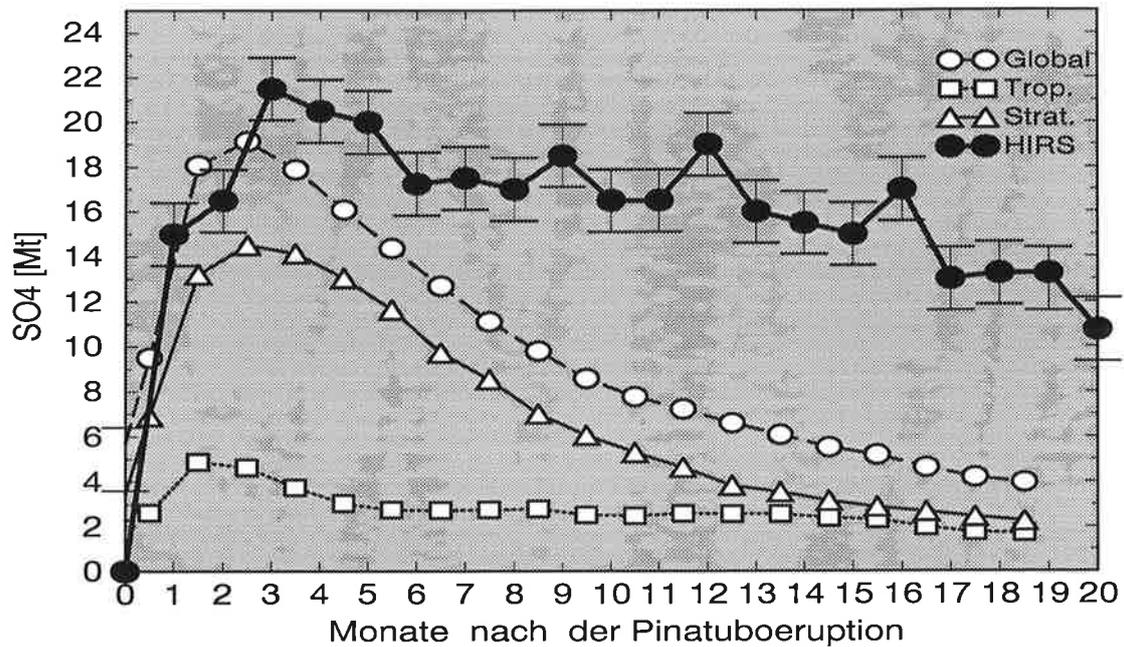


Abbildung 5.3: Vergleich der globalen Sulfatmasse nach dem Ausbruch des Mt. Pinatubo zwischen ECHAM4-Simulationen und monatlich gemittelten HIRS-Satellitendaten von Baran und Foot (1994). Die Fehlerbalken kennzeichnen die Meßungenauigkeiten der Satellitendaten von 1.4 Mt.

sol anspricht. Die relativen Schwankungen in den Beobachtungen, erklären sich somit zum einen dadurch, daß Daten von zwei unterschiedlichen Satelliten mit sechsständiger Zeitverschiebung verwendet worden sind und zum anderen, daß bei der Aufbereitung der Daten ein konstantes Hintergrundsignal abgezogen wurde. Das Hintergrundsignal, welches aus drei Monatsmittel für den Mai (1990,1991,1994) ermittelt worden ist, wird durch die Absorption von Wasser- und Eiswolken hervorgerufen. Die Meßungenauigkeiten werden von Baran und Foot (1994) mit 1.4 Mt angegeben und liegen damit im Bereich der Masse des Hintergrundaerosols.

Vergleicht man die ECHAM4-Simulationen mit den Beobachtungen, zeigt sich in den ersten drei Monaten eine sehr gute Übereinstimmung in der globalen Massenladung. Im weiteren Verlauf ist dann jedoch eine deutliche Differenz zwischen Beobachtung und Simulation zu erkennen. Die simulierte Aerosol-Massenladung erreicht nach 3 Monaten ihren maximalen Wert von 19 Mt und fällt dann mit einer Abklingzeit von 10.3 Monaten innerhalb der nächsten 16 Monate auf einen Wert von 4 Mt ab. Die globale Masse in den HIRS-Beobachtungen erreicht ihren Maximalwert von 21.5 Mt einen Monat später als die Simulation und sinkt dann leicht verrauscht auf einen Wert von 16 Mt im Juli 1992 ab. Ab Juli 1992 fällt dann die globale Masse in den HIRS-Beobachtungen mit einer Abklingzeit von 6.7 Monaten bis Oktober 1993 auf den präeruptiven Wert in Bereich von 2 Mt ab. In der Modellsimulation ist somit ein relativ zu starker exponentieller Abfall im Vergleich zu den Messungen zu beobachten, so daß Ende Dezember 1992, 18 Monate nach der Pinatuboeruption, die simulierte Aerosolmasse mit 4 Mt nur noch ein Drittel der beobachteten Masse von 12 Mt beträgt.

Eine Erklärung für den starken globalen Abfall findet man, wenn man sich die zeitliche

Entwicklung der Aerosolmasse in der Stratosphäre und in der Troposphäre betrachtet. Der zeitliche Verlauf der globalen troposphärischen Aerosolmasse unterscheidet sich stark vom gesamten atmosphärischen Verlauf. Zunächst ist in den ersten zwei bis drei Monaten ein Anstieg des troposphärischen Sulfatgehalts um das 2.5 fache des präeruptiven Wertes auf 4.8 Mt zu beobachten. Innerhalb der darauf folgenden drei Monate sinkt jedoch die Masse auf ca 3 Mt ab, um dann über die nächsten 10 Monate mit einigen Schwankungen konstant zu bleiben. Ab August 1992 fällt die troposphärische Aerosolmasse dann leicht zum Hintergrundwert ab. Der starke Anstieg in der troposphärischen Aerosolladung in den ersten Monaten nach dem Ausbruch deutet daraufhin, daß der vertikal abwärts gerichtete Transport besonders zu Beginn der Simulation zu stark ist. Ist das Sulfataerosol in die Troposphäre hinabgesunken, so wird es durch nasse und trockene Deposition aus der Atmosphäre entfernt. Die Lebensdauer von Sulfat in der Troposphäre beträgt nach Feichter et al. (1996) 4.6 Tage. So läßt sich auch der relativ konstante Wert erklären. Die Schwankungen in der troposphärischen Aerosolmasse treten dabei durch den jahreszeitlichen Verlauf des troposphärischen Schwefelkreislaufes auf, siehe Feichter et al. (1996).

Der zeitliche Verlauf der globalen stratosphärischen Sulfatmasse bestimmt den zeitlichen Verlauf der globalen Gesamtmasse mit einem Maximum von 14.5 Mt nach drei Monaten und einer starken exponentiellen Abklingzeit von 8.5 Monaten bis Ende 1992. Die Abklingzeit der stratosphärischen Aerosolmasse ist somit kleiner als die der gesamten atmosphärischen Masse. Aus Abbildung 5.3 geht damit hervor, daß die starken Differenzen in der globalen Sulfatmasse durch den Verlust an stratosphärischer Aerosolmasse hervorgerufen werden, was bedeutet, daß zuviel Aerosolmasse aus der Stratosphäre entfernt wird. Ein hoher Verlust von stratosphärischer Aerosolladung ist aber gleichbedeutend mit einem zu starken vertikalen Transport im Modell.

Der starke vertikale Abwärtstransport in der Modellsimulation hat zwei Ursachen. Die eine ist die schon in Kapitel 2.3.1 beschriebene große numerische Diffusivität des SLT-Schemas bei starken vertikalen Gradienten. Die zweite liegt in der groben horizontalen und vor allem auch in der groben vertikalen Auflösung des Modells. ECHAM4 löst mit einer vertikalen Schichtdicke von 2 km die Tropopause zu gering auf und ist damit nicht in der Lage, kleinskaligere Prozesse wie Tropopausenfaltung und turbulente Diffusion realistisch zu simulieren. Untersuchungen des Stratosphären-Troposphären-Austausches anhand der CCM2-Pinatubosimulation von Mote et al. (1994) wiesen ähnliche Schwierigkeiten auf. So zeigten die Simulationen, daß die Tracerfilamente unrealistisch schnell in den Tropen abwärts transportiert worden sind. Es stellt sich damit die Frage nach der Modellierung des Stratosphären-Troposphären-Austausches, in dem Zirkulationsmodell.

### **5.3.2 Parameterisierung des Stratosphären-Troposphären-Austausches**

Stratosphäre und Troposphäre sind nicht zwei stark voneinander abgekoppelte Bereiche, sondern sie gehen vielmehr kontinuierlich ineinander über und sind dynamisch fest miteinander verbunden. Sie unterscheiden sich jedoch in ihren wesentlich Eigenschaften, z.B. in ihrer Temperatur- und Ozonverteilung, in der chemischen Zusammensetzung ih-

rer Luftpakete sowie in ihren vertikalen Austauschzeiten. So kann ein Luftpaket die Höhe der Troposphäre durch Konvektion und turbulente Austauschprozesse in wenigen Stunden bzw. Tagen durchqueren. Für eine entsprechende Strecke würde das Luftpaket dagegen in der Stratosphäre Monate bzw. Jahre brauchen. In der klassischen Meteorologie wird die Tropopause als Grenze zwischen Stratosphäre und Troposphäre und als Trennschicht der vertikalen Austauschprozesse verstanden.

Die Tropopause wird entweder thermisch oder dynamisch definiert. Nach den Konventionen der WMO<sup>9</sup> ist die thermische Tropopause durch die niedrigste Höhe definiert, in der der Temperaturabfall  $2 \text{ K km}^{-1}$  oder weniger beträgt und der gemittelte Temperaturabfall zwischen dieser Höhe und jeder anderen Höhe innerhalb der nächsten 2 km die  $2 \text{ K km}^{-1}$  nicht überschreitet. Die dynamische Definition der Tropopause geht dagegen von einem konstanten Wert in der isentropen potentiellen Vorticity  $Q$  aus:

$$Q = -g(f + \zeta_{\Theta}) \frac{\partial \Theta}{\partial p} \quad (5.3)$$

wobei  $\Theta$  die potentielle Temperatur,  $\zeta_{\Theta}$  die relative Vorticity auf einer isentropen Fläche und  $f$  der Coriolisparameter ist. Die dynamische Definition der Tropopause wird erst polwärts von  $10^\circ$  berechnet, da die absolute Vorticity in der Nähe des Äquators ihr Vorzeichen ändert. Nach der Definition der WMO liegt die Tropopause bei  $1.6 \cdot 10^{-6} \text{ K m}^2/\text{kg s}$  in der Literatur werden Werte zwischen  $3 \cdot 10^{-6} \text{ K m}^2/\text{kg s}$  und  $5 \cdot 10^{-6} \text{ K m}^2/\text{kg s}$  (Hoinka et al., 1993) verwendet. Der Stratosphären–Troposphären–Austausch, kurz ST–Austausch, findet im wesentlichen in zwei Gebieten statt: in den Tropen durch hochreichende Konvektion und in mittleren Breiten, wo über barokline Wellen stratosphärische Luft in die Troposphäre gebracht wird und auf diese Weise irreversible Austauschprozesse stattfinden. Durch synoptisch– und kleinskaligere Prozesse, wie Tropopausenfaltungen und Kaltlufttropfen, kommt es in den mittleren Breiten zu zusätzlichen Austauschprozessen.

Eine neuer Ansatz des ST–Austausches ist in Holton et al. (1995) zu finden. In Anlehnung an eine Idee von Shaw (1930) und Hoskins (1991) unterteilen Holton et al. (1995) die Stratosphäre in eine Oberwelt, in der alle isentropen Flächen in der Stratosphäre liegen, und in eine extratropische unterste Stratosphäre, 'lowermost extratropical stratosphere', deren isentrope Flächen sowohl in der Stratosphäre als auch in der Troposphäre liegen, siehe Abbildung 5.4. Oberwelt und unterste Stratosphäre werden näherungsweise durch die 380 K potentielle Temperaturfläche getrennt und sollten für Transportbeobachtungen strikt getrennt werden. Luftpakete, die sich in der Oberwelt befinden, können nur durch langsames Herabsinken, verbunden mit diabatischer Abkühlung, durch die isentropen Flächen hindurch in die Troposphäre gelangen. Vice versa können sie nur aus der Troposphäre durch langsames Aufsteigen, verbunden mit diabatischer Erwärmung, durch die isentropen Flächen hindurch die Stratosphäre erreichen. Transportprozesse in der untersten Stratosphäre sind in der Regel mit synoptischen und kleinskaligeren Prozessen verbunden, wodurch der Austausch zwischen Troposphäre und der untersten Stratosphäre wesentlich schneller sein kann, als zwischen der Oberwelt und der untersten Stratosphäre. Dementsprechend findet der ST–Austausch, der hier als Austauschprozeß

---

<sup>9</sup>WMO: World Meteorological Organization

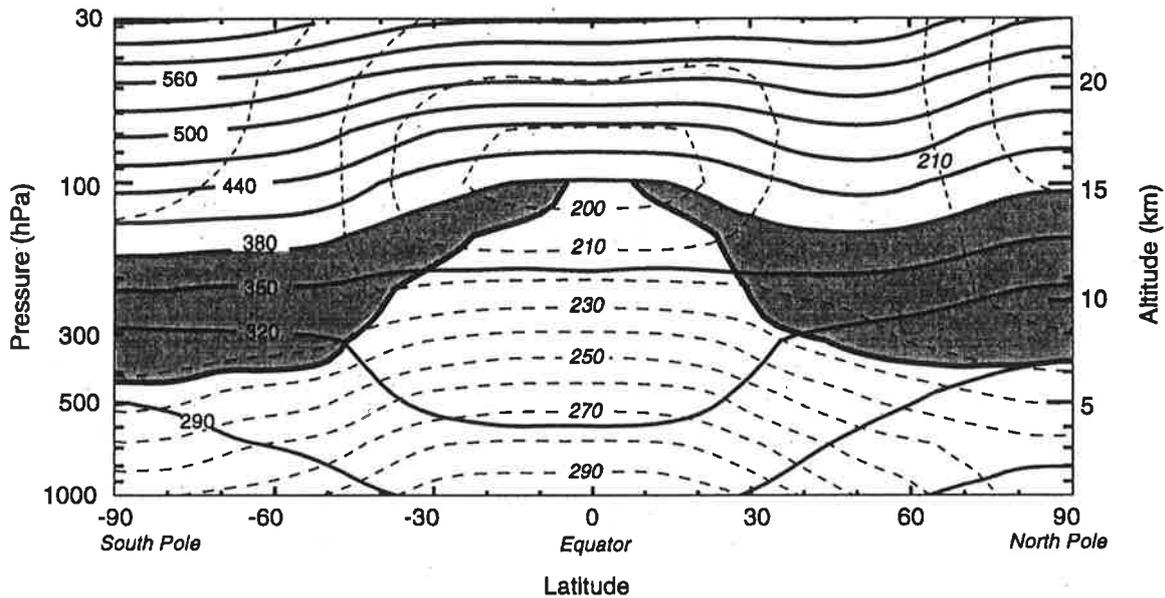


Abbildung 5.4: Veranschaulichung des ST-Austausches nach Holton et al. (1995). Der schattierte Bereich kennzeichnet die stratosphärische Unterwelt. Die gestrichelten Linien kennzeichnen die isothermen, die durchgezogenen die isentropen Flächen.

zwischen Oberwelt und unterer Stratosphäre verstanden wird, im wesentlichen durch den großräumigen Transport statt. Kleinräumige synoptische Prozesse spielen keine Rolle mehr, da sie zwischen der unteren Stratosphäre und der Troposphäre stattfinden. Eine detaillierte Beschreibung dazu ist in Holton et al. (1995) zu finden.

In der Literatur finden sich verschiedene Abschätzungen des ST-Austausches, die sich jedoch auf unterschiedliche Bezugsflächen, wie konstante Druckflächen oder Flächen mit konstanter potentieller Vorticity, beziehen und unterschiedliche Methoden verwenden, um den Massenfluß zwischen Stratosphäre und Troposphäre zu bestimmen. So zeigten Grewe und Dameris (1996a) anhand der Analyse von ECMWF-Daten über den Zeitraum von 1979–1989, daß die Ergebnisse, die mit unterschiedlichen Definitionen der Tropopause und verschiedenen Berechnungsansätzen berechnet worden sind, qualitativ recht gut übereinstimmen, jedoch in den absoluten Werten stark differieren.

Die Modellierung des ST-Austausches ist eine prinzipielle Schwierigkeit für Zirkulationsmodelle, da die räumliche und zeitliche Auflösung der Modelle, trotz erheblicher Verbesserungen in den letzten Jahren, immer noch zu grob ist (Holton et al., 1995). Tests, die Mote et al. (1994) mit dem CCM2 durchführten, zeigten zwar, daß das Modell die jahreszeitliche Variabilität des Massen-Austausches auf der 100 hPa-Fläche mit einem Maximum im Winter und einem Minimum im Sommer richtig wiedergibt, der Massenaustausch aber selbst zu stark ist. Die tropische Tropopause scheint im CCM2-Modell zu stark durchlässig zu sein, wie die Pinatubosimulationen zeigen. Ein Vergleich des ST-Austausches zwischen ECMWF-Analysen und einem 10-jährigen Mittel aus ECHAM3 T21-Modellsimulationen (Grewe und Dameris, 1996b) führte zu ähnlichen Ergebnissen.

Es zeigte sich, daß die meridionale Variation des Austausches in dem Modell recht gut den Beobachtungen entspricht, jedoch der nach unten gerichtete Massenfluß in den mittleren Breiten um das 1.5 bis 2-fache größer als in den Analysen ist.

Untersuchungen von van Velthoven und Kelder (1996) mit dem TMK<sup>10</sup>, welches mit ECMWF-Daten angetrieben wird, zeigten, daß eine feinskaligere horizontale Modellauflösung den ST-Austausch in dem Modell verbessern kann. Die Verbesserung ist allerdings stark von dem gewählten Bereich abhängig. So zeigten van Velthoven und Kelder (1996), daß sich der ST-Austausch wesentlich verändert, wenn statt einer horizontalen Auflösung von  $8^\circ \times 10^\circ$  eine von  $4^\circ \times 5^\circ$  gewählt wird. Bei einer Änderung von  $4^\circ \times 5^\circ$  zu  $2.5^\circ \times 2.5^\circ$  verbessert sich der ST-Austausch dagegen nur geringfügig. Die ECHAM4 T30-Simulationen liegen mit einer Auflösung von  $3.75^\circ \times 3.75^\circ$  vor, eine Wiederholung der Experimente in T42 Auflösung von  $2.3^\circ \times 2.3^\circ$ , würde demzufolge keine entscheidende Verbesserung bringen. Um Tropopausenfaltungen und Kaltlufttropfen realistisch zu simulieren, sind wesentlich kleinere horizontale Auflösungen, wie sie in mesoskaligen Modellen verwendet werden, erforderlich. So liegt z.B. dem MM4<sup>11</sup>, mit dem Simulationen von Tropopausenfaltungen und Kaltlufttropfen (Ebel et al., 1991) durchgeführt worden sind, eine horizontale Auflösung von  $80 \text{ km} \times 80 \text{ km}$  zu Grunde. GCM-Modellierungen mit der erforderlichen feinen Auflösung sowohl in der Horizontalen als auch in der Vertikalen sind aber gegenwärtig über einen Zeitraum von Monaten und Jahren, wie es für die Pinatuboepisode erforderlich wäre, technisch nicht zu realisieren.

Um den von Holton et al. (1995) aufgezeigten langsamen Austauschprozeß zwischen Ober- und Unterwelt realistisch zu simulieren, ist eine Formulierung der Modellgleichungen auf isentropen Flächen wünschenswert. Durch eine Formulierung in isentropen Koordinaten kann deutlich zwischen dem advektivem Transport entlang von isentropen Flächen und dem mit diabatischen Prozessen verbundenen Transport durch isentrope Flächen hindurch unterschieden werden. Isentrope Koordinaten können jedoch für globale Zirkulationsmodelle, die wie das ECHAM4 Tropo- und Stratosphäre berücksichtigen, nicht verwendet werden, da bei einer sogewählten Formulierung erhebliche Schwierigkeiten in der unteren Grenzschicht auftreten, siehe Abbildung 5.4. Durch die Lösungen der Transportgleichungen im ECHAM im Eulerschen Gitterpunktraum treten somit Unterschiede zu der beobachteten stratosphärischen Transportcharakteristik auf.

Eine weitere Schwierigkeit bei der Modellierung des Austausches zwischen der stratosphärischen Ober- und Unterwelt entsteht durch die Verwendung des SLT-Schemas und damit verbunden mit der Anwendung eines Massendifferenzierers, siehe Kapitel 2.1.1. Massendifferenzierer und SLT-Schema sorgen dafür, daß der sich auf der Grenze zwischen Ober- und Unterwelt einstellende Gradient in der Tracerkonzentration durch künstlichen Transport verringert wird.

Als eine einfache und realisierbare Parameterisierung des ST-Austausches bietet sich daher eine Reduzierung des advektiven vertikalen Transports auf der von Holton et al. (1995) als Grenze zwischen Ober- und Unterwelt vorgeschlagenen isentropen Fläche von 380 K an. Die Reduzierung des vertikalen advektiven Transports wird dabei direkt in dem SLT-Schema angewendet, bevor der Massendifferenzierer aufgerufen wird. Dadurch wird

---

<sup>10</sup>TMK: Transport Model KNMI, KNMI (Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut)

<sup>11</sup>MM4: Penn State/NCAR Mesoscale Model Version 4

gewährleistet, daß keine Massenveränderung stattfindet. Die advective vertikale Transporttendenz wird dabei um einen konstanten Faktor reduziert, so daß die saisonale Variabilität des Austausches nicht verändert, sondern nur die Stärke verringert wird. Um die durch die Reduzierung auftretenden artifiziellen Gradienten zu vermeiden, wird ebenfalls in der jeweiligen über und unter der 380 K Schicht liegenden Schicht der advective vertikale Transport ebenfalls um einen bestimmten Anteil reduziert. Im weiteren Verlauf der Arbeit wird diese Reduzierung als STE<sup>12</sup>-Parameterisierung gekennzeichnet. Als eine geeignete Parameterisierung des STE-Austausches bietet sich z.B. eine Reduzierung in der 380 K Schicht um 50% und in der jeweiligen höheren und niedrigeren Schicht um 25% bzw. alternativ dazu, eine Reduzierung um 75% in der 380 K Schicht und um 50% in den benachbarten Schichten an. Beide Möglichkeiten werden im folgenden anhand der Pinatubosimulationen ausgetestet.

### 5.3.3 Assimilierte Pinatubosimulationen mit STE-Parameterisierung

Im nachfolgenden Abschnitt werden ECHAM4-Simulationen mit unterschiedlich großer Reduzierung des vertikalen Transports und mit unterschiedlicher geographischer Anfangsverteilung mit Beobachtungen verglichen. In Tabelle 5.1 ist eine Übersicht über die verschiedenen Experimente gegeben. Das Experiment a) entspricht dabei der in Kapitel 5.3.1 vorgestellten Simulation ohne Reduzierung des vertikalen Transports. Bei den Experimenten b) und c) wird der advective vertikale Transport um 50% in der 380 K Schicht reduziert bzw. um 25% in der darüber und darunterliegenden Schicht. Bei den Experimenten d) und e) wird der vertikale Transport um 75% in der 380 K Schicht bzw. um 50% in den benachbarten Schichten reduziert. Die Experimente b) und c) bzw. d) und e) unterscheiden sich in der Initialisierung der Pinatubowolke. Das Anfangsfeld ist in c) und e) um 7.5° nach Süden verschoben worden, um den fehlenden, anfänglich über den Äquator gehenden, Transport zu beschreiben, siehe Abbildung 5.2.

<sup>12</sup>STE: Stratosphere Troposphere Exchange

Fall	Initialisierung	380 K	380 K±1
a	0° N–18.55° N, 96°E–118° E	-	-
b	0° N–18.55° N, 96°E–118° E	50%	25%
c	-7.5° N–11.05° N, 96°E–118° E	50%	25%
d	0° N–18.55° N, 96°E–118° E	75%	50%
e	-7.5° N–11.05° N, 96°E–118° E	75%	50%

Tabelle 5.1: Übersicht über die Pinatuboexperimente.

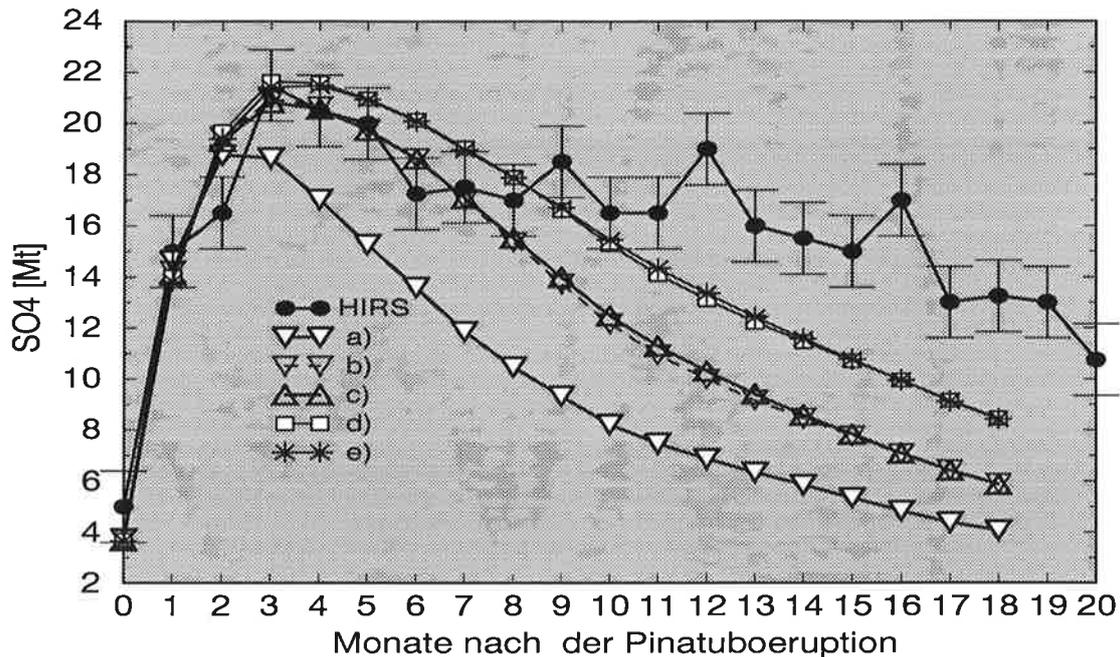


Abbildung 5.5: Vergleich der globalen Sulfatmasse nach dem Ausbruch des Mt. Pinatubo zwischen ECHAM4-Simulationen mit verschiedener STE-Parameterisierung und HIRS-Satellitendaten von Baran und Foot (1994).

In Abbildung 5.5 ist für die fünf Fälle der zeitliche Verlauf der globalen Aerosolladung im Vergleich zu den HIRS-Satellitendaten, entsprechend Abbildung 5.3, aufgetragen. Die Initialisierung 2 Gitterpunkte südlicher hat kaum Auswirkungen auf die globale Massenverteilung. Dagegen ist jedoch deutlich zu erkennen, welchen Einfluß die Reduzierung des vertikalen Transports in der Tropopausenregion auf die Simulationsergebnisse hat. Da der rasche Anfangstransport in die Troposphäre durch die Reduzierung des vertikalen Transports behindert wird, ändern sich in den Experimenten b) – e) die Maximalwerte und ihr Abklingverhalten gegenüber denen vom Experiment a). So liegt das Maximum für die Experimente b) und c) mit einer Reduzierung in der 380 K Schicht um 50% bei 21 Mt und für die Experimente d) und e) mit einer Reduzierung um 75% bei 21.5 Mt. Beide Maximalwerte liegen damit im Bereich der Meßgenauigkeiten, im Gegensatz zur Simulation ohne STE-Parameterisierung, deren Maximalwert bei 18.5 Mt liegt. Das Maximum verschiebt sich dabei in den Experimenten b)– e) gegenüber dem Experiment a) um 1 Monat nach hinten und entspricht damit den Messungen. Der exponentielle Abfall der globalen Aerosolmasse ist bei den Simulationen mit STE-Parameterisierung deutlich geringer als in der Simulation ohne. So beträgt die exponentielle Abklingzeit von September 1991 bis Dezember 1992 für b) und c) 1 Jahr und für d) und e) 16 Monate im Vergleich zu 9.8 Monaten bei a). 8 – 10 Monate nach dem Pinatuboausbruch sind je nach STE-Parameterisierung signifikante Unterschiede zwischen den ECHAM4-Simulationen und den Satellitenbeobachtungen festzustellen, die zum Teil auch auf das in den HIRS-Daten beobachtete Rauschen zurückzuführen sind.

Generell zeigt sich, daß durch die Einführung einer STE-Parameterisierung die simulierte globale Aerosolladung für die ersten 8 – 10 Monate nach der Eruption des Mt. Pinatubo in dem von Satellitendaten beobachteten Bereich, sowohl für ihre absoluten Werte als auch für ihren zeitlichen Verlauf, liegt. Durch die Reduzierung des advektiven vertikalen Transports in der 380 K und den benachbarten Schichten ist somit eine wesentliche Verbesserung gegenüber der ursprünglichen Version erzielt worden. Um die ab Frühjahr 1992 auftretenden Differenzen zu verstehen, ist es daher sinnvoll, sich die globale Verteilung des Pinatuboaerosols anzusehen. Wie sich die geographische Verteilung der simulierten Pinatuboaerosols im Vergleich zu Beobachtungen verhält, läßt sich anhand der zonal gemittelten optischen Dicke in Abbildung 5.6 zeigen. Die optische Dicke  $\tau_\nu(z)$  ist ein Maß für die Schichtdicke des Aerosols über eine Schicht die vom Oberrand der Atmosphäre bis zu einer Höhe  $z$  reicht. Sie ist definiert als:

$$\tau_\nu(z) = \int_z^\infty \tilde{E}_\nu(z') \rho_m dz' \quad (5.4)$$

wobei  $\tilde{E}_\nu$  den spektralen Massen-Extinktionskoeffizienten in  $\text{m}^2/\text{g}$  und  $\rho_m$  die Dichte des optischen Mediums, in diesem Fall des Aerosols, bezeichnet.

Um die simulierten Massenmischungsverhältnisse des Sulfataerosols in optische Dicken umzurechnen, wird eine Lognormalverteilung mit  $r_m = 0.075 \mu\text{m}$  und  $\sigma = 1.8$  angenommen. Durch die Wahl der Verteilungsparameter bei einer vorgegebenen Masse werden die optischen Größen des Aerosols im Vergleich zum gewählten Wellenlängenbereich nur wenig beeinflusst, siehe Kapitel 5.3.5. Die typische Hintergrundverteilung kann somit auch für die vulkanisch gestörte Atmosphäre in erster Näherung verwendet werden.

Als Beobachtungsdaten werden AVHRR<sup>13</sup>-Satellitendaten von Long und Stowe (1994) verwendet. Das AVHRR-Instrument an Bord des NOAA 11 Satelliten mißt die Strahlungsstärke der von der Erdoberfläche und der Atmosphäre rückgestreuten solaren Einstrahlung. Der NOAA-Satellit umrundet den Globus einmal in der Woche, so daß wöchentliche Beobachtungsdaten in einer horizontalen Auflösung von 110 km vorliegen. Einschränkungen in den AVHRR-Beobachtungen liegen vor allem darin, daß, um aus der gemessenen Rückstreuung Werte für die optische Dicke zu gewinnen, Modelle der Aerosolgrößenverteilung und der Refraktionsindizes angewendet werden müssen (Rao et al., 1989). Desweiteren werden von den Meßdaten ein konstanter klimatologischer troposphärischer Aerosolwert abgezogen und nur Daten über dem Ozean verwendet. Während die raum-zeitliche Entwicklung des Pinatuboaerosols durch die AVHRR-Beobachtungen gut wiedergegeben wird, ist die quantitative Größe der optischen Dicke mit Unsicherheiten behaftet (Long und Stowe, 1994). So zeigten Long und Stowe (1994) bei einem Vergleich der aus AVHRR-Daten ermittelten optischen Dicke mit Sonnenphotometermessungen für Mauna Loa und Samoa, daß die Satellitenwerte von Juni-Dezember 1991 um 36 % größer waren als die Photometerdaten. In Russel et al. (1996) wird empfohlen, die AVHRR-Daten für den Zeitraum von Juni-Dezember 1991 mit einem Faktor von 0.84 zu multiplizieren. Eine Alternative zu den AVHRR-Beobachtungen sind die SAGE-II-Messungen (Russel et al., 1996). Der Meßbereich von SAGE II wurde jedoch in den ersten Monaten über den Tropen überschritten, so daß diese Werte ebenfalls korrigiert werden müssen.

<sup>13</sup> AVHRR: Advanced Very High Resolution Radiometer

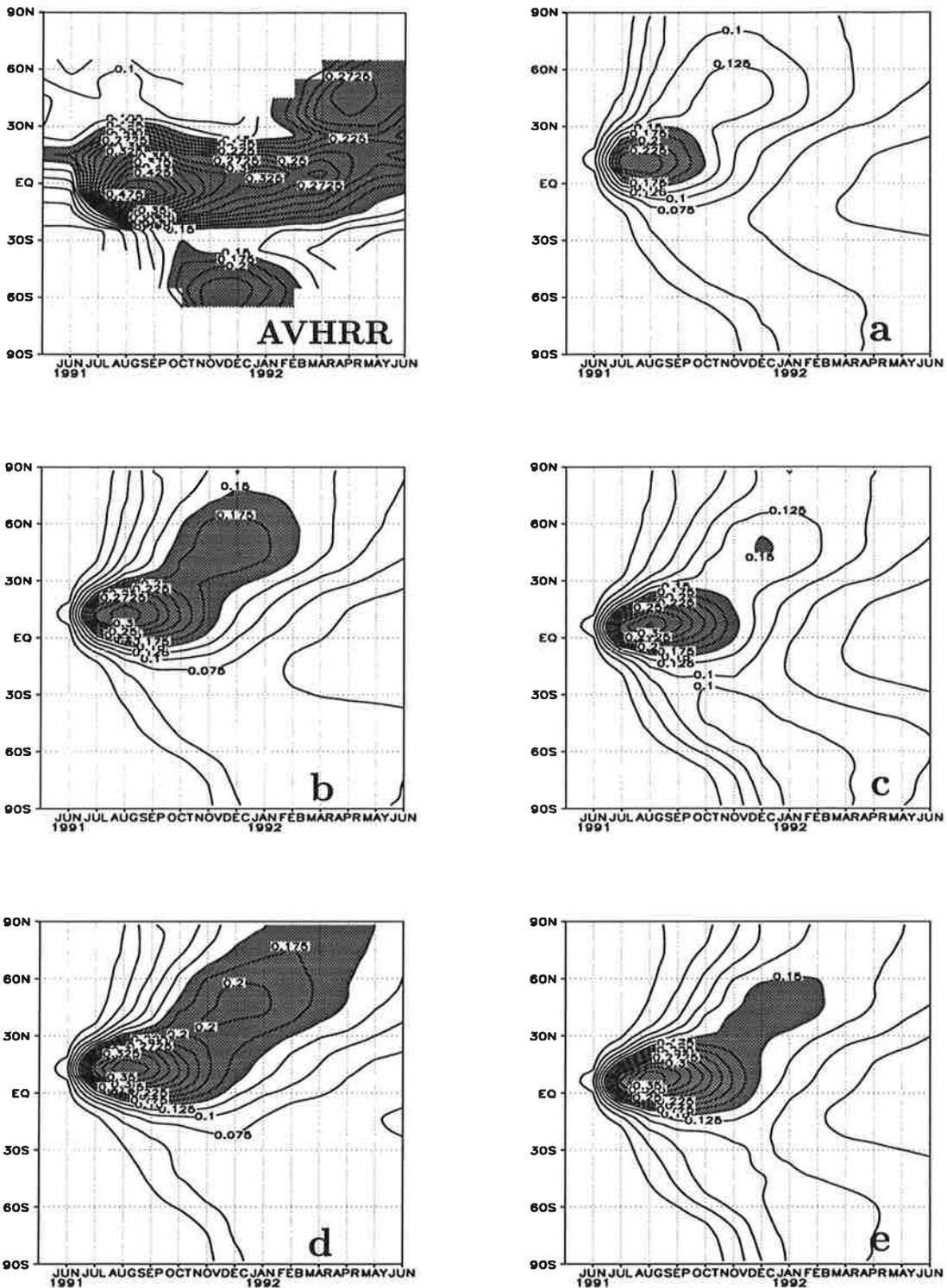


Abbildung 5.6: Vergleich der stratosphrischen optischen Dicke  $\tau$  fr  $\lambda = 0.5 \mu\text{m}$  zwischen AVHRR-Daten (Long und Stowe, 1994) und ECHAM4-Simulationen, entsprechend Tabelle 5.1.

Vergleicht man zunächst die Größenordnungen der simulierten optischen Dicken mit den Beobachtungen, und berücksichtigt dabei die Überschätzung der AVHRR-Daten in den ersten Monaten um 36%, so stellt man fest, daß die Simulationen im Bereich der Messungen liegen. Auch in Abbildung 5.6 zeigt sich, wie bei dem Vergleich der globalen Masse in Abbildung 5.5, durch die Einführung der STE-Parameterisierung eine bessere Übereinstimmung mit den Beobachtungen. So liegt der Maximalwert in den Beobachtungen bei  $\tau=0.475$  bzw., mit einer Korrektur um 36%, bei  $\tau=0.35$  im August und bei  $\tau=0.33$  bzw. bei  $\tau=0.25$  im November. Für das Experiment a) ohne STE-Parameterisierung liegen die maximale optische Dicke im August bei  $\tau=0.23$  und bei  $\tau=0.125$  im November, für das Experiment d) dagegen betragen die optischen Dicken  $\tau=0.35$  bzw.  $\tau=0.175$  und stimmen damit in den ersten Monaten gut mit den Messungen überein. Die Maximalwerte der optischen Dicke für die um 2 Gitterpunkte weiter südlich initialisierten Simulationen c) und e) fallen im Vergleich zu b) und d) schneller ab. So besitzt z.B. die maximale optische Dicke für das Experiment e) im August einen Wert von  $\tau=0.35$  entsprechend dem vom Experiment d). Im Januar ist jedoch für e) die optische Dicke mit  $\tau=0.15$  um 0.025 geringer als bei d) mit  $\tau=0.175$ . Grund dafür ist, daß bei den Experimenten c) und e) mehr Transport in die südliche Hemisphäre stattfindet und somit die optische Dicke in der Südhemisphäre größer ist als bei b) und d). Das lokale Maximum auf der Südhemisphäre in den Beobachtungen zwischen September und März kommt von dem Ausbruch des Cerro Hudson im August 1991. Da der Cerro Hudson jedoch bei der Modellierung nicht mitberücksichtigt wurde, ist das Fehlen des lokalen südlichen Minimums in den Simulationsergebnissen erklärlich. Der in den Beobachtungen stark ausgeprägte Gradient bei  $20^\circ$  S erscheint in den Simulationen ein wenig schwächer.

Betrachtet man die geographische Lage des tropischen Maximums in dem ersten halben Jahr nach dem Ausbruch des Pinatubo, so liegt es in den Satellitenbeobachtungen südlich vom Äquator bei  $10^\circ$  S. In den Modellsimulationen a) – e) dagegen befindet sich das Maximum der optischen Dicke nördlich vom Äquator zwischen  $0^\circ$ – $20^\circ$  N. Abbildung 5.6 spiegelt damit die schon in Abbildung 5.2 bei der anfänglichen Verteilung des Pinatuboaerosols auf Grund des nicht simulierten Transports über den Äquator hinweg aufgetretenden geographischen Unterschiede wider. Die tropischen Maxima in den beiden Experimenten c) und e), die um  $7.5^\circ$  südlicher initialisiert worden sind, um diesen Transport mit zu berücksichtigen, liegen zwar um  $5^\circ$  weiter südlich, jedoch befinden sich auch ihre Maxima noch in der nördlichen Hemisphäre.

Die Verschiebung des Aerosolmaximums in den fünf Simulationen gegenüber der Beobachtung um  $20^\circ$  nach Norden, läßt sich durch die fehlende interaktive Koppelung der modellierten Aerosolwolke mit dem Strahlungsschema erklären. In zwei Experimenten mit und ohne Rückkopplung, die Young et al. (1994) mit einem mechanistischen Modell durchführten, zeigte sich der Unterschied in der geographischen Verteilung der optischen Dicke nach 60 Tagen Simulation, siehe Abbildung 5.7. Im Experiment ohne Strahlungsrückkopplung liegt das Maximum wie in den ECHAM-Simulationen um  $10^\circ$  N, in der interaktiven Version dagegen entspricht die geographische Lage der optischen Dicke wesentlich eher den Beobachtungen. Ursache für den erheblichen Unterschied ist die in der interaktiven Version durch die erhöhte Aerosolkonzentration hervorgerufene lokale

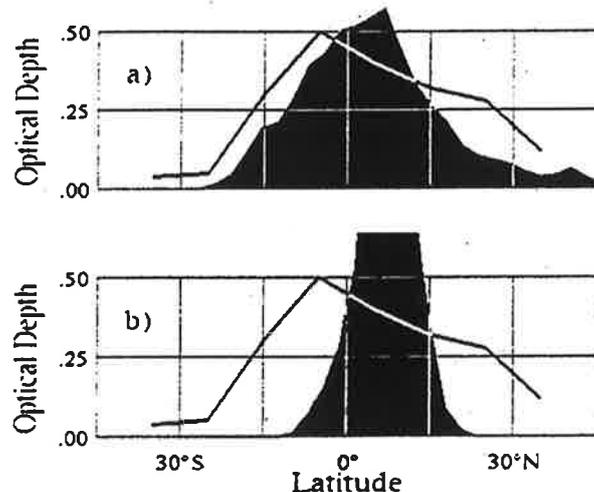


Abbildung 5.7: Vergleich der geographischen Verteilung der optischen Dicke (schwarze Fläche) zwischen a) interaktiver Simulation und b) nicht interaktiver Simulation aus Young et al. (1994). Die Kurve kennzeichnet AVHRR-Beobachtungen.

Heizung, und damit verbunden ein über den Äquator reichender Transport zwischen den Tagen 6 und 12 nach dem Ausbruch.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen AVHRR-Beobachtungen und den Modellsimulationen ist nicht nur die anfängliche geographische Lage, sondern auch die Dauer des tropischen Maximums und die Verschiebung des Maximums in die nördlichen Breiten. Für das Experiment a) ohne STE-Parameterisierung verschiebt sich das Maximum Mitte Oktober von den Subtropen in die nördlichen Breiten, bei den Experimenten mit STE-Parameterisierung zwischen November und Dezember. Bei den Experimenten c) und e) ist gegenüber den Experimenten b) und d) der meridionale Transport um ungefähr einen Monat verzögert. AVHRR-Beobachtungen liegen nur zwischen 70° N und 70° S vor, und für den Herbst 1991 existieren unglücklicherweise keine Daten polwärts von 30° N. In-Situ Messungen von Flugzeugen und Lidarstationen zeigen jedoch, daß die Pinatubowolke schon im Herbst die hohen Breiten erreicht hat. Wie Messungen während der EASOE<sup>14</sup> Kampagne zeigten, konnten die innerhalb des polaren Vortex gelegenen Stationen Pinatuboaerosol unterhalb einer isentropen Fläche von 450 K (19 km) messen. Oberhalb von 450 K blieb die Aerosolkonzentration dagegen bis zu einem starken 'minor warming' gering (Neuber et al., 1994). Korrigierte SAGE II-Beobachtungen der stratosphärischen optischen Dicke für einen Wellenlängenbereich von  $\lambda = 0.525 \mu\text{m}$  (Russel et al., 1996) zeigen ab Dezember 1991 bis Mai 1992 ein zweites lokales Maximum zwischen 30° N und 60° N mit Werten in der Größenordnung von  $0.19 \leq \tau \leq 0.2$  und damit nur wenig geringer als die Größenordnung des tropischen Maximums mit  $0.19 \leq \tau \leq 0.22$ . Die Modellergebnisse liegen somit für die mittleren nördlichen Breiten in dem beobachteten Bereich. Im Gegensatz zu den Beobachtungen bildet sich jedoch bei den Simulationen kein zweites lokales nördliches Maximum aus, sondern das tropische Maximum verlagert sich nordwärts. AVHRR, SAGE und andere Satellitenbeobachtungen zeigen jedoch, daß das tropische Aerosolmaximum bis in den

<sup>14</sup>EASOE: European Arctic Stratospheric Ozone Experiment

Sommer 1992 persistent war.

Um den raschen Abfall des tropischen Maximums der optischen Dicke, der mit einem starken meridionalen Transport nach Norden verbunden ist, zu verstehen, werden in Abbildung 5.8 anhand der Extinktion Meridionalschnitte des Experimentes d) 3, 6, 9 und 12 Monate nach der Eruption mit Beobachtungen verglichen. Die Extinktion  $E_\nu$  in [1/m] ist proportional zur Aerosolkonzentration  $\rho_m$

$$E_\nu(z) = \tilde{E}_\nu(z) \rho_m \quad (5.5)$$

mit  $\tilde{E}_\nu$  dem spektralen Massen-Extinktionskoeffizienten in [m<sup>2</sup>/g].

Die beobachteten Extinktionen sind von Stenchikov et al. (1997) aus SAGE-Daten und UARS<sup>15</sup>-Beobachtungen für den Wellenlängenbereich von 0.68  $\mu\text{m}$ –4  $\mu\text{m}$  erstellt worden. Es ist dabei im folgenden zu beachten, daß diese Extinktionsdaten auf die vertikale Auflösung des ECHAM4-L19-Modells gebracht worden sind. Sie sind dadurch besonders in der obersten Modellschicht mit Unsicherheiten behaftet, da versucht worden ist, die gesamte Menge des beobachteten Pinatuboaerosols im Modellgebiet unterzubringen.

Die aus der Modellsimulation ermittelte Aerosolkonzentration in [g/m<sup>3</sup>] ist mit einem über den entsprechenden solaren Wellenlängenbereich gemittelten Massen-Extinktionskoeffizienten multipliziert worden.

Betrachtet man zunächst die Höhenschnitte im September, also 3 Monate nach der Eruption, so weisen die beobachtete Extinktion und die Modellergebnisse zunächst eine gute Übereinstimmung auf. Bei einer näheren Betrachtung zeigt sich jedoch, daß nicht nur das Maximum der Aerosolwolke um ungefähr 20° zu weit nördlich liegt, siehe auch Abbildung 5.6, sondern, daß sich auch das Maximum gegenüber den Beobachtungen in der Vertikalen verschoben hat. Liegt die Extinktion mit Werten größer 100 · 10<sup>-4</sup> km<sup>-1</sup> in den Beobachtungen zwischen der 30 hPa- und der 50 hPa-Fläche, so befinden sich die simulierten Extinktionen im Bereich zwischen 40 hPa und 100 hPa. Nach einem halben Jahr zeigen sich schon deutliche Unterschiede zwischen der Modellsimulation und der Beobachtung. So hat sich das Maximum um weitere 30° zwischen 30° N – 60° N verschoben und liegt zwischen 70 hPa und 140 hPa noch tiefer als im September. Auch die Extinktionswerte sind dabei wesentlich geringer als in den Beobachtungen. In den von Stenchikov et al. (1997) aus Beobachtungen zusammengestellten Extinktionen ist im Dezember noch deutlich das Maximum über den Tropen zu erkennen, wobei auch hier, wie bei dem Vergleich der optischen Dicke, die von Lidarstationen gemessenen Aerosolkonzentration nördlich von 60° nicht berücksichtigt worden sind. Im März und im Juni zeigen die beobachteten Extinktionen neben dem tropischen Maximum ein weiteres Maximum zwischen 30° N und 60° N, welches jedoch tiefer als das tropische liegt. Die schon im Dezember sehr deutlichen Unterschiede zwischen Simulation und Beobachtungen werden mit zunehmender Integrationsdauer immer stärker, so daß sich nach einem dreiviertel Jahr Simulation nicht nur das Maximum erneut um weitere 30° zwischen 60° N – 90° N verschoben hat, sondern auch im Vergleich zum Dezember noch wesentlich tiefer, zwischen der 100 hPa- und der 200 hPa-Fläche, liegt.

Neben einem starken nordwärts gerichteten meridionalen Transport in die nördlichen mittleren und hohen Breiten ist auch ein starker abwärts gerichteter vertikaler Trans-

---

<sup>15</sup>UARS: Upper Atmospheric Research Satellite

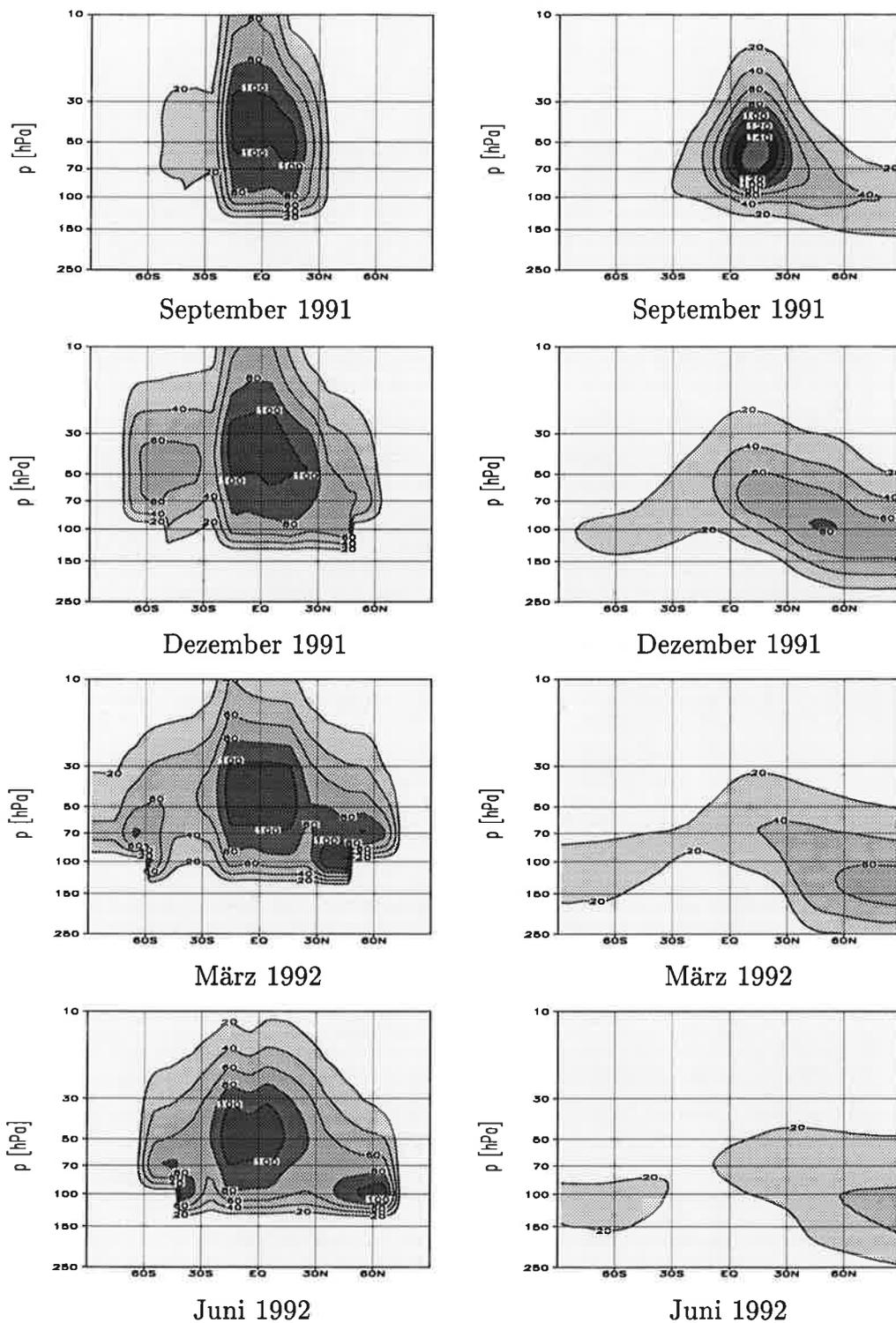


Abbildung 5.8: Vergleich von beobachteter Extinktion [ $10^{-4} \text{ km}^{-1}$ ] nach Stenchikov et al. (1997) für einen Wellenlängenbereich von  $0.68 \mu\text{m}$  bis  $4.0 \mu\text{m}$  (links) mit ECHAM4-Simulationen (rechts).

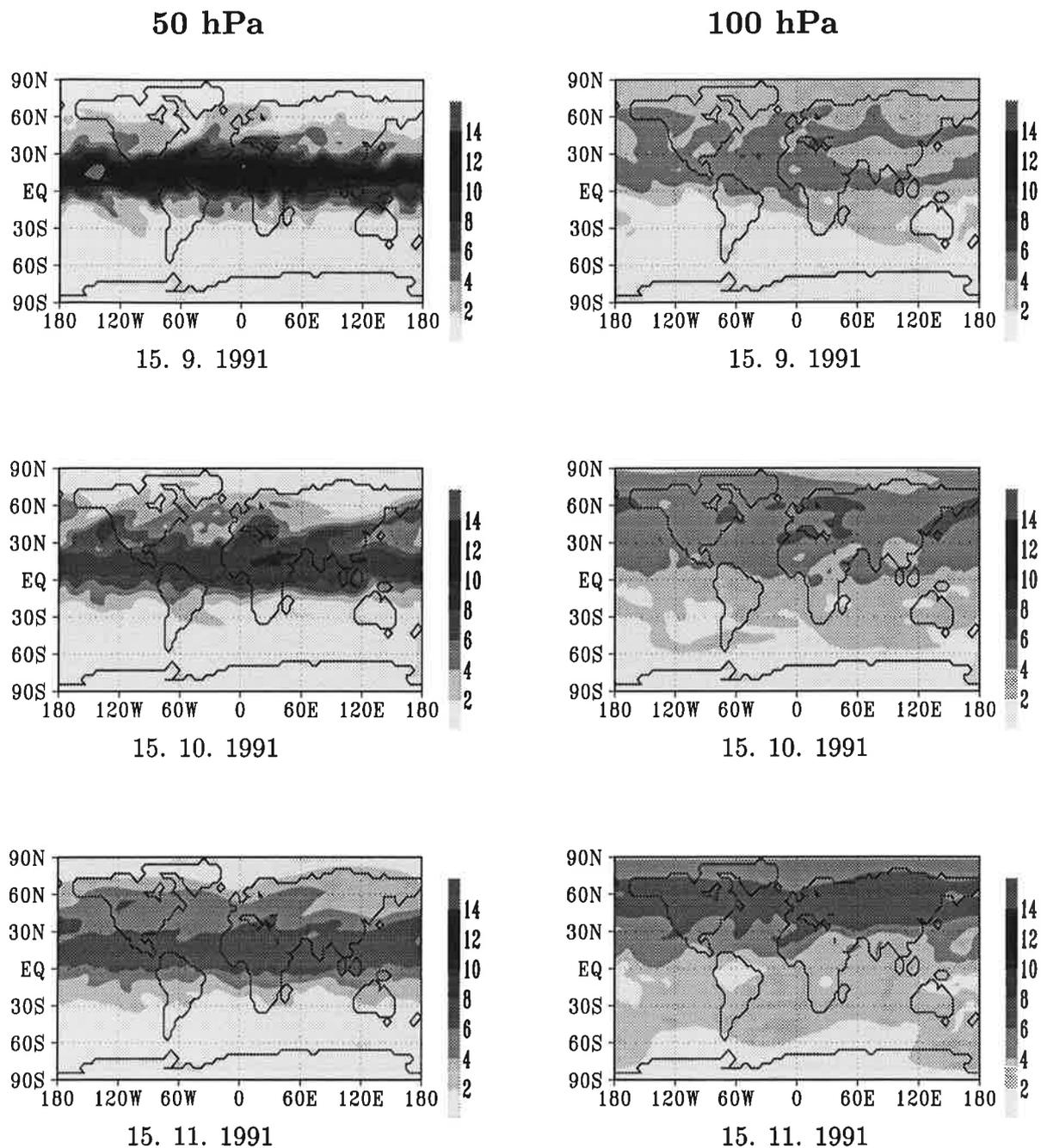


Abbildung 5.9: Geographische Verteilung der modellierten Aerosolkonzentrationen in  $[g/cm^3]$  für den Herbst 1991

port zu erkennen. So liegt nicht nur das tropische Maximum der simulierten Wolke niedriger als in dem aus Beobachtungen zusammengestellten Datensatz von Stenchikov et al. (1997), sondern die Höhe der maximalen Aerosolladung verschiebt sich mit zunehmender Integrationsdauer. Ein weiterer Unterschied zwischen Beobachtungen und Simulation ist, daß die beobachteten Extinktionen über die ganzen 12 Monate bis hin zu einer Höhe von 10 hPa reichen, die Höhe des oberen Randes der simulierten Wolke jedoch wesentlich niedriger liegt, und im Verlauf der Simulation immer weiter sinkt. Ein

bei den bisherigen Betrachtungen noch nicht berücksichtigter Punkt ist die Tatsache, daß das ECHAM4 in der 19-Schichtenversion nur bis 30 km hoch reicht, wobei die oberste Schicht als Grenzschicht angesehen werden muß. Die stratosphärische Zirkulation in ECHAM4-L19 kann damit nur äußerst grob und vereinfacht repräsentiert werden.

Die Existenz zweier lokaler Maxima in den Beobachtungen zwischen 30 hPa und 70 hPa in den Tropen und zwischen 70 hPa und 120 hPa zwischen 30° N und 60° N deutet auf zwei getrennte Transportregimes hin. Nach Trepte und Hitchman (1992) existiert ein oberes Transportregime, verbunden mit einem tropischem Reservoir zwischen 20° S und 20° N, wo Tracerkonzentration mehrere Jahre bestehen können, und ein unteres, wo ein schneller meridionaler polwärtiger Transport stattfindet. Das obere tropische Aerosolreservoir bildet sich dabei durch die Existenz einer subtropischen Transportbarriere entlang von isentropen Flächen aus und ist besonders in der östlichen Phase der QBO stabil. Analysen der SAGE II-Beobachtungen von Trepte et al. (1993) und Flugzeugmessungen von Jonsson et al. (1996) zeigen, daß diese zwei verschiedenen Transportregimes auch in dem Winter 1991/1992 beobachtet worden sind. Der starke meridionale Transport in dem ECHAM4 kann somit als Folge des starken vertikalen Transports betrachtet werden, da, wenn das Aerosol in das untere Transportregime herab sinkt, es wesentlich schneller nach Norden transportiert werden kann.

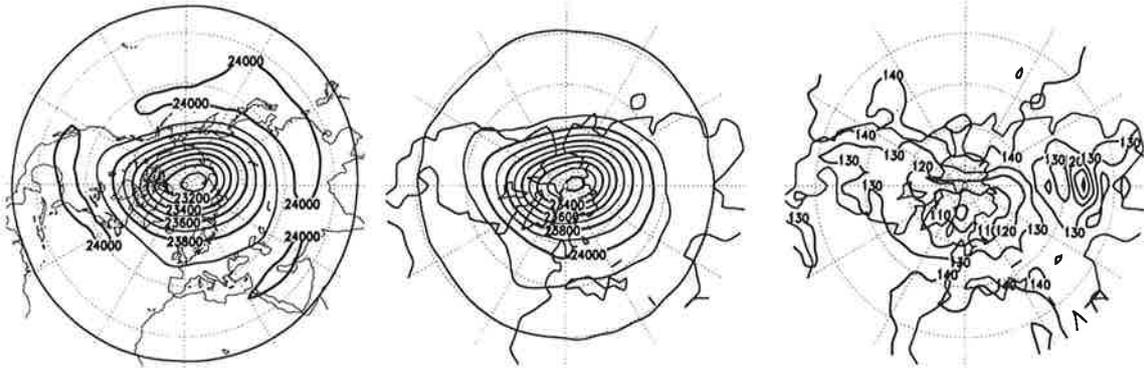
Große Unterschiede zwischen Modellsimulationen und Beobachtungen sind dabei in Abbildung 5.6 und 5.8 ab Herbst 1991 zu beobachten, wenn sich das Maximum der Pinatubowolke aus den Tropen in die mittleren Breiten verschiebt. In Abbildung 5.9 ist ein Vergleich der Aerosolkonzentrationen in  $[g/cm^3]$  für die Monate September, Oktober und November auf der 50 hPa- und der 100 hPa-Fläche dargestellt. Mitte September liegt das Maximum der Sulfatkonzentration auf der 50 hPa-Fläche in einem Band zwischen dem Äquator und 30° N. Auf der 100 hPa-Fläche ist dieses Band mit der höchsten Aerosolkonzentration nicht mehr so geschlossen, sondern es sind Zungen hoher Aerosolkonzentration in die nördlichen mittleren und hohen Breiten zu beobachten. So ist z.B. Transport von Pinatuboaerosol in die mittleren Breiten an der Rückseite des über dem tibetischen Hochland gelegenen und mit dem asiatischen Monsun verbunden antizyklonalen Systems zu erkennen. Über dem Atlantik und an der nordamerikanischen Westküste ist ebenfalls ein starker meridionaler Transport zu beobachten. Mitte Oktober hat sich auf der 100 hPa-Fläche das Aerosol gleichmäßig zwischen dem Äquator und dem Pol verteilt, lokal auftretende Minima und Maxima hängen mit synoptischen Prozessen und Gebieten mit starkem vertikalen Austausch zusammen. Auf der 50 hPa-Fläche ist das Maximum in der Aerosolkonzentration in den Tropen persistent. Auf Grund der Umstellung von Sommer auf Winterzirkulation und damit verbundenen höheren meridionalen und zonalen Windgeschwindigkeiten, ist jedoch ein verstärkter polwärtiger meridionaler Transport gegenüber Mitte September festzustellen. Mitte November ist auf der 50 hPa-Fläche eine Abstufung in der Aerosolkonzentration von den Subtropen über die mittleren bis zu den hohen Breiten zu erkennen. Die 100 hPa-Fläche zeigt dagegen eine völlig andere Struktur in der Verteilung des simulierten Pinatuboaerosols mit einem Band hoher Konzentration zwischen 40° N – 70° N und um die Hälfte geringeren Konzentrationen um den Äquator. Ein weiterer Unterschied liegt neben der globalen Verteilung des Pinatuboaerosols in der Höhe der Konzentration. Während die

Aerosolkonzentration auf der 50 hPa-Fläche immer geringer wird, nimmt sie auf der 100 hPa-Fläche zu, was auf einen starken vertikalen Transport aus den oberen Schichten schließen läßt. Abbildung 5.9 zeigt damit einen deutlichen Unterschied zwischen der 50 hPa- und der 100 hPa-Fläche und die Existenz zweier unterschiedlicher Transportregime in den Modellsimulationen. Ein Defizit des ECHAM4-Modells ist, daß es in der polaren oberen Troposphäre und in der unteren Stratosphäre zu kalt ist ('cold bias'). Die Existenz des dabei auftretenden starken meridionalen Temperaturgradienten führt in der unteren Stratosphäre zu starken Abweichungen des zonalen Windes oberhalb 200 hPa (Roeckner et al., 1996). Für die Pinatubosimulationen wurden jedoch die beobachteten Winde assimiliert, siehe 5.2.1, so daß eine Verbesserung gegenüber dem Klimamode zu erwarten ist. In den Herbstmonaten findet eine Umstellung der Sommer- auf die Winterzirkulation statt, die mit einer stärkeren planetaren Wellenaktivität verbunden ist. Abbildung 5.10 zeigt daher einen Vergleich der monatlich gemittelten geopotentiellen Höhe im Oktober 1991 für die Nordhemisphäre zwischen ECMWF-Analysedaten und der assimilierten ECHAM4-Simulation. Die geopotentielle Höhe zeigt für die 100 hPa- und für die 50 hPa-Fläche keine großen Unterschiede zwischen Modellergebnissen und Analysen. Die Unterschiede auf der 30 hPa Fläche sind geringfügig größer, da sie durch Grenzbedingungen beeinträchtigt wird. Die Übereinstimmung mit den Analysen ist somit sehr gut. Ein Vergleich der ECHAM4-Simulationen mit Analysedaten der FU Berlin (Labitzke und Gruppe) zeigte ähnliche Ergebnisse. Abbildung 5.10 zeigt somit nicht nur, wie gut durch die verwendete Assimilationstechnik die meteorologische Situation im Herbst 1991/1992 wiedergegeben wird, sondern auch, daß der starke meridionale Transport im Modell nicht das Ergebnis zu hoher Windgeschwindigkeiten ist.

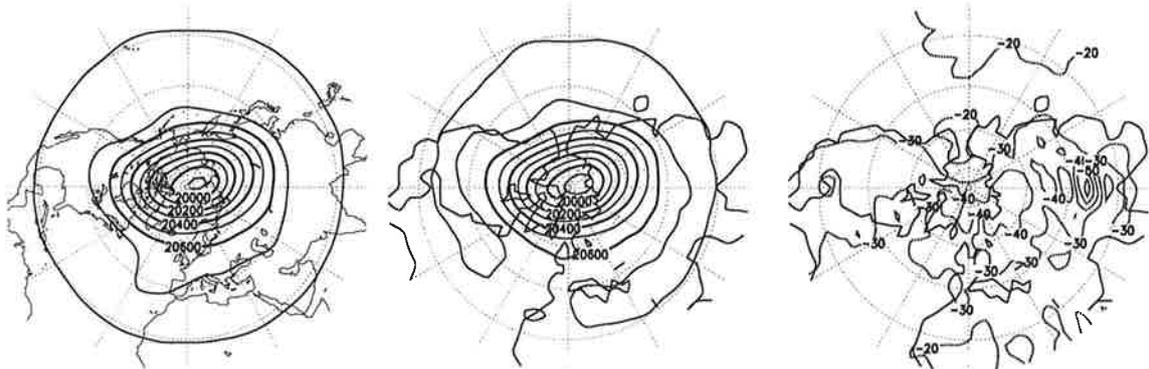
Ein entscheidender Faktor für den starken vertikalen und meridionalen Transport des troposphärischen Aerosolmaximums könnte in der fehlenden Rückkopplung von Aerosol und Strahlung liegen. Die durch die lokale Heizung hervorgerufene Aufwärtsbewegung wirkt dem schnellen vertikalen Abwärtstransport entgegen. Das fehlende vertikale Lofting, die stark vereinfachte stratosphärische Zirkulation und die Modellobergrenze von 10 hPa sorgen dafür, daß sich das Aerosol nur horizontal und vertikal nur abwärts ausbreiten kann. Es fehlt daher in den ECHAM4-Simulationen die Ausbildung des tropischen Aerosolreservoirs, so daß im wesentlichen der Transport des Pinatuboaerosol im unteren Transportregime simuliert wird. Statt einer Ausbildung zweier Maxima ist in den Simulationen somit eine generelle Verschiebung des tropischen Aerosolmaximums gegenüber den Beobachtungen zu erkennen. Die meridionale Verschiebung des tropischen Aerosolmaximums in die mittleren nördlichen Breiten erklärt den raschen Abfall in der globalen Massenladung bei den Simulationen mit STE-Parameterisierung im Vergleich zu Beobachtungen in Abbildung 5.5, da in den mittleren Breiten der wesentliche Teil des Stratosphären-Troposphären-Austausches stattfindet.

Zusammenfassend zeigt sich, daß die ECHAM4-Simulationen mit STE-Parameterisierung die globale Ausbreitung der Pinatubowolke in der nördlichen Hemisphäre im ersten halben Jahr nach Beginn der Eruption gut wiedergeben. Ab Herbst 1991 zeigen sich Unterschiede, die mit zunehmender Integrationsdauer stärker werden. In der südlichen Hemisphäre macht sich in den Modellsimulationen der fehlende, über den Äquator hinweggehende Transport in der Anfangsphase der Pinatuboepisode sowie eine Überlagerung

### 30 hPa



### 50 hPa



### 100 hPa

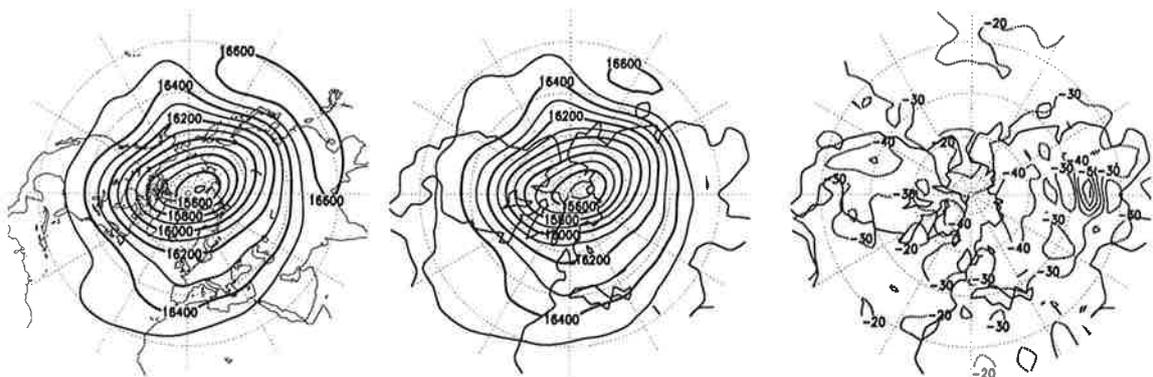


Abbildung 5.10: Vergleich der monatlich gemittelten geopotentiellen Höhe in [gpm] für Oktober zwischen ECMWF-Analysen (rechts) und assimilierten ECHAM4-Simulationen (Mitte). Die Differenzen Modell minus Analyse sind in der linken Spalte dargestellt.

durch das vom Cerro Hudson stammende Aerosol, welches im Modell nicht berücksichtigt ist, bemerkbar. Die Unterschiede in dem Transport des Pinatuboaerosols liegen vor allem an der kaum modellierten residualen Zirkulation und an der fehlenden Rückkoppelung mit dem Strahlungsmodell, und können somit nur mit interaktiven Simulationen unter Verwendung der vertikal höherreichenden Version des ECHAM4-Modells ECHAM4-L39 behoben werden.

### 5.3.4 Vergleich mit stationären Beobachtungen

Im vorhergegangenen Abschnitt hat sich gezeigt, daß die Modellsimulationen in den ersten Monaten die Beobachtungen aus den mittleren nördlichen Breiten gut wiedergeben. Es soll daher im folgenden untersucht werden, inwieweit sich die Simulationsergebnisse mit stationären Beobachtungen aus den mittleren Breiten der Nordhemisphäre vergleichen lassen.

In Abbildung 5.11 ist ein Vergleich der simulierten Säulenmassendaten  $\text{H}_2\text{SO}_4$  [ $\text{g}/\text{m}^2$ ] für die Experimente d) und e), siehe Tabelle 5.1, mit Lidarbeobachtungen von drei verschiedenen Stationen (Jäger et al., 1995) dargestellt. Die drei Stationen liegen in einem Abstand von  $10^\circ$  und überdecken den Bereich der Subtropen und der mittleren Breiten in der Nordhemisphäre. Die gemessenen Säulenmassendaten sind von der Tropopausenhöhe bis zur obersten Schicht integriert, die Simulationsdaten bilden das Integral über die oberen 7 Modellschichten.

Es zeigt sich dabei deutlich, daß die Simulationen d) und e) mit einer Reduzierung des advektiven vertikalen Transports um 75% die beobachteten Säulenmassendaten im ersten halben Jahr nach dem Ausbruch des Pinatubo und im Sommer 1992 recht gut wiedergeben, wobei jedoch deutliche Unterschiede zwischen den Experimenten d) und e) zu erkennen sind. So liegen die Ergebnisse für das Experiment d) in den ersten 7–8 Monaten nach der Pinatuboeruption im Bereich der Beobachtungen von Naha  $26.2^\circ$  N, wobei sie nicht nur die Größenordnungen der Werte sondern auch ihren zeitlichen Verlauf treffen. Die Säulenmasse des Aerosols ist dabei in den ersten Monaten in den Subtropen in den Simulationen wie in den Beobachtungen mit Werten um  $5 \text{ g}/\text{m}^2$  nahezu konstant. Die Ergebnisse des gegenüber d) um  $7.5^\circ$  weiter südlich initialisierten Experimentes e) erreichen diesen Wert erst mit 2 Monaten Verzögerungen. Bei den Lidarstationen Tsukuba und Garmisch in den mittleren nördlichen Breiten steigt die Säulenmassendichte in den ersten Monaten, sowohl in den Beobachtungen wie auch in den Simulationen, im Gegensatz zu den Subtropen an. Diese zeitliche Verschiebung zwischen Modellexperiment und Beobachtung läßt sich durch den schon im vorhergehenden Abschnitt diskutierten zu starken meridionalen Transport in dem Zirkulationsmodell erklären. Für die mittleren Breiten liegen die simulierten Säulenmassen aus Experiment e) näher an den Lidarbeobachtungen als die von Experiment d), da in e) der meridionale nordwärts gerichtete Transport gegenüber d) verzögert ist, siehe auch Abbildung 5.6. Auf Grund des polwärtigen Transports erreicht dabei die simulierte Säulenmasse zuerst ihren maximalen Wert in  $36^\circ$  N und dann einen Monat später in  $47.5^\circ$  N. Dies entspricht auch den Beobachtungen, allerdings werden die Maximalwerte zwei Monate später gemessen.

Während in den Beobachtungen nach dem siebenten Monat bei allen Stationen ein weiterer Anstieg in der Säulenmasse zu verzeichnen ist, fällt die simulierte Säulenmasse

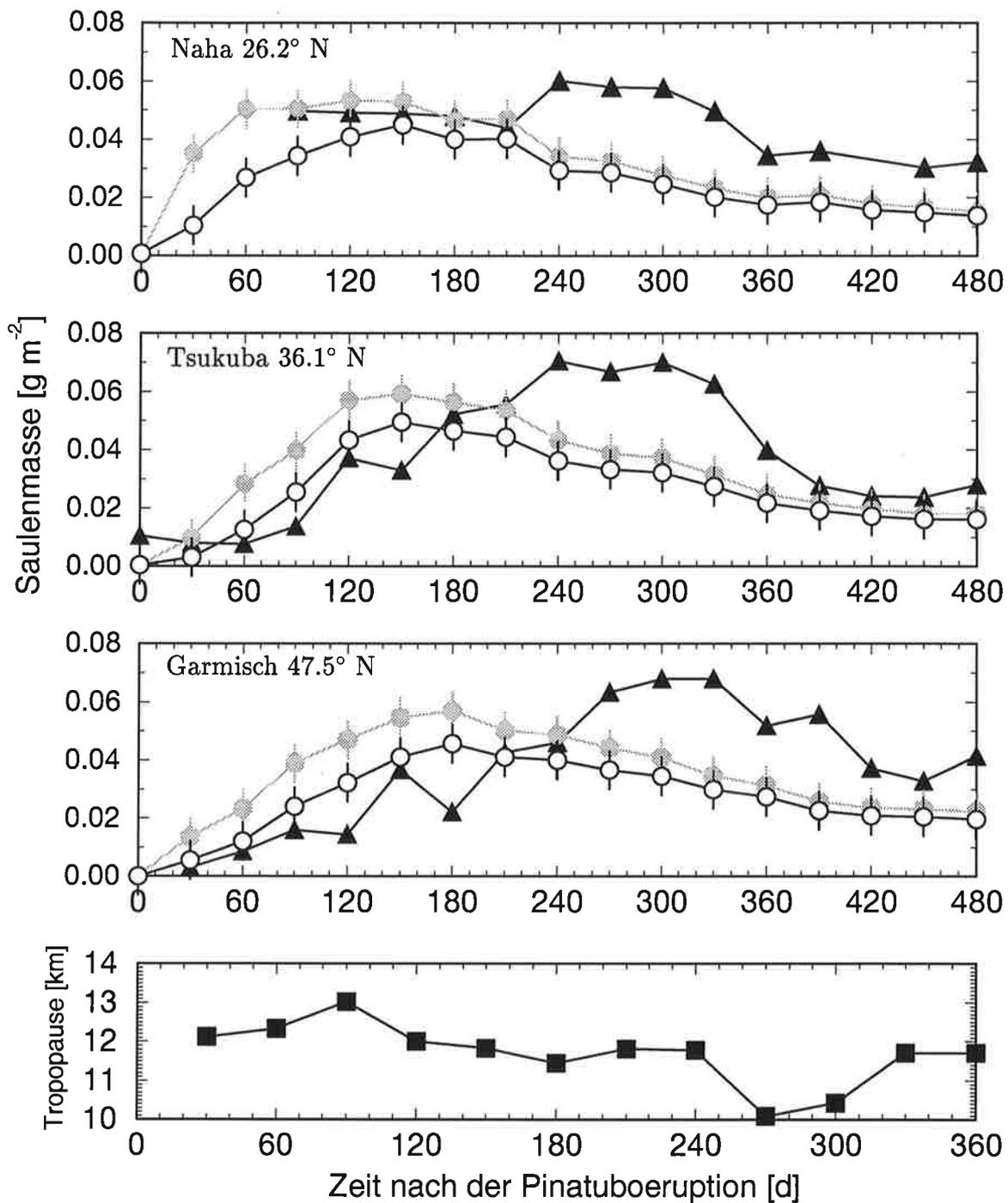


Abbildung 5.11: Vergleich zwischen monatlich gemittelten Säulenmassendaten von Lidarbeobachtungen (Dreiecke) für drei verschiedene Stationen (Jäger et al., 1995) und ECHAM4-Simulationen, wobei die grauen Kreise Fall d) und die hellen Kreise Fall e) entsprechen. Die untere Abbildung zeigt die Tropausenhöhe von Garmisch zum Vergleich.

stetig ab. 12 Monate nach der Eruption liegen Simulationen und Beobachtungen wieder in derselben Größenordnung. Bei der Interpretation der gemessenen Säulenmassendaten müssen die saisonalen Schwankungen in der Tropopausenhöhe mit berücksichtigt werden, die sich in den Beobachtungen widerspiegeln. Ist die Tropopause relativ niedrig, so wird wesentlich mehr Aerosol vom Lidar detektiert als bei einer hohen Tropopause. Desweiteren besteht die Möglichkeit, bei einer niedrigen Tropopause nicht nur stratosphärisches, sondern auch troposphärisches Aerosol zu messen. Die saisonalen Schwankungen der Tropopausenhöhe an der japanischen Station Tsukuba sind sehr stark ausgeprägt mit Höhen von 7 km–11 km im Winter und 14 km –17 km im Sommer (Jäger et al., 1995). So zeigt sich für Tsukuba in den nach dem Pinatuboausbruch gemessenen Säulenmassendaten des stratosphärischen Aerosols im Frühjahr 1992 ein starker Abfall, ein Minimum im Sommer und ein erneuter Anstieg im Herbst. Die simulierten Werte für den Sommer liegen dabei mit Werten um  $0.03 \text{ g/m}^2$  in guter Übereinstimmung mit den Beobachtungen. Auch bei den Lidardaten aus Garmisch sind die durch die Variation in der Tropopausenhöhe verursachten saisonalen Schwankungen in der Aerosolkonzentration zu beobachten. So sieht man in Abbildung 5.11 für Garmisch für die Monate 9 und 10 nach der Eruption des Pinatubo deutlich ein Ansteigen in der Säulenmasse von  $0.04 \text{ g/m}^2$  auf  $0.06 \text{ g/m}^2$  und ein gleichzeitiges Absinken der Tropopausenhöhe von 12 km auf 10 km. Es muß dabei beachtet werden, daß die Säulenmassendaten und die Tropopausenhöhen monatlich gemittelt sind, so daß keine direkte Korrelation möglich ist. Auf Grund der groben vertikalen Auflösung kann das Zirkulationsmodell die durch die saisonale Variabilität der Tropopausenhöhe hervorgerufenen Veränderungen nicht wiedergeben. Da der Vergleich der Säulenmassendaten in Abbildung 5.11 durch die saisonalen Schwankungen in der Tropopausenhöhe stark beeinträchtigt wird, ist es vorteilhaft, Simulationsergebnisse und Beobachtungen in bestimmten Höhen zu vergleichen. Abbildung 5.12 zeigt einen Vergleich der simulierten Aerosolkonzentrationen in  $[\mu\text{g/m}^3]$  des Experimentes e) mit Beobachtungen. Für die Beobachtungen wurden zum einen Raman–Lidarmessungen von Geesthacht ( $53.3^\circ \text{ N}$ ) verwendet (Ansmann et al., 1993; Wandinger et al., 1995) und zum anderen Ballonmessungen mit Teilchendetektoren aus Laramie ( $41.2^\circ \text{ N}$ ) (Deshler et al., 1992a; Deshler et al., 1993).

Bei der Betrachtung von Abbildung 5.12 fällt zunächst auf, daß die Simulationen mit den Teilchenmessungen aus Laramie sehr gut übereinstimmen. Die in Laramie im Juli 1992 beobachtete sehr hohe Aerosolkonzentration in den unteren Schichten entstammt wahrscheinlich einer der vorhergehenden Eruptionen. Sie ist in den Modellsimulationen nicht berücksichtigt. In dem ersten halben Jahr nach dem Ausbruch liegen die modellierten Aerosolkonzentrationen in der Schicht zwischen 12 km und 16 km, und in der Schicht zwischen 16 km und 20 km höher als die Beobachtungen aus Laramie, während sie in der Schicht zwischen 20 km und 24 km zu niedrig scheint. Grund dafür ist der zu starke vertikale und der damit verbundene meridionale Transport in dem Modell. Generell liegen jedoch die simulierten Aerosolkonzentrationen für  $41.2^\circ \text{ N}$  in dem beobachteten Bereich.

Bei dem Vergleich der Simulationsergebnisse für  $53.3^\circ \text{ N}$  mit Lidarbeobachtungen aus Geesthacht zeigen sich jedoch deutliche Unterschiede. So liegen die modellierten Aerosolkonzentrationen für die drei in Abbildung 5.12 dargestellten Höhenbereiche, nach der

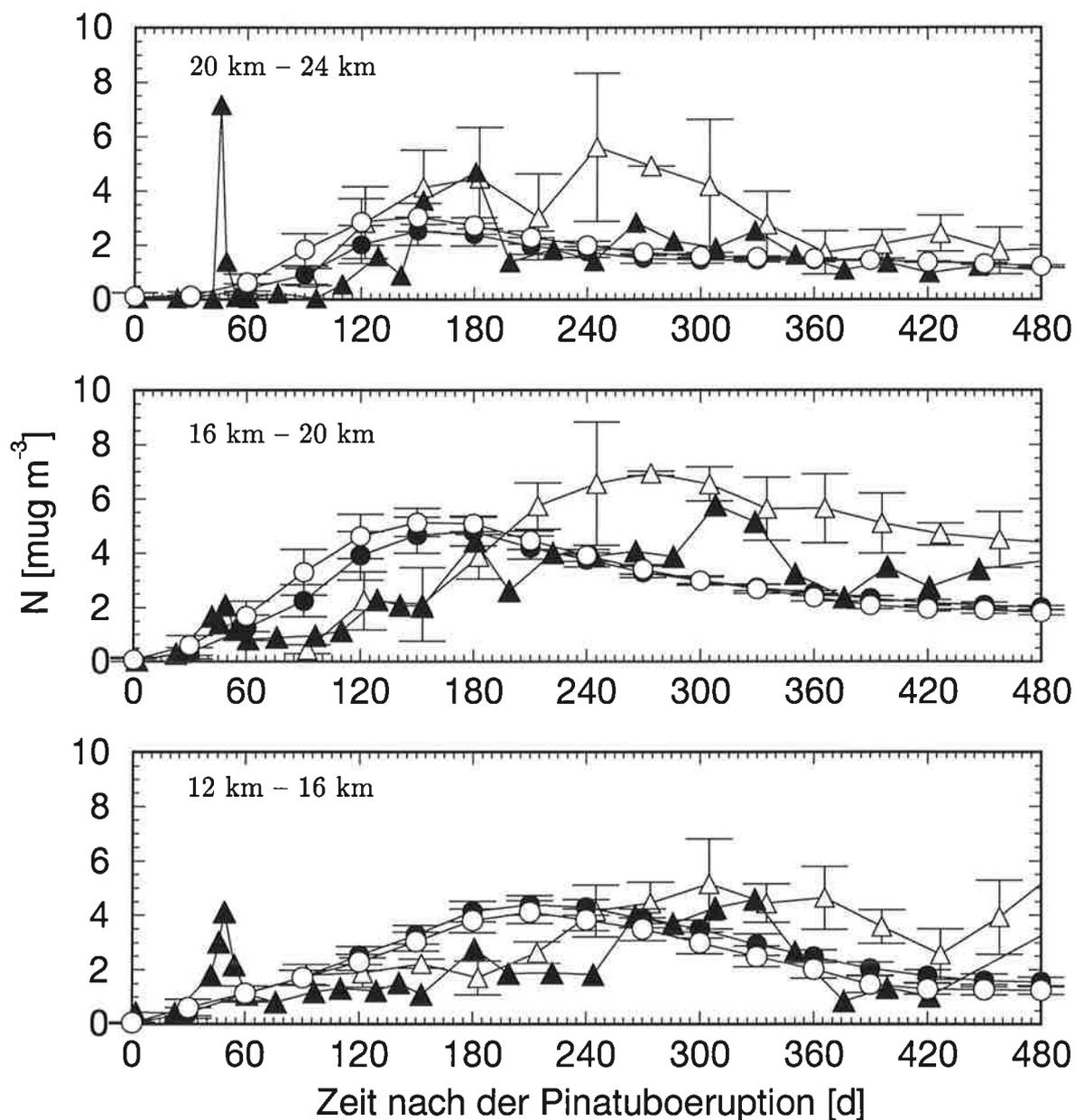


Abbildung 5.12: Zeitreihe der Aerosolkonzentration in  $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ . Die schwarzen Dreiecke bezeichnen Lidarmessungen von Geesthacht ( $53.3^\circ\text{N}$ ), die weißen stehen für Ballonmessungen von Laramie ( $41.^\circ\text{N}$ ). Die Kreise kennzeichnen ECHAM4-Simulationen des Experimentes e), wobei die schwarzen Kreise das zonale Mittel für  $40^\circ\text{N}$  und die weißen Kreise das für  $50^\circ\text{N}$  repräsentieren.

anfänglichen Überschätzung durch den zu starken meridionalen Transport, im Vergleich zu den Beobachtungen zu niedrig. Betrachtet man die zonal gemittelten Aerosolkonzentrationen aus den Simulationen, so ist zwischen den Ergebnissen für  $53.3^\circ$  N und für  $41.2^\circ$  N kein Unterschied festzustellen. Die Beobachtungen zwischen  $41.2^\circ$  N und  $53.3^\circ$  N unterscheiden sich jedoch deutlich dadurch, daß die Ballonmessungen aus Laramie niedriger liegen als die Geesthachter Daten. Ursache für den Unterschied zwischen den beiden Beobachtungen könnten nach Mattis (1996) wesentlich stärkere Austauschprozesse in dem Bereich zwischen  $15^\circ$  N und  $45^\circ$  N sein, wie sie in Trepte et al. (1994) beschrieben sind. Trepte et al. (1994) beschrieben eine Bandenstruktur für das stratosphärische Aerosol mit maximalen optischen Dicken in den Tropen und in den hohen Breiten, und ein durch starke abwärtsgerichtete vertikale Austauschprozesse hervorgerufenen Minimum zwischen  $15^\circ$  und  $45^\circ$ . Die in den Tropen hochreichende Konvektion ist dabei für den Eintrag von Aerosolvorläufergasen in die Stratosphäre und damit für die Ausbildung des Maximums über den Tropen verantwortlich. Da der Transport in der Stratosphäre entlang von isentropen Flächen verläuft, nimmt die Aerosolkonzentration durch Kompression in hohen Breiten zu, wodurch sich das Maximum in hohen Breiten erklären läßt.

Satellitenbeobachtungen zeigten, daß sich die Bandenstruktur ein Jahr nach dem Ausbruch des Mt. Pinatubo wieder eingestellt hat, in den ECHAM-Simulationen ist dagegen diese Bandenstruktur in der Aerosolkonzentration nicht zu finden. Sie zeigen eine homogene Verteilung zwischen  $30^\circ$  N und  $60^\circ$  N, siehe auch Abbildung 5.6 und 5.8. Die durch die homogene Verteilung des Aerosols verursachten Unterschiede zeigen sich auch in Abbildung 5.11, wo die Säulenmassendaten mit den Lidarmessungen von Tsukuba bei  $36.1^\circ$  N sehr gut übereinstimmen, im Vergleich zu den Beobachtungen aus Garmisch bei  $47.5^\circ$  N jedoch zu niedrig liegen.

Es zeigt sich damit, daß das Zirkulationsmodell in der Lage ist, Beobachtungen des Pinatuboaerosols aus den Breiten ( $36.1^\circ$  N,  $41.2^\circ$  N) mit starken vertikalen Austauschprozessen und damit verbundenen relativ geringen Aerosolkonzentration wiederzugeben. Es werden jedoch die beobachteten Aerosolkonzentrationen aus Garmisch ( $47.5^\circ$  N) und Geesthacht ( $53.3^\circ$  N) in den Simulationen durch die nicht modellierte Bandenstruktur, auf Grund der schon im Kapitel 5.3.3 aufgezeigten Transportdefizite, unterschätzt. Abbildung 5.11 und besonders Abbildung 5.12 verdeutlichen somit die Schwierigkeit von Gitterpunkts- und spektralen Modellen wie dem ECHAM4, den in der Stratosphäre auf isentropen Flächen stattfindenden großräumigen Transport zu simulieren.

### 5.3.5 Berechnung des Strahlungsantriebs

In den vorhergegangenen Abschnitten hat sich gezeigt, wie wichtig interaktive Simulationen der Pinatuboepisode für einen adäquaten Transport und eine den Beobachtungen entsprechende globale Verteilung der Aerosolwolke ist. In den hier beschriebenen transienten Experimenten wird die Pinatuboepisode durch ECMWF-Analysen assimiliert, so daß eine Rückkoppelung für diese Experimente nicht sinnvoll ist. Darüber hinaus wären, wie schon erwähnt, interaktive Simulationen mit dem ECHAM4-L19 durch die als Grenzschicht anzusehenden obersten zwei Schichten stark limitiert. Es ist jedoch möglich, anhand der Pinatuboexperimente mit dem ECHAM4-L19 zu überprüfen, inwieweit der

Strahlungsantrieb von dem Modell richtig berechnet wird. Eine realistische Berechnung der durch den Ausbruch des Pinatubo verursachten Änderung des Strahlungsantriebs ist darüber hinaus eine wesentliche Größe, um die durch den Vulkanausbruch verursachten Klimaänderungen zu untersuchen.

Es wird daher im folgenden untersucht, inwieweit die transiente Pinatubosimulation, die von Satellitendaten beobachteten Flußanomalien (Minnis et al., 1993) wiedergeben kann. Desweiteren werden die ECHAM4-Ergebnisse mit Strahlungstransportrechnungen anderer Modelle zur Pinatuboepisode (Kinne et al., 1992; Kinnison et al., 1994; Tie et al., 1994b) verglichen. Der von Stenchikov et al. (1997) für das ECHAM4 zusammengestellte Datensatz des stratosphärischen Aerosols in der Post-Pinatuboepisode und die damit von Kirchner et al. (1996) mit dem ECHAM4 T42 durchgeführten interaktiven Simulationen bieten eine weitere Vergleichsmöglichkeit für die folgenden mit dem Experiment d) durchgeführten Forcingberechnungen. Im Gegensatz zu den hier vorgestellten Ergebnissen, wo die prognostischen Massenmischungsverhältnisse mit vorgeschriebenen optischen Parametern im Strahlungsmodell berücksichtigt werden (Kapitel 2.1.2), werden bei den Rechnungen von Kirchner et al. (1996) mit dem ECHAM4-Modell aus Beobachtungen abgeleitete optische Parameter des Pinatubo-aerosols direkt in das Strahlungsmodell eingegeben.

In einem ersten Experiment wurde dabei zunächst die für das Sulfataerosol vorgesehene Klasse der GADS-Klimatologie verwendet. Es zeigte sich dabei, daß die für den solaren Bereich errechneten Heizraten mit Werten um 1 K/Tag – 2 K/Tag, im Vergleich zu anderen Literaturwerten um mehr als eine Größenordnung zu hoch lagen. Kinne et al. (1992) erhielten z.B. mit ihrem eindimensionalen Strahlungsübertragungsmodell solare Heizraten im Bereich von 0.02 K/Tag – 0.09 K/Tag. Ein Grund für die große Diskrepanz ist sicherlich, daß die für die Klasse 11 vorgegebenen optischen Parameter für troposphärisches Aerosol erstellt worden sind. Obwohl die Pinatubosimulationen mit der aktuellen ECHAM4 Version durchgeführt worden sind, die eine Feuchteabhängigkeit berücksichtigt, umfaßt der kleinste Bereich relative Feuchten von 0%–25%, so daß die vorgegebenen Parameter für stratosphärisches Aerosol mit relativen Feuchten RH <5% wahrscheinlich nicht geeignet sind.

Eine weitere Schwierigkeit ist, daß die angenommene Größenverteilung für das Hintergrundaerosol nicht der Größenverteilung in der Post-Pinatuboepisode entspricht. Nach dem Ausbruch des Pinatubo veränderte sich die stratosphärische Aerosolverteilung erheblich. So wurden z.B. eine Verschiebung zu größeren Radien sowie bimodale Verteilungen beobachtet, siehe auch Kapitel 4.3.

Mit der eindimensionalen Version des ECHAM4-Strahlungsschemas sind daher für verschiedene Lognormalverteilungen Berechnungen durchgeführt worden, um geeignete optische Parameter für die transienten Pinatubosimulationen zu bestimmen. Es wurden für die Tests vier unterschiedliche Lognormalverteilungen für das stratosphärische Aerosol mit einer Teilchenzahldichte von  $N_0 = 1 \text{ m}^{-3}$  und mit folgenden Parametern ausgewählt:

Verteilung	Moderadius	Standardabweichung
<b>A</b>	$r_m = 0.083 \mu m$	$\sigma_s = 2.03$
<b>B</b>	$r_m = 0.075 \mu m$	$\sigma_s = 1.8$
<b>C</b>	$r_m = 0.300 \mu m$	$\sigma_s = 1.5$
<b>D</b>	$r_m = 0.800 \mu m$	$\sigma_s = 1.3$

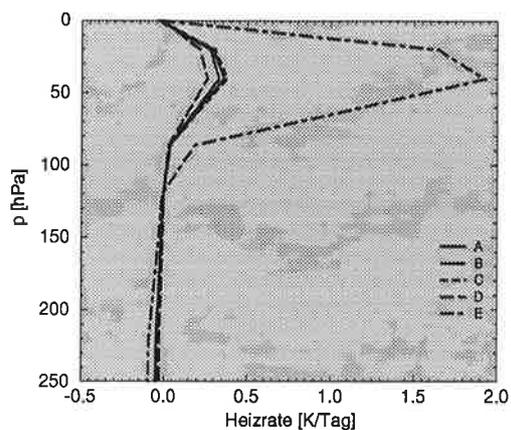
A bezeichnet die standardmäßig in ECHAM4 für das stratosphärische Hintergrundae-rosol verwendete Lognormalverteilung. B, C und D geben nach Kinnison et al. (1994) repräsentative Moden für Hintergrund, mittleres vulkanisches und großes vulkanisches Aerosol an.

Um die für das Morcretteschema benötigten optischen Parameter Extinktion, Absorp-tion und den Asymmetriefaktor zu bestimmen, wurden Mierechnungen für eine 75%  $H_2SO_4$ -Konzentration durchgeführt. Die Refraktionsindizes entstammen Palmer und Williams (1975). Abbildung A.6 im Anhang zeigt die, für die vier Verteilungen berechne-ten Extinktions-, Absorptionskoeffizienten und Asymmetriefaktoren für den vom Strah-lungsschema berücksichtigten Wellenlängenbereich. Das Strahlungsschema in ECHAM4 ist in zwei kurzwellige und in sechs langwellige Frequenzbereiche aufgeteilt. Die in Ab-bildung A.6 gezeigten optischen Parameter sind daher über die entsprechenden Fre-quenzbereiche gemittelt worden, indem die kurzwelligen (solaren) Frequenzbereiche mit einer Planck-Funktion von 6000 K und die langwelligen (terrestrischen) mit einer von 288 K gewichtet worden sind. Für den solaren Wellenlängenbereich von  $0.68 \mu m - 4 \mu m$  verändern sich die Extinktions- und Absorptionskoeffizienten über mehrere Größenord-nungen, siehe Abbildung A.6, so daß die Wahl eines mittleren Parameter mit Unsicher-heiten behaftet ist. In der Tabelle A.2 im Anhang sind die dabei erhaltenen optischen Parameter zusammengestellt.

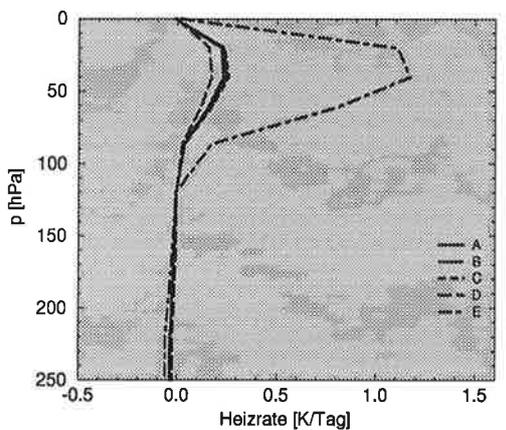
Es wurden Sensitivitätstests für drei verschiedene Breiten  $0^\circ$ ,  $30^\circ$  N und  $60^\circ$  N sowie für Bedingungen, wie sie im August 1991, Oktober 1991 und Januar 1992 vorlagen, durchgeführt. Die für die eindimensionale Version notwendigen Werte des  $SO_4^{2-}$ -Massen-mischungsverhältnisses, der Temperatur, des Bodendruckes, der relativen Feuchte, des Flüssigwassergehaltes, der Wolkenbedeckung und der Bodenbedo entstammen dem transienten Pinatuboexperiment d). Für alle Rechnungen wurde ein mittleres Ozon-profil gewählt.

Abbildung 5.13 zeigt für den Äquator die mit der eindimensionalen Version des ECHAM4-Modells für die vier Lognormalverteilungen berechneten Heizraten. Zum Vergleich sind die Heizraten, die für die in ECHAM4 standardmäßig für das Sulfataerosol und für  $RH < 25\%$  vorgegebenen Parameter erhalten werden, angegeben; sie sind mit E gekennzeich-net. Die für  $30^\circ$  N und  $60^\circ$  N entsprechenden Abbildungen A.7 und A.8 sind im Anhang zu finden. Während bei den terrestrischen Heizraten in Abbildung 5.13 kein großer Un-terschied zwischen den für E und den für A–D berechneten Heizraten zu erkennen ist, unterscheiden sich dagegen die solaren Heizraten der mit den optischen Parametern der Klasse 11 berechneten Heizraten (E) um eine Größenordnung gegenüber den Werten von A–D. So liegt das Maximum der Heizrate im August bei 50 hPa bei 1.9 K/Tag, während sich die maximalen Werte für A–D im Bereich von 0.25 – 0.35 K/Tag befinden. Die ge-

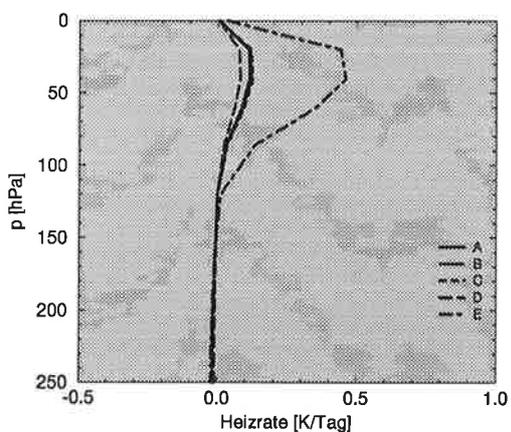
## Solar



August 1991

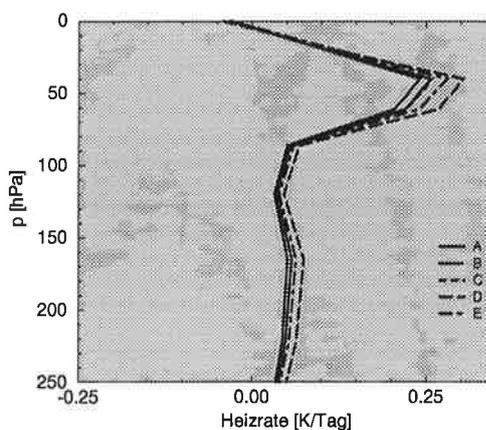


Oktober 1991

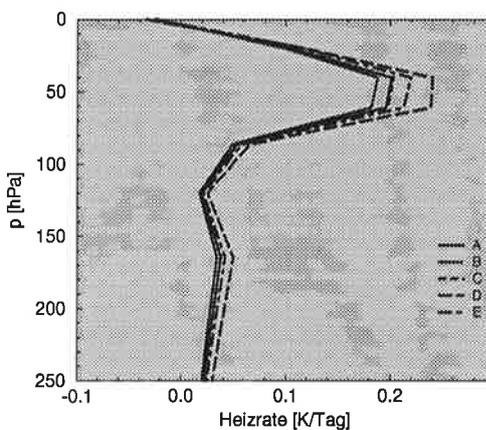


Januar 1992

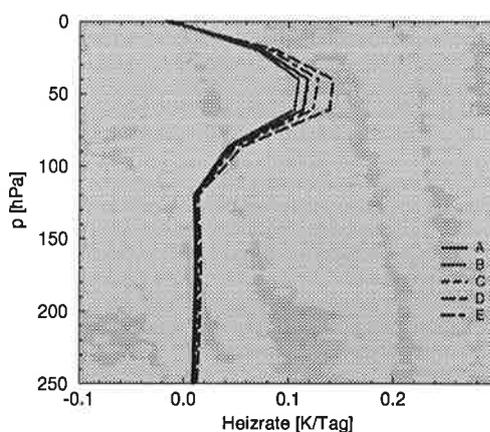
## Terrestrisch



August 1991



Oktober 1991



Januar 1992

Abbildung 5.13: Mit der eindimensionalen ECHAM4-Version berechnete Heizraten in [K/Tag] für Profile des Experiments e) und für  $0^\circ$ . A–D kennzeichnen vier unterschiedliche Lognormalverteilungen A ( $r_m = 0.0838 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 2.3$ ), B ( $r_m = 0.075 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.8$ ), C ( $r_m = 0.3 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.5$ ) und D ( $r_m = 0.8 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.3$ ). E kennzeichnet den im ECHAM4 vorliegenden Standardfall. Es ist die unterschiedliche Skalierung der x-Achse zu beachten.

ringfügigen Unterscheide zwischen A–D sind zunächst erstaunlich, da sich die optischen Parameter für die vier Verteilungen um mehr als eine Größenordnung unterscheiden, siehe Tabelle A.2.

Ursache für den geringen Unterschied ist, daß die in Tabelle A.2 aufgeführten Parameter auf eine konstante Teilchenanzahl normiert sind. Bei den in Abbildung 5.13 gezeigten Heizraten dagegen ist in allen vier Fällen nicht die Aerosolteilchenkonzentration, sondern das Massenmischungsverhältnis konstant. Sie werden mit einem Konversionsfaktor ineinander umgerechnet, siehe Kapitel 2.1.2. Bei der Strahlungsberechnung relativieren sich daher höhere Werte des Absorptionskoeffizienten mit geringen Teilchenanzahlen bzw. umgekehrt. Für den solaren Bereich liegen die für D berechneten Heizraten ein wenig niedriger als die von A, B und C und für den terrestrischen gegenüber dem Mittel ein wenig höher, die totale Heizrate für alle vier Verteilungen differiert nur wenig.

Ein Vergleich der solaren Heizraten mit Literaturdaten zeigt, daß die Werte für A–D zwar nicht wie E um eine Größenordnung sondern um ungefähr einen Faktor 2–3 zu hoch sind. Eine Erklärung dafür ist, daß der zweite Wellenlängenbereich im ECHAM4 von  $0.68 \mu\text{m} - 4 \mu\text{m}$  nicht nur den solaren Bereich, sondern auch einen großen Bereich des nahen IR–Septrums abdeckt. Die terrestrischen Heizraten von A–E stimmen dagegen sehr gut mit Literaturwerten überein, z.B. liegen die Werte im August im Bereich von  $0.22 \text{ K/Tag} - 0.25 \text{ K/Tag}$ . Tie et al. (1994b) geben für ein tropisches Profil einen Monat nach der Eruption einen Wert von  $0.22 \text{ K/Tag}$  an.

Es zeigt sich somit, daß die in Tabelle A.2 aufgeführten optischen Parameter eine wesentliche Verbesserung gegenüber der in ECHAM4 standardmässig für das Sulfataerosol angegebenen Parameter darstellen. Eine dreidimensionale Simulation zur Berechnung des vom Pinatubo erzeugten Strahlungsantriebes erscheint mit den in dieser Arbeit ermittelten Werte sinnvoll. Für die folgenden transienten Pinatuborechnungen wurden die optischen Parameter für B der klassischen Hintergrundverteilung gewählt, da Unsicherheiten in der Strahlungsberechnung durch eine zeitlich sich verändernde Größenverteilung in erster Näherung als vernachlässigbar anzusehen sind. Auf Grund der Tatsache, daß sich die vulkanische Aerosolverteilungen sehr stark in der Zeit nach einer Störung verändern, siehe Kapitel 4, sind die für C und D gewählten Verteilungen ebenso willkürlich wie A und B. Eine wirklich repräsentative Berücksichtigung der nach dem Pinatubo vorliegenden Größenverteilungen ist nur durch eine mit dem mikrophysikalischen Modell gekoppelte Simulation möglich.

Abbildung 5.14 zeigt für August, Oktober und Dezember die mit dem transienten Pinatuboexperiment d), siehe Tabelle 5.1, und der Lognormalverteilung B berechneten monatlich gemittelten Heizraten im Vergleich zu denen von Stenchikov et al. (1997). Es zeigen sich dabei auch in den simulierten Heizraten deutlich die durch Transportdefizite bedingten Unterschiede zwischen dem Tracerexperiment und dem Experiment mit beobachteten Pinatuboaerosol. So liegen im August und im Oktober bei Stenchikov et al. (1997) die maximalen Heizraten südlich des Äquators, während sich in dem Pinatuboexperiment mit prognostischem Sulfat die Maxima in der nördlichen Hemisphäre befinden. Die Abnahme der Heizraten im Dezember in dem Pinatuboexperiment d) läßt sich somit durch die in Abbildung 5.6 und 5.8 beobachtete Verlagerung des tropischen Maximums in die hohen Breiten im Herbst 1991 erklären. Während im Dezember mit Maximalwerten

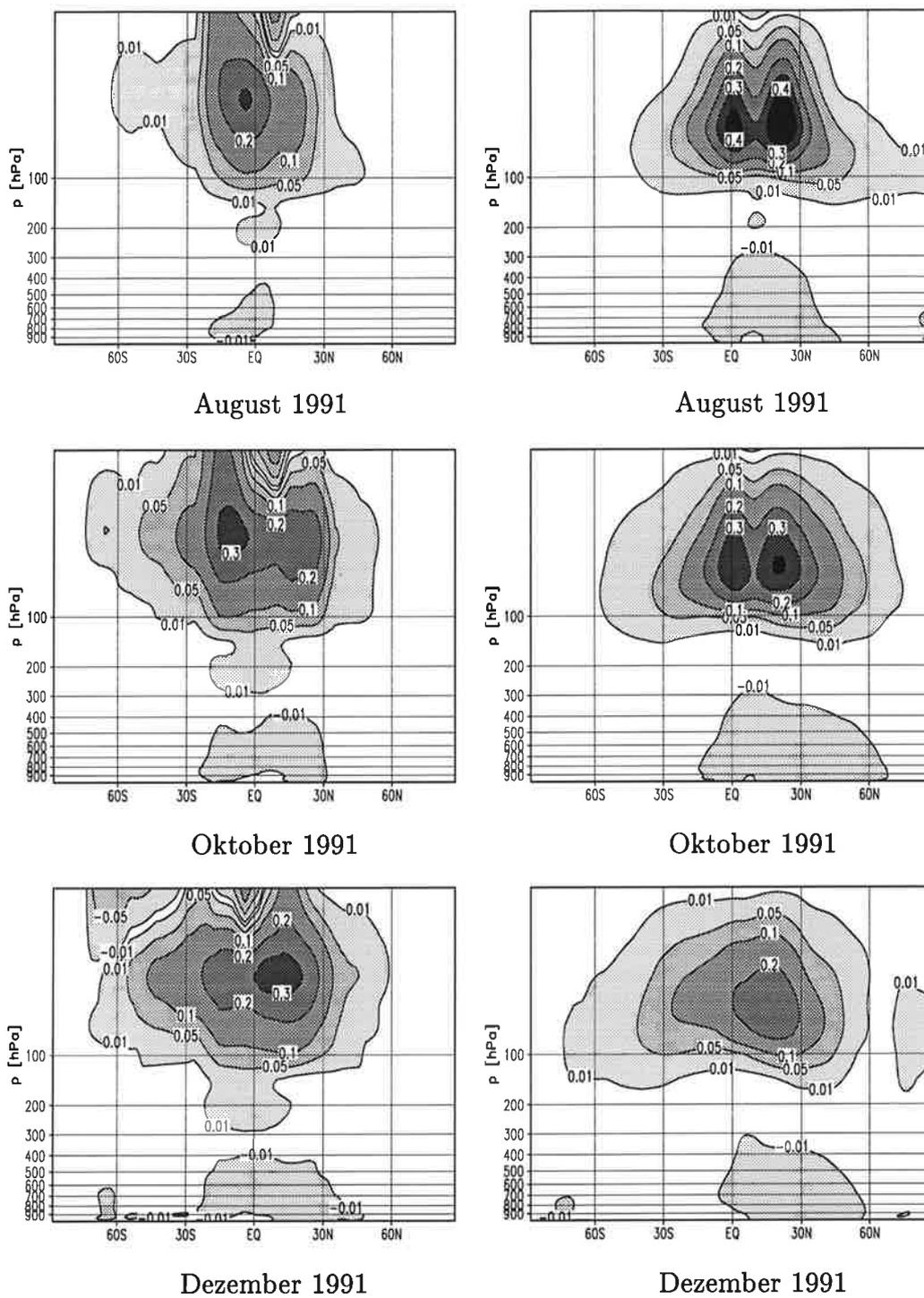


Abbildung 5.14: Vergleich von monatlich gemittelten Heizraten in [K/Tag] zwischen ECHAM4-Simulationen mit vorgeschriebenem (Stenchikov et al., 1997) (links) und prognostischem Pinatubo-aerosol (rechts).

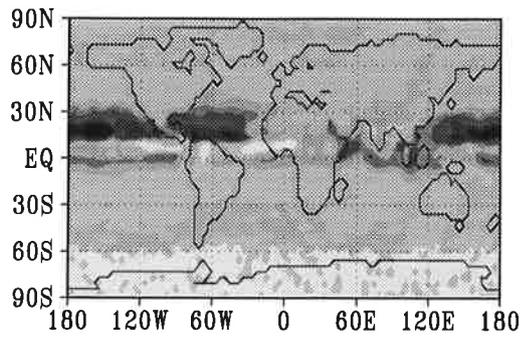
von 0.25 K/Tag die Heizraten im Tracerexperiment niedriger liegen, sind sie im August mit Werten über 0.04 K/Tag deutlich höher als bei Stenchikov et al. (1997). Im Gegensatz zu der ECHAM4-Simulation mit vorgeschriebenem Pinatubo-aerosol sind am oberen Rand der Atmosphäre bei dem Experiment d) die negativen Heizraten nur sehr schwach angedeutet, oder, wie im Dezember, überhaupt nicht vorhanden. Dies läßt sich auf die starke Limitierung der obersten beiden Modellschichten bezüglich des stratosphärischen Transports zurückführen.

Vergleicht man die Heizraten mit anderen Literaturwerten, so stimmen sie z.B. für Oktober mit Werten von 0.3 K/Tag mit Ergebnissen von Kinne et al. (1992) sehr gut überein. Fairlie (1995) erhielt maximale Werte von 0.4 K/Tag zu Beginn seiner interaktiven Pinatubo-Transportsimulation, die in der Größenordnung der Augustwerte des Experimentes d) liegen. Pitari (1993a) berechnete dagegen für August eine Heizrate von 0.2 K/Tag, die der von Stenchikov et al. (1997) entspricht. Es scheint, daß Experimente mit prognostischem Sulfat höhere Heizraten zu Beginn der Simulation berechnen, als Modelle, denen beobachtete Aerosolverteilungen zugrunde liegen. Eine Schwierigkeit bei der Berechnung der Heizraten zu Beginn der Simulation besteht in der vertikalen Initialisierung der Pinatubowolke bei den Tracerexperimenten einerseits, bzw. in der vertikalen Aufteilung der beobachteten Satellitenmessungen andererseits. Generell liegen die mit dem Experiment d) berechneten Heizraten in dem in der Literatur angegebenen Bereich. Unterschiede zu den aus Beobachtungen abgeleiteten Heizraten, wie bei Stenchikov et al. (1997), sind vor allem auf transport- und modellbedingte (vertikale Auflösung) Abweichungen in der globalen Verteilungen des Pinatubo-aerosols zurückzuführen.

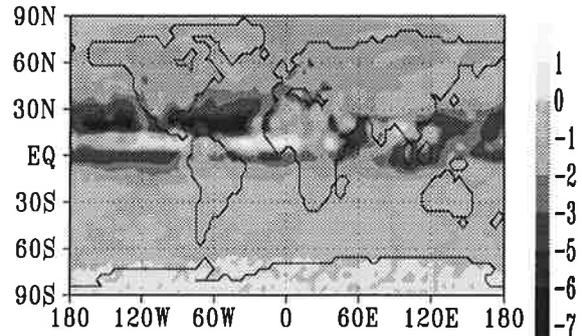
In Abbildung 5.15 ist der mit dem Experiment d) berechnete monatlich gemittelte Strahlungsantrieb am oberen Rand der Atmosphäre dargestellt. Für die Gebiete mit einer höheren Albedo, wie die polaren Breiten und Wüstengebiete z.B. die Sahara ist eine deutliche Reduzierung im negativen Forcing zu erkennen. Ebenfalls wird in Abbildung 5.15 der Effekt von Wolken sichtbar, die wie im August in den Tropen sogar stellenweise zu einem positiven Strahlungsantrieb von  $1 \text{ W/m}^2 - 2 \text{ W/m}^2$  führen können. Der reduzierende Effekt in dem beobachteten negativen Strahlungsantrieb hängt mit einer Reduzierung des solaren Strahlungsantriebs zusammen. Die einfallende solare Strahlung wird bei einer großen Bodenalbedo oder bei tief liegenden Wolken sehr stark rückgestreut, so daß über diesen Gebieten das solare Forcing im Vergleich zum globalen Mittel reduziert (negativ) ist. Durch das Vorhandensein von vulkanischem Aerosol wird ein Teil der rückgestreuten solaren Einstrahlung erneut rückgestreut und somit das negative Forcing am oberen Rand der Atmosphäre reduziert (Vielfachstreuung). Im August liegen die Maximalwerte im negativen Strahlungsantrieb in Abbildung 5.15 bei  $-7 \text{ W/m}^2$  und im Oktober bei  $-5 \text{ W/m}^2$ . ERBE<sup>16</sup>-Daten (Minnis et al., 1993) zeigen für August eine Reduzierung von  $-8 \text{ W/m}^2$  zwischen  $5^\circ \text{ S} - 5^\circ \text{ N}$  bzw eine von  $-4.3 \text{ W/m}^2$ . Die Daten beziehen sich dabei auf ein fünfjähriges Mittel der entsprechenden Monate, die mit interannualen Schwankungen im Bereich von  $\pm 3 \text{ W/m}^2$  liegen. Die simulierten Nettostrahlungsflüsse am oberen Rand sind, gleichwohl sie regional im Bereich der beobachteten Werte liegen, im Mittel im Vergleich zu den Beobachtungen zu niedrig. Ein Grund dafür ist zum einen sicherlich die schon erwähnte geringe vertikale Auflösung des Modells, sowie der fehlende

---

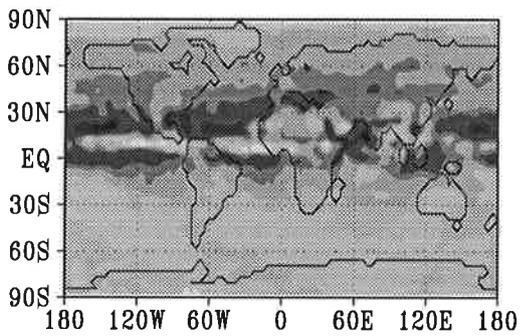
<sup>16</sup>ERBE: Earth Radiation Budget Experiment



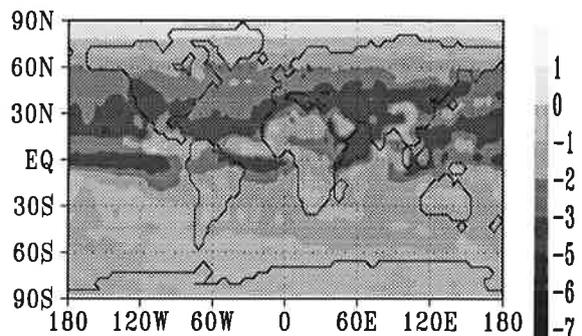
Juli 1991



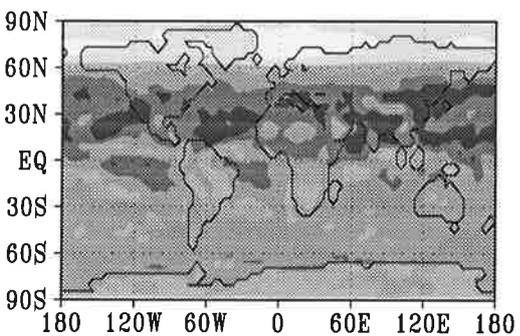
August 1991



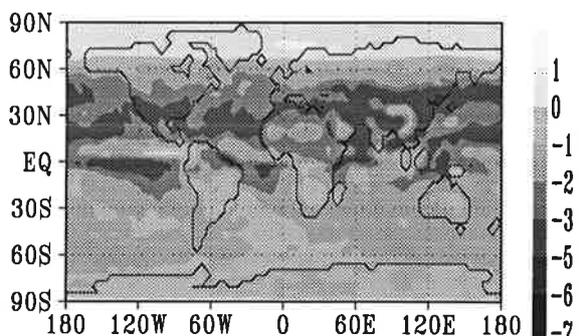
September 1991



Oktober 1991



November 1991



Dezember 1991

Abbildung 5.15: Monatlich gemittelter Strahlungsantrieb in  $[W/m^2]$  am oberen Rand der Atmosphäre.

anfängliche Transport über den Äquator hinweg. Betrachtet man den global gemittelten Strahlungsantrieb am oberen Rand der Atmosphäre, so zeigen sich auch dort Unterschiede zwischen Modellsimulation und Beobachtung. Für das Pinatuboexperiment betrug der global gemittelte Strahlungsantrieb für August z.B.  $-1.4 \text{ W/m}^2$  und für Oktober  $-1.9 \text{ W/m}^2$ . Minnis et al. (1993) leiteten dagegen aus den ERBE-Daten ein globales Mittel von  $-2.7 \text{ W/m}^2 \pm 1.0 \text{ W/m}^2$  für August und September ab.

Die wesentliche Ursache für diese Differenz liegt in der Tatsache, daß in der Modellsimulation die Strahlungsflüsse zwar berechnet worden sind, aber keine Rückwirkungen auf die Temperatur- und Ozonverteilung des Modells hatten. So zeigten Simulationen von Kinne und Bergstrom (1996), daß in den ersten vier Monaten nach dem Ausbruch des Pinatubo der global gemittelte Strahlungsantrieb mit Werten zwischen  $-1.4 \text{ W/m}^2$  und  $-1.8 \text{ W/m}^2$  bei einer konstanten Temperatur und konstantem Ozon auf Werte im Bereich von  $-2.1 \text{ W/m}^2$  und  $-2.4 \text{ W/m}^2$  abnimmt, wenn ein Response mitberücksichtigt wird. Um mit einer transienten Pinatubosimulation den beobachteten Strahlungsantrieb realistisch zu simulieren, ist daher eine interaktive Simulation mit prognostischem Ozon unerlässlich.

Zusammenfassend zeigt sich, daß Heizraten und Nettostrahlungsflüsse gut mit Literaturwerten übereinstimmen. Die starken geographischen Unterschiede in Abbildung 5.15 zeigen dabei, daß es wichtig ist, sich nicht nur das globale Mittel des durch den Pinatuboausbruch hervorgerufenen veränderten Strahlungsforcings zu betrachten. Da, zonal betrachtet, starke Unterschiede in den monatlich gemittelten Werten des Strahlungsantriebs zu erkennen sind, ist es nur anhand einer dreidimensionalen Modellierung möglich, die erwarteten Klimaänderungen zu modellieren.

## 5.4 Zusammenfassung und Ausblick

Es konnte im Verlauf dieses Kapitels gezeigt werden, daß die ECHAM4-Simulationen mit STE-Parameterisierung die globale Ausbreitung der Pinatubowolke in der nördlichen Hemisphäre im ersten halben Jahr nach der Eruption gut wiedergeben. Mit zunehmender Integrationsdauer werden die Unterschiede zwischen Beobachtungen und Simulationen stärker, was besonders an der generellen Schwierigkeit von Gitterpunkts- und spektralen Modellen liegt, den in der Stratosphäre auf isentropen Flächen stattfindenden großräumigen Transport zu simulieren. Durch die Einführung der in Kapitel 5.3.2 vorgestellten Reduzierung des vertikalen Transports auf einer isentropen Fläche von 380 K ist eine wesentliche Verbesserung erzielt worden. Dennoch ist das Modell nicht in der Lage, die im stratosphärischen Aerosol beobachtete Bandenstruktur zu repräsentieren. Die in der ECHAM4-L19-Version kaum modellierte residuale stratosphärische Zirkulation ist eine weitere Ursache für die Unterschiede in der simulierten und in der beobachteten Transportcharakteristik des Pinatuboaerosols. Es ist dabei zu erwarten, daß die zirkulationsbedingten Unterschiede unter Verwendung der vertikal höherreichenden Version des ECHAM4-Modells ECHAM4-L39MPI behoben werden. Mit der hochauflösenden L39-Version werden zur Zeit Tracertests durchgeführt. In diesem Rahmen ist ein erstes Pinatuboexperiment durchgeführt worden, wobei die Aerosolwolke als passiver Tracer behandelt wurde. Das Experiment selbst wurde im Klimamode und ohne troposphäri-

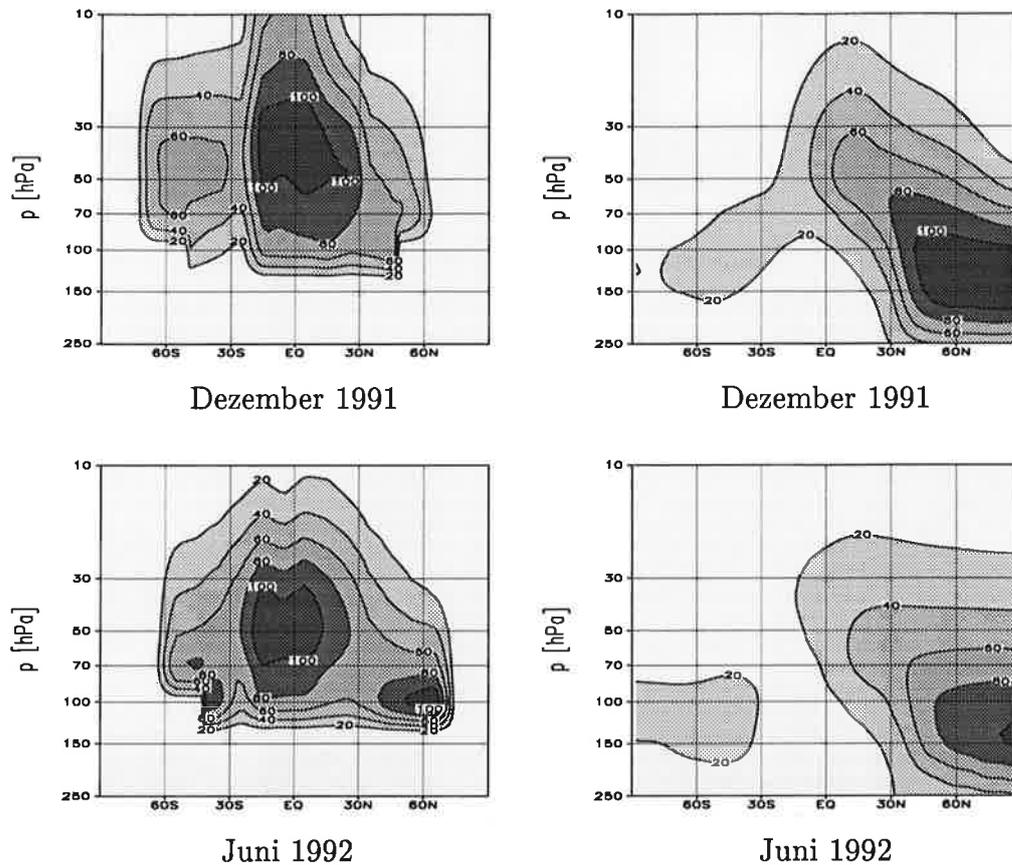


Abbildung 5.16: Vergleich von beobachteten Extinktionen [ $10^{-4} \text{ km}^{-1}$ ] nach Stenchikov et al. (1997) für einen Wellenlängenbereich von  $0.68 \mu\text{m}$  bis  $4.0 \mu\text{m}$  (links) ECHAM4-L39 Simulationen mit STE Reduzierung und einem konservativem Tracer(rechts).

schen Schwefelkreislauf gerechnet. Der Stratosphären–Troposphären–Austausch wurde in Analogie zu Experiment d) und e), siehe Tabelle 5.1, mit einer Reduzierung des advektiven vertikalen Transports um 75% in der 380 K Schicht und mit einer Reduzierung um 50% in der darüber und der darunterliegenden Schicht gerechnet.

Abbildung 5.16 zeigt einen Vergleich der errechneten Extinktionen für einen Wellenlängenbereich von  $0.68 \mu\text{m}$  bis  $4.0 \mu\text{m}$  entsprechend Abbildung 5.8. Nach einem Jahr liegen in der ECHAM4–L39–Version noch in 30 hPa Extinktionen mit Werten  $\geq 30 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  vor, was eine deutliche Verbesserung gegenüber der ECHAM4–L19–Version darstellt. Es ist jedoch ebenfalls wie in der 19–Schichtenversion in der 39–Version ein zu schneller Transport in die nördlichen Breiten und das Fehlen des tropischen Maximums um 50 hPa zu beobachten. Es fehlt daher ebenso wie in der L19– auch in der L39–Simulationen die Ausbildung eines tropischen Aerosolreservoirs, so daß nur der Transport des Pinatubo-aerosols im unteren Transportregime simuliert wird. Als Folge davon ist, statt einer Ausbildung zweier Maxima, wie sie im Juni 1992 beobachtet worden sind, eine generelle, vertikale und meridionale Verschiebung des tropischen Aerosolmaximums gegenüber den Beobachtungen zu erkennen.

Bei den vorhergegangenen Untersuchungen hat sich gezeigt, daß die Rückkoppelung zwischen Aerosol und Strahlung eine wesentliche Rolle bei der globalen Ausbreitung spielt.

Die durch die lokale Heizung hervorgerufene Aufwärtsbewegung sorgt nicht nur für eine anfängliche Ausbreitung der Aerosolwolke über den Äquator hinweg, sondern sie wirkt auch dem schnellen vertikalen Abwärtstransport entgegen. Diese Unterschiede können daher nur mit interaktiven Simulationen behoben werden.

Anhand von Mierechnungen sind in Kapitel 5.3.4. geeignete optische Parameter für das stratosphärische Aerosol bestimmt worden. Simulationen mit der eindimensionalen Morcretteversion zeigten dabei, daß Unsicherheiten in der Strahlungsberechnung auf Grund sich zeitlich verändernder Größenverteilungen in erster Näherung für Klimasimulationen als vernachlässigbar anzusehen sind.

Die mit dem ECHAM4-L19 bestimmten Heizraten und Strahlungsflüsse liegen in den beobachteten Größenordnungen, so daß eine interaktive Pinatubosimulation mit dem ECHAM4-L39 sinnvoll erscheint. Zur Zeit wird an einer solchen Version gearbeitet.

Ein entscheidender Punkt ist, daß die durch das Pinatuboaerosol hervorgerufenen Veränderungen des Strahlungshaushaltes nicht allein nur durch das Aerosol, sondern auch durch geänderte Ozonkonzentrationen hervorgerufen werden. Um diese Effekte mit zu berücksichtigen, ist die Mitführung eines Chemiemoduls bei der Pinatubosimulationen notwendig. Eine weitere in den Simulationen verwendete grobe Annahme ist die direkte Umwandlung von  $\text{SO}_2$  in Sulfat, die sicherlich nur in den ersten Monaten gültig ist. Es ist somit ebenfalls die Mitführung eines mikrophysikalischen Modells, wie das in Kapitel 3 und 4 vorgestellte, erforderlich, welches die zeitliche Entwicklung der Größenverteilung und die Zusammensetzung des Pinatuboaerosols berechnet.

Zeitlich variable Größenverteilungen und Konzentrationen des Aerosols sind nicht nur für die Simulation des Ozonabbaus durch heterogene Reaktionen notwendig, sondern auch für einen Vergleich mit Beobachtungen wünschenswert.

Vergleiche der Pinatubosimulationen mit stationären Lidar- und Ballondaten aus der nördlichen Hemisphäre zeigten eine sehr gute Übereinstimmung für Laramie ( $41.2^\circ \text{ N}$ ) und Tsukuba ( $36.1^\circ \text{ N}$ ), jedoch Abweichungen für Garmisch ( $47.5^\circ \text{ N}$ ) und Geesthacht ( $53.3^\circ \text{ N}$ ). Ursache dafür ist, daß das Modell nicht in der Lage ist, die in der globalen stratosphärischen Aerosolverteilung beobachtete Bandenstruktur zu repräsentieren.

Die in diesem Kapitel anhand der Pinatuboepisode durchgeführten Untersuchungen des stratosphärischen Transports zeigen somit insbesondere die Schwierigkeit des Zirkulationsmodelles, den isentropen Transport und den ST-Austausch realistisch zu simulieren. Modelle mit isentropen Koordinaten sowie mechanistische Modelle, die an der Tropopause angetrieben werden, sind sicherlich besser geeignet, Lidar- und Satellitenbeobachtungen wiederzugeben. Mit diesen Modellen ist es jedoch nicht möglich, die nach einem Vulkanausbruch, wie dem des Pinatubo verstärkte Stratosphären-Troposphären-Wechselwirkung (Graf et al., 1994; Perlwitz und Graf, 1995) sowie beobachtete Veränderungen in der Oberflächentemperatur zu simulieren. Da es Ziel ist, mit einem gekoppelten mikrophysikalisch-chemischen Modell die Wechselwirkungen zwischen Mikrophysik, Chemie, Strahlung und Dynamik zu untersuchen, ist ein Klimamodell wie das ECHAM als dreidimensionales Zirkulationsmodell unentbehrlich. Es ist mit Unsicherheiten in der globalen Modellierung des stratosphärischen Aerosol auf Grund artifizierlicher Transporte zu rechnen. Diese Schwierigkeiten werden aller Voraussicht nach auch nicht durch die Verwendung einer höher vertikal aufgelösten Version behoben werden.

# Kapitel 6

## Dreidimensionale Modellierung des stratosphärischen Aerosols

Es wurde in Kapitel 4 gezeigt, daß das mikrophysikalische Modell in der Lage ist, die beobachtete stratosphärische Aerosolgrößenverteilung über weite Bereiche wiederzugeben. Unterschiede zwischen Beobachtungen und Simulationsergebnissen sind im wesentlichen auf die fehlende Advektion und vertikale Diffusion zurückzuführen. Das mikrophysikalische Modell ist somit für den Einbau in das globale Zirkulationsmodell ECHAM geeignet.

In dem folgenden Kapitel wird das in ECHAM4 eingebaute stratosphärische Aerosolmodell vorgestellt und erste Ergebnisse beschrieben.

### 6.1 Entwicklung des dreidimensionalen stratosphärischen Aerosolmodells

Das in Kapitel 3 vorgestellte mikrophysikalische Modell behandelt die für die Stratosphäre wichtigen mikrophysikalischen Prozesse: Feuchtwachstum, Koagulation, Kondensation, Sedimentation und homogene Nukleation. Es werden aber die für die Troposphäre wesentlichen Prozesse, wie das Auswaschen von Aerosolen aus der Atmosphäre durch Regen (Rainout) und Wolken (Washout) sowie die trockene Deposition in dem Modell vernachlässigt. Eine Möglichkeit diese Prozesse zu berücksichtigen, ist die Weiterentwicklung des mikrophysikalischen Modells für troposphärische Bedingungen. Es ergeben sich dabei jedoch Schwierigkeiten, da ein binärer Ansatz, wie er zur Beschreibung des stratosphärischen Sulfataerosols gewählt worden ist, für das troposphärische Sulfataerosol nicht ausreicht. So ist z.B. zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch unklar, welche Ursachen die in der freien marinen Grenzschicht auftretenden 'Nucleationbursts' haben.

Neben dieser Unsicherheit in der Nukleationsparameterisierung kommt eine weitere unbekannte Größe durch die Wechselwirkung von Sulfataerosolen mit Rußteilchen und mineralischen Aerosolen hinzu. Für die Simulation von troposphärischem Aerosol wäre zudem die Einführung von Teilchen mit einem unlöslichen Kern erforderlich, was eine Verdreifachung der Größenklassen zur Folge hätte und damit einen erheblichen Rechen-

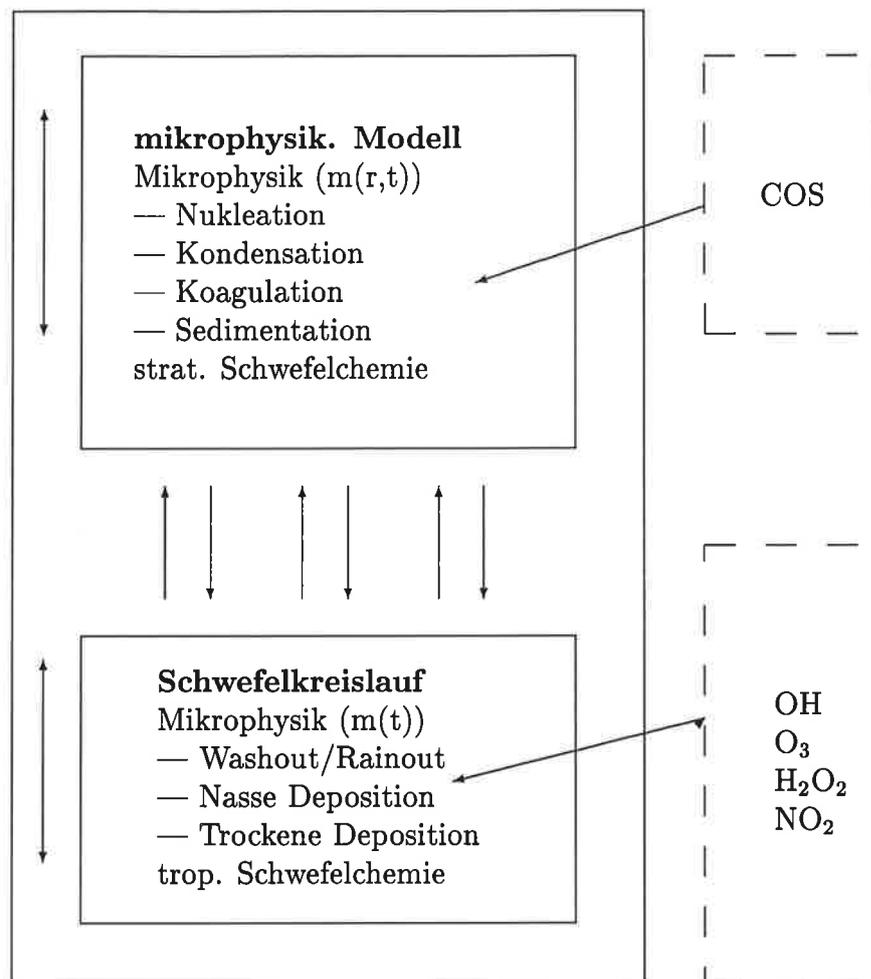


Abbildung 6.1: Das stratosphärische Aerosolmodell in ECHAM4.

und Speicherplatzbedarf erfordern würden. Es wird daher als Alternativlösung der schon in Kapitel 2.3 beschriebene und von Feichter et al. (1996) entwickelte Schwefelkreislauf ausgewählt, um das troposphärische Sulfataerosol zu beschreiben. Wie in Abbildung 6.1 zu sehen ist, besteht das in ECHAM4 implementierte stratosphärische Aerosolmodell aus zwei Teilen: dem in Kapitel 3 vorgestellten mikrophysikalischen Modell, welches mit einem Modul für die stratosphärische Schwefelchemie erweitert worden ist, und dem in Kapitel 2.2 vorgestellten Schwefelkreislauf. Diese Koppelung zwischen dem mikrophysikalischen Modell und dem troposphärischen Schwefelkreislauf stellt eine bisher einzigartige Verbindung dar, die es ermöglicht, für das stratosphärische Aerosol global und saisonal unterschiedliche troposphärische  $\text{SO}_2$ - und  $\text{SO}_4^{2-}$ -Quellen zu berücksichtigen.

Bei der Koppelung zwischen dem mikrophysikalischen Modell und dem troposphärischen Schwefelkreislauf sind jedoch einige Feinheiten zu berücksichtigen. Das Sulfataerosol ist zwar in dem Schwefelkreislauf eine prognostische Größe, wird aber durch

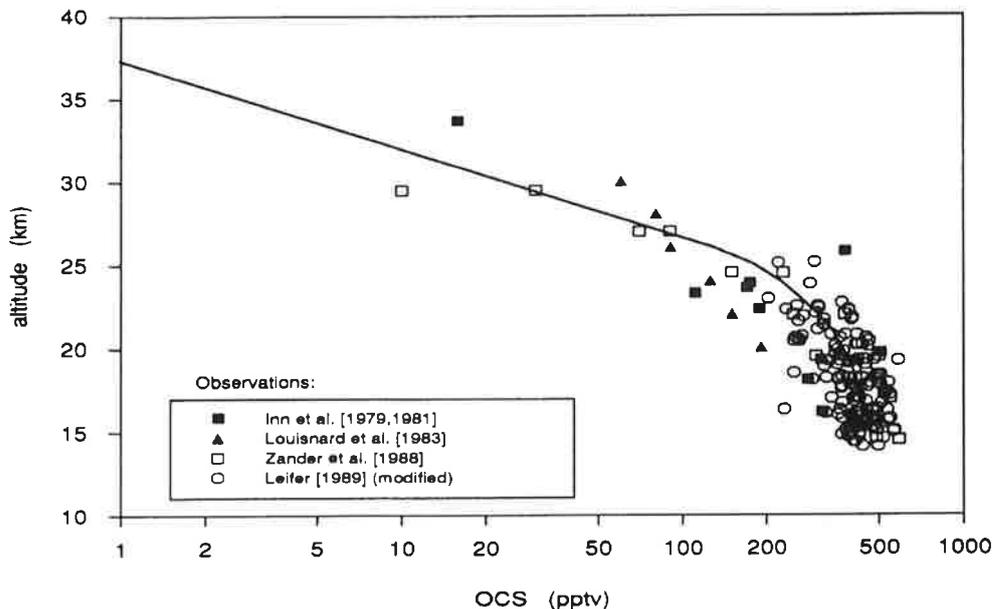


Abbildung 6.2: Vertikalprofil des stratosphärischen Mischungsverhältnisses von COS (Chin und Davis, 1995).

einen Bulkansatz, d.h. nur durch die Masse, beschrieben. Im Gegensatz dazu ist im mikrophysikalischen Modell das Aerosol in einzelne Größenklassen aufgeteilt, die je nach Umgebungstemperatur und Feuchte eine andere Dichte und Zusammensetzung haben. Dank der in Kapitel 3.3 beschriebenen Parametrisierung des Feuchtwachstums ist es jedoch möglich, Schwefelkreislauf und mikrophysikalisches Modell über die Sulfatmasse zu koppeln. Als Skalierungsgröße für die Dichte  $\rho_0$  und die Konzentration  $W_0$  werden die auch im Schwefelkreislauf benutzten Werte 0.75 für  $W_0$  und  $1.7 \text{ g/cm}^3$  für  $\rho_0$  verwendet und damit die Teilchenzahl/Klasse in Masse/Klasse umgerechnet.

Eine entscheidende Frage für die dreidimensionale Modellierung des stratosphärischen Aerosols ist, mit wie vielen prognostischen Größen das Aerosol beschrieben werden soll. Die eleganteste und rechentechnisch teuerste Lösung ist dabei, jede Aerosolgrößenklasse getrennt zu transportieren. Die einfachste und billigste Lösung ist dagegen die, alle Größenklassen durch einen Tracer zu beschreiben, ähnlich dem in der Chemiemodellierung häufig angewendeten Familienkonzept. Dies bedeutet, daß die Masse in jeder Klasse nach jedem Zeitschritt abgespeichert und mit dem Quotienten aus der Gesamtmasse des Aerosols nach dem Transport und der Gesamtmasse vor dem Transport skaliert wird.

Da der Schwefelkreislauf sich auf die Modellierung des troposphärischen Sulfates konzentriert, ist ein Modul der stratosphärischen Schwefelchemie entwickelt worden, welches die stratosphärischen Quellen von  $\text{SO}_2$  sowie die wichtigsten Reaktionen beinhaltet. Es wird in Abschnitt 6.1.1 näher erläutert.

Prognostiziert werden DMS,  $\text{SO}_2$  und  $\text{SO}_4^{2-}$ .  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (gasförmig) wird in der gegenwärtigen Version nur in der Stratosphäre berücksichtigt und daher nur diagnostisch behandelt. Um Auswirkungen des Transports auf die gasförmige  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration mit zu berücksichtigen, wird zu Beginn jedes Zeitschrittes die für den jeweiligen Gitterpunkt

abgespeicherte Konzentration mit dem Quotienten aus der transportierten Masse  $\text{SO}_2$  und der Masse  $\text{SO}_2$  vor dem Transportschritt skaliert.

Eine Skalierung von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  mit der Transporttendenz von  $\text{SO}_2$  erscheint gerechtfertigt, da das mikrophysikalische Modell zunächst nur in den obersten sechs Schichten im Zirkulationsmodell gerechnet wird. In diesen Schichten wird der Transport im wesentlichen durch die Advektion bestimmt. Es ist jedoch beabsichtigt,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  als weitere prognostische Größe in das Zirkulationsmodell einzuführen.

Ebenfalls als prognostische Schwefelgröße soll Carbonylsulfid COS eingebaut werden. Kjellström (1997) hat den COS-Kreislauf mit Quellen und Senken in das ECHAM3-Modell eingebaut. Da sich das COS-Modell von Kjellström noch in der Testphase befindet, wird für den ersten Test die COS-Konzentration einem repräsentativen vertikalen Profil entnommen (Chin und Davis, 1995), siehe Abbildung 6.2. Sie ist damit global und zeitlich konstant.

Die für die Modellierung benötigten Konzentrationen von OH und  $\text{O}_3$  entstammen, wie auch schon bei den Sensitivitätsstudien und dem Pinatuboexperiment, einem 12-jährigen Feedback-Lauf mit heterogener Chemie (Steil, 1997). Nach der erfolgten Koppelung des mikrophysikalischen Aerosolmodells mit dem Chemiemodell von Steil (1997) werden OH- und  $\text{O}_3$ -Konzentrationen nicht mehr monatlich vorgeschrieben, sondern direkt interaktiv berechnet, ebenso wie die für die stratosphärische Chemie benötigten Photolyseraten. In der jetzigen Version sind die Photolyseraten monatliche Mittelwerte, die offline für die jeweiligen Gitterpunkte mit der Photolyseratenroutine des Mainzer 2d-Modells (Brühl und Crutzen, 1989) ausgerechnet worden sind. Es wird daher noch nicht zwischen Tag und Nachtchemie unterschieden, sondern mit Tagesmittelwerten der chemischen Konzentrationen gerechnet.

### 6.1.1 Modellierung der stratosphärischen Schwefelchemie

Transport von COS durch die Tropopause bildet die natürliche Quelle von Schwefel in der Stratosphäre (Crutzen, 1976). COS ist nahezu chemisch inert in der Troposphäre und wird erst oberhalb der Tropopause photolytisch zerstört, bzw. reagiert mit  $\text{O}(^3\text{P})$ - und OH-Radikalen. Das dabei entstehende Schwefelradikal reagiert sofort weiter zu SO und  $\text{SO}_2$ . Bei starken Vulkaneruptionen gelangt  $\text{SO}_2$  direkt in die Stratosphäre. So gelangten z.B. bei der Eruption des El Chichón im April 1981 5 Mt – 9 Mt  $\text{SO}_2$  und bei der des Mt. Pinatubo im Juni 1991 14 Mt – 16 Mt direkt in die Atmosphäre (Krueger et al., 1995).

Mit Hilfe des Gleichungslösungsprogramms FACSIMILE (AEA Technology, 1993) wurden die wichtigsten Reaktionen für die stratosphärische Schwefelchemie in verschiedenen Höhen im Sommer und im Winter getestet. Sie sind in der Tabelle 6.1 zusammengefaßt. Diese Reaktionen bilden ein gekoppeltes System von partiellen Differentialgleichungen, deren Zeitkonstanten um einige Größenordnungen auseinanderliegen:

$$\frac{d[\text{COS}]}{dt} = -J_{\text{COS}}[\text{COS}] - R_{\text{S}_3}[\text{O}][\text{COS}] - R_{\text{S}_4}[\text{OH}][\text{COS}] \quad (6.1)$$

$$\frac{d[\text{S}]}{dt} = -R_{\text{S}_1}[\text{O}_2][\text{S}] + J_{\text{COS}}[\text{COS}] \quad (6.2)$$

$\text{SO}_2 \xrightarrow{h\nu} \text{SO} + \text{O}$	$J_{\text{SO}_2}, \lambda < 220 \text{ nm}$
$\text{COS} \xrightarrow{h\nu} \text{CO} + \text{S}$	$J_{\text{COS}}, \lambda < 260 \text{ nm}$
$\text{S} + \text{O}_2 \longrightarrow \text{SO} + \text{O}$	$R_{\text{S1}} = 2.3 \cdot 10^{-12}$
$\text{SO} + \text{O}_2 \longrightarrow \text{SO}_2 + \text{O}$	$R_{\text{S2}} = 2.6 \cdot 10^{-13} \exp(-2400/T)$
$\text{COS} + \text{O} \longrightarrow \text{SO} + \text{CO}$	$R_{\text{S3}} = 2.1 \cdot 10^{-11} \exp(-2200/T)$
$\text{COS} + \text{OH} \longrightarrow \text{Produkte}$	$R_{\text{S4}} = 1.1 \cdot 10^{-13} \exp(-1200/T)$
$\text{SO}_2 + \text{OH} \xrightarrow{\text{M}} \text{HSO}_3$	$R_{\text{S5}} = f(K_0, K_\infty)$ $K_0 = 3.0 \cdot 10^{-31} (T/300)^{-3.3}$ $K_\infty = 1.5 \cdot 10^{-12}$
$\text{HSO}_3 + \text{O}_2 \longrightarrow \text{SO}_3 + \text{HO}_2$	$R_{\text{S6}} = 1.3 \cdot 10^{-12} \exp(-330/T)$
$\text{SO}_3 + \text{H}_2\text{O} \longrightarrow \text{H}_2\text{SO}_4$	$R_{\text{S7}} = 6.0 \cdot 10^{-15}$

Tabelle 6.1: Photochemische Reaktionen der Schwefelkomponenten in der Stratosphäre. Die Reaktionskonstanten entstammen de More et al. (1992).  $f(K_0, K_\infty)$  kennzeichnet eine thermomolekulare Reaktion, wobei:  $f(K_0, K_\infty) = \left( \frac{K_0 [M]}{1 + K_0 [M]/K_\infty} \right) 0.6 \left( 1 + \left( \log \frac{K_0 [M]}{K_\infty} \right) \right)$ .

$$\frac{d[\text{SO}]}{dt} = -R_{\text{S2}}[\text{O}_2][\text{SO}] + J_{\text{SO}_2}[\text{SO}_2] + R_{\text{S1}}[\text{O}_2][\text{S}] + R_{\text{S3}}[\text{O}][\text{COS}] + R_{\text{S4}}[\text{OH}][\text{COS}] \quad (6.3)$$

$$\frac{d[\text{SO}_2]}{dt} = -J_{\text{SO}_2}[\text{SO}_2] - R_{\text{S5}}[\text{OH}][\text{SO}_2] + R_{\text{S2}}[\text{O}_2][\text{SO}] \quad (6.4)$$

$$\frac{d[\text{HSO}_3]}{dt} = -R_{\text{S6}}[\text{O}_2][\text{HSO}_3] + R_{\text{S5}}[\text{OH}][\text{SO}_2] \quad (6.5)$$

$$\frac{d[\text{SO}_3]}{dt} = -R_{\text{S7}}[\text{H}_2\text{O}][\text{SO}_3] + R_{\text{S6}}[\text{O}_2][\text{HSO}_3] \quad (6.6)$$

$$\frac{d[\text{H}_2\text{SO}_4]}{dt} = -\frac{d[\text{H}_2\text{SO}_4]}{dt}_{\text{aerosol}} + R_{\text{S7}}[\text{H}_2\text{O}][\text{SO}_3] \quad (6.7)$$

Es gibt verschiedene Algorithmen, um solch ein steifes System zu lösen (Gear, 1971a,b). Diese sind jedoch sehr rechenzeitintensiv und somit für den dreidimensionalen Fall nicht geeignet. Um diese Schwierigkeit zu umgehen, werden, nach einem in der Chemiemodellierung üblichen Verfahren (Brosseur und Solomon, 1986), Spezies, die sich schnell ineinander umwandeln, in chemische Familien zusammengefaßt und transportiert. Die in dem Modell berücksichtigten Spezies werden in drei Familien transportiert:

$$\begin{aligned}
& \text{[COS]} \\
\text{[SOX]} &= \text{[S]} + \text{[SO]} + \text{[SO}_2\text{]} \\
\text{[HYSOX]} &= \text{[SO}_3\text{]} + \text{[HSO}_3\text{]} + \text{[H}_2\text{SO}_4\text{]} \quad .
\end{aligned}$$

Zur numerischen Lösung der photochemischen Schwefelreaktionen siehe Anhang B.3.

## 6.2 Erste Ergebnisse und Ausblick

Wie bei der Konzeption des dreidimensionalen Aerosolmodells in Kapitel 6.1 deutlich wurde, sind einige Bausteine noch nicht vollständig vorhanden bzw. nur grob parametrisiert. Die transienten Pinatubosimulationen in Kapitel 5 haben desweiteren gezeigt, daß der stratosphärische Transport in der ECHAM4-L19-Version besonders oberhalb von 24 km nicht realistisch ist. Mit der ECHAM4-L19-Version ist daher zunächst in einem ersten Test ein Jahr mit dem gekoppelten mikrophysikalischen Modell gerechnet worden, dessen Ergebnisse im folgenden kurz skizziert werden.

Die vorliegende Simulation wurde im April mit klimatologischer Meeresoberflächentemperatur gestartet, wobei aus Gründen der Rechenzeit und der Speicherkapazität statt der 44 Aerosolklassen nur 35 Aerosolklassen in einem Radienbereich von  $1 \cdot 10^{-3} \mu\text{m}$  –  $2.58 \mu\text{m}$  berücksichtigt wurden. Desweiteren wurde in der mikrophysikalischen Modellierung der Kelvineffekt vernachlässigt. In Anhang B.2 wird dargestellt, daß diese Optimierungsansätze das Ergebnis nicht wesentlich beeinträchtigen.

Die Integrationszeit von einem Jahr ist noch zu kurz, um einen Gleichgewichtszustand zu erreichen. Bei den Sensitivitätsstudien des mikrophysikalischen Boxmodells in Kapitel 4 waren Einschwingzeiten in der Größenordnung von mehreren Jahren zu beobachten, so daß die hier gezeigten Werte sich im Laufe der Integration noch verändern können. Sie geben jedoch einen guten Überblick, inwieweit Modellergebnisse in dem Bereich der Beobachtungen liegen, und welche Verbesserungen für einen langjährigen Lauf mit berücksichtigt werden müssen.

Abbildung 6.3 zeigt einen Vergleich der simulierten Aerosolmassenkonzentrationen für März nach einem Jahr Integration mit SAGE II-Beobachtungen für April 1991. Das Modell ist in der Lage, die beobachtete Struktur in der Aerosolmasse mit einer globalen Abnahme der Aerosolmasse oberhalb von 20 km und der Ausbildung eines tropischen Minimums unterhalb von 17 km wiederzugeben. Auch die Konzentrationswerte liegen in der gleichen Größenordnung wie die beobachteten, jedoch sind die Modellergebnisse um einen Faktor 1.5 bis 2 gegenüber den SAGE-Messungen zu hoch. Dies ist besonders für die hohen und mittleren Breiten in beiden Hemisphären unterhalb von 20 km auffällig. Hier liegen die Werte in den Simulationen bei  $0.2 \mu\text{g m}^{-3}$  und damit deutlich höher als die aus SAGE II-Beobachtungen ermittelten Daten im Bereich von  $0.1 \mu\text{g m}^{-3}$ . Dieser quantitative Unterschied zwischen den Beobachtungen und den Modellergebnissen ist wahrscheinlich dadurch begründet, daß das Modell nur über einen Zeitraum von einem Jahr integriert worden ist und so die Werte noch durch die Einschwingphase beeinträchtigt werden. Bei den Sensitivitätsstudien des Boxmodells in Kapitel 4 sind z.B. Einschwingphasen von 5 bis 10 Jahren beobachtet worden.

Abbildung 6.4 zeigt einen Vergleich der simulierten Oberflächenkonzentrationen nach

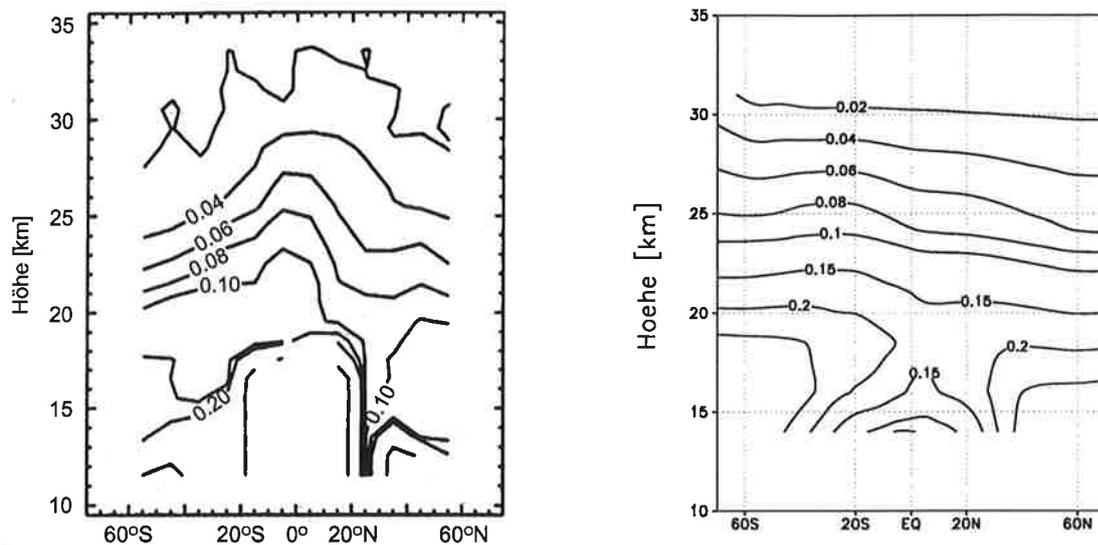


Abbildung 6.3: Vergleich der Aerosolmassen-Konzentrationen in  $[\mu\text{g m}^{-3}]$  zwischen SAGE II-Beobachtungen für April 1991 nach Yue et al. (1994) (links) und ECHAM4-Simulationen mit expliziter Mikrophysik nach einen Jahr Integration für März (rechts).

einem Jahr Integrationszeit mit einer aus SAGE I- und SAGE II- sowie SAM<sup>1</sup> II-Daten aus den Jahren 1979–1981 und 1984–1990 (Hitchmann et al., 1994).

Die simulierten Oberflächenkonzentrationen geben die beobachteten Werte sowohl in der Größenordnung wie auch in der globalen Verteilung sehr gut wieder. So liegen die Werte für Beobachtung und Simulation im tropischen Maximum über  $5 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$  und in den mittleren und in den hohen Breiten in 20 km zwischen  $1 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$  und  $1.5 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$ . In der vertikalen Aufteilung liegt das tropische Maximum im Vergleich zur Klimatologie ein wenig zu niedrig, worauf im folgenden noch näher eingegangen wird. Es ist bei dem Vergleich der Oberflächenkonzentrationen auch gut zu sehen, daß das mikrophysikalische Modell für einen längeren Lauf nicht nur in den ersten sechs Schichten bis ungefähr 14 km, sondern in den ersten 9 Schichten bis ca. 8 km gerechnet werden muß, um auch das Maximum der Oberflächenkonzentration in den Polarregionen gut zu repräsentieren. Die sehr gute Übereinstimmung zwischen Beobachtung und Simulation muß jedoch auch kritisch analysiert werden, da obwohl der Pinatubo und der El Chichón in den Daten von Hitchmann et al. (1994) nicht berücksichtigt wurden, doch in die Auswertung mindestens sieben größere Vulkanausbrüche, wie z.B. der Nevada del Ruiz ( $5^\circ \text{N}$ ) im November 1985 eingeflossen sind.

Die von Thomason et al. (1997) aufgestellte SAGE-Klimatologie der stratosphärischen Aerosoloberflächenkonzentration, die die Jahre 1984–1994 umfaßt, ist ebenfalls durch vulkanische Einflüsse geprägt. Thomason et al. (1997) erhielten Werte in der Größenordnung von  $2 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$ – $5 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$  und eine ähnliche Struktur, wie die in Abbildung 6.4 gezeigte.

<sup>1</sup>SAM: Stratospheric Aerosol Measurement

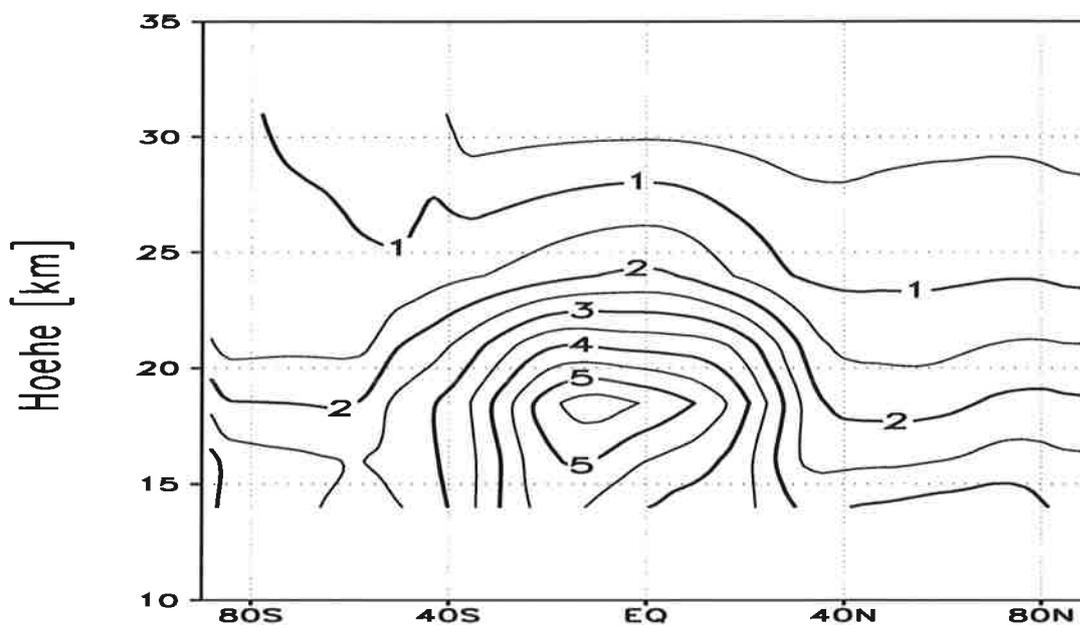
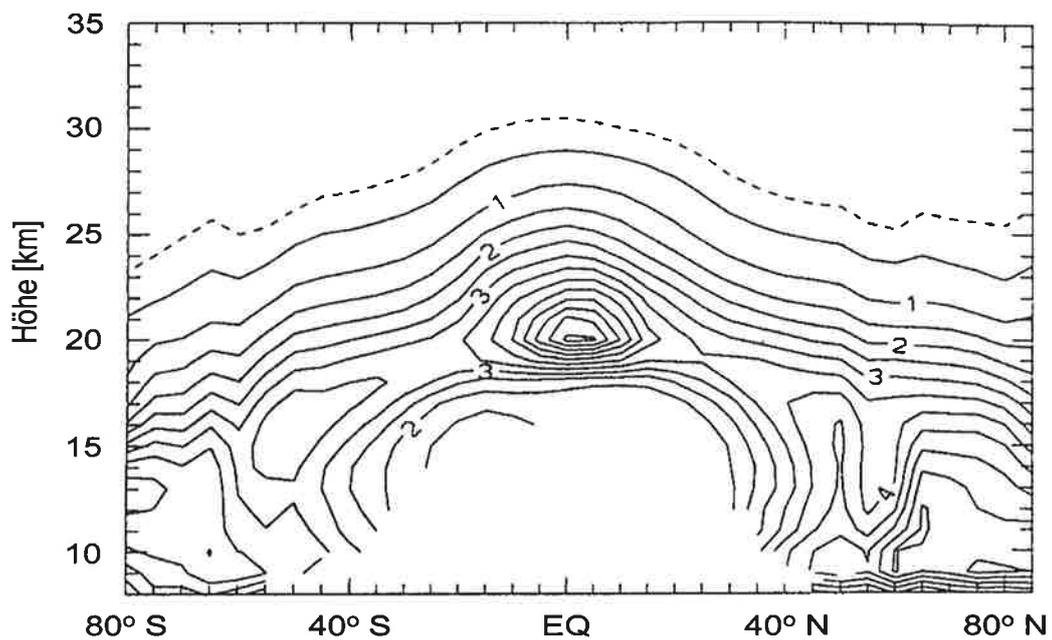


Abbildung 6.4: Vergleich simulierter Aerosol-Oberflächenkonzentration in  $[\mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}]$  (Bild, unten) mit einer von Hitchmann et al. (1994) aus den Jahren 1979–1981 und 1984–1990 erstellten stratosphärischen Aerosolklimatologie (Bild, oben). Für die simulierten Oberflächenkonzentration sind die Werte nach einem Jahr für März angegeben.

Beide Klimatologien unterscheiden sich in ihren Werten und ihrer Struktur von der von der WMO (1992) für das stratosphärische Hintergrundaerosol empfohlenen Oberflächenkonzentrationsverteilung. Die WMO-Oberflächenkonzentrationsverteilung, die im wesentlichen aus SAGE-Daten aus dem Jahr 1989 (Januar –März) besteht, besitzt so z.B. kein tropisches Maximum. Auch liegen die Oberflächenkonzentrationen bei deutlich geringeren Werten mit einem maximalen Wert von  $1 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$  in den Tropen um 19.5 km und Werten zwischen  $0.5 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$  und  $1.25 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$  für die mittleren Breiten. Thomason et al. (1997) zeigten, daß die 10%-Perzentil-Oberflächenverteilung des klimatologischen Mittels der WMO-Verteilung sehr ähnlich ist. Die simulierten Oberflächenkonzentrationen liegen damit gegenüber den WMO-Werten in den mittleren Breiten um einen Faktor 1.5–2 zu hoch, und bestätigen damit die auch schon bei den Massenkonzentrationen beobachtete Differenz. Die Vermutung, daß die Unterschiede zur WMO-Hintergrundverteilung durch die kurze Integrationszeit bedingt sind, ist durchaus plausibel. Die über 10 Jahre gemittelten Klimatologien von Hitchmann et al. (1994) und Thomason et al. (1997) beinhalten vulkanische Störungen und klassifizieren damit Verteilungen, wie sie z.B. in einer späten Erholungsphase nach starken Vulkanausbrüchen gemessen wurden. Bei vulkanischen Störungen sind aber bei der Durchführung der in Kapitel 4 vorgestellten Sensitivitätsstudien ähnliche Prozesse beobachtet worden, wie in der Initialisierungsphase der Hintergrundverteilung. Die vertikale Verschiebung des tropischen Maximums in der Simulation gegenüber den klimatologischen Werten ergibt sich dadurch, daß in einer vulkanisch gestörten Stratosphäre die Teilchenbildung im wesentlichen in größeren Höhen (zwischen 20 km und 25 km) stattfindet, als in der ungestörten Atmosphäre.

Quellen des stratosphärische Hintergrundaerosols und damit eine Erklärung für das tropische Maximum in der Oberflächenkonzentration in der unteren Stratosphäre sind in Abbildung 6.5 zu finden. Abbildung 6.5 a) zeigt, daß zwischen  $30^\circ \text{S}$  und  $30^\circ \text{N}$  und zwischen 100 hPa und 40 hPa mehr als 1 Teilchen  $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$  entsteht. Die homogene binäre Nukleation des Schwefelsäure/Wasser-Systems findet somit im wesentlichen in der unteren tropischen Stratosphäre statt. Anhand von Messungen und eindimensionalen Simulationen zogen Brock et al. (1995) die Schlußfolgerung, daß homogene Nukleation in der oberen tropischen Troposphäre die wesentliche Quelle für stratosphärisches Aerosol ist. In den Simulationen ist zwar die Nukleationsrate in der oberen tropischen Troposphäre relativ hoch, doch liegt das Maximum um 70 hPa und damit höher als bei Brock et al. (1995). Relativ hohe Nukleationsraten sind in Abbildung 6.5 a) ebenfalls in den polaren Breiten in der Nordhemisphäre zu finden. In den Modellergebnissen für Oktober sind entsprechend hohe Nukleationsraten in den antarktischen Breiten zu finden. Messungen (Hofmann et al., 1986; Wilson et al., 1989) und Simulationen (Zhao; 1993) zeigen, daß im polaren Frühjahr ein Anwachsen der CN-Konzentration zu beobachten ist, was durch eine verstärkte homogene Nukleation hervorgerufen wird. Generell zeigt sich somit, daß das dreidimensionale Modell in der Lage ist, die globale Verteilung der Teilchenbildung, dem heutigen Wissenstand entsprechend, zu simulieren.

Bei der Betrachtung der für die binäre homogene Nukleation entscheidenden Größen in Abbildung 6.5 der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ - (b)), der  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration (c)) und der Temperatur (d)) ist zu erkennen, daß die Temperaturverteilung die Nukleation im wesentlichen bestimmt.

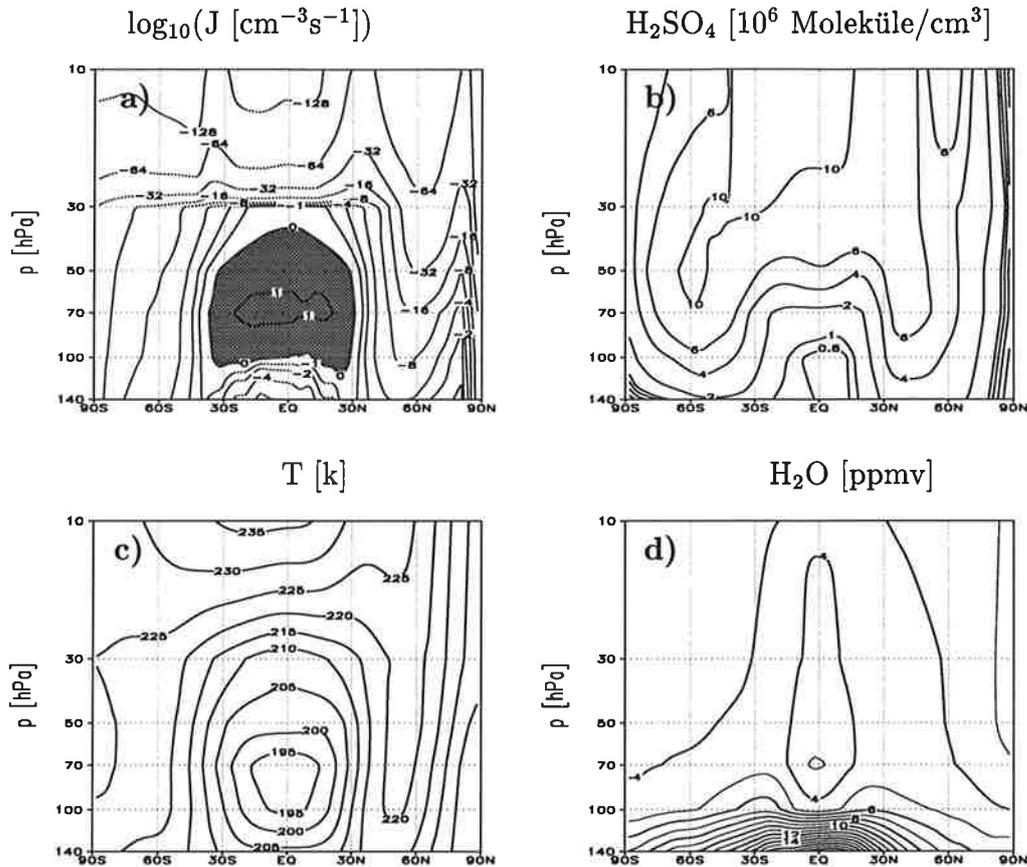


Abbildung 6.5: Zonal-Vertikalschnitte zur Bedeutung der homogenen Nukleation im globalen Modell. a) Dekadischer Logarithmus der homogenen Nukleation, b) Schwefelsäurekonzentration, c) Temperatur und d) Wasserdampfkonzentration.

Homogene Nukleation tritt besonders in den Gebieten auf, wo die Temperatur unterhalb von 200 K liegt, so daß das Maximum in der Nukleationsrate bei 70 hPa mit einem Minimum in der Temperatur  $T < 195 \text{ K}$  einhergeht. In ECHAM4 ist die Temperatur in der oberen tropischen Troposphäre im Vergleich zu ECMWF-Analysen um 2 K zu hoch und in der tropischen Stratosphäre um 2 K – 4 K zu niedrig (Roekner et al., 1996), so daß die Temperaturunterschiede für den vertikalen Unterschied zu Brock et al. (1995) verantwortlich sein können.

Ursachen für die Abweichungen können jedoch ebenfalls Unterschiede in der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ - und in der  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration sein. So ist z.B. in ECHAM3 im Vergleich zu UARS-Messungen die stratosphärische  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration in der unteren tropischen Stratosphäre zu hoch und an den Polen zu niedrig (C. Brühl, pers. Mitteilung). Es gilt daher in der Zukunft zu überprüfen, inwieweit für die dreidimensionale Modellierung von stratosphärischem Aerosol klimatologische Werte für Temperatur und  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration erforderlich sind. Die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration liegt mit Werten zwischen  $2 \cdot 10^6 \text{ Moleküle/cm}^3$  und  $1 \cdot 10^7 \text{ Moleküle/cm}^3$  bei 50 hPa um ein bis zwei Größenordnungen höher, als die von Arnold und Bührke (1983) bei  $44^\circ \text{ N}$  gemessenen Werte im Bereich von  $1 \cdot 10^5 \text{ Mo}$

leküle/cm<sup>3</sup>. Die stetige Zunahme der H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration in der Simulation mit der Höhe begünstigt ebenfalls die homogene Nukleation in der unteren Stratosphäre. Inwieweit die vertikale Verteilung der H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration in der unteren Stratosphäre realistisch ist, ist fraglich. Messungen von Möhler und Arnold (1992) zeigten für nördliche Breiten, zwischen 65° N und 69° N, eine leichte Abnahme des Mischungsverhältnis der Schwefelsäure wenige Kilometer oberhalb der Tropopause. In den eindimensionalen Modellsimulationen von Turco et al. (1979a) liegt für die H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration in der unteren Stratosphäre ein Minimum vor. Für die Modellierung der H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration mit dem dreidimensionalen stratosphärischen Aerosolmodell bleibt somit abzuwarten, welchen vertikalen Verlauf die gasförmige Schwefelsäure nimmt, und in welchem Konzentrationsbereich sie sich nach einem mehrjährigen Lauf befindet. Es erscheint jedoch schon jetzt die bereits in Kapitel 6.1 erwähnte prognostische Behandlung von H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> als unerlässlich, um realistischere Konzentrationen und Vertikalprofile zu simulieren.

Es ist in diesem Zusammenhang ebenfalls zu überprüfen, inwieweit die aus den Boxstudien für die Nukleation und die Kondensation am besten erachteten Ansätze für die globale Modellierung zutreffen. Durch die zusätzliche Berücksichtigung von Advektion und vertikaler Diffusion sowie eines troposphärischen Aerosolteilchenflusses und einer einfachen stratosphärischen Schwefelchemie ist die Bilanzgleichung des stratosphärischen Aerosols erweitert worden. Sensitivitätsstudien mit dem mikrophysikalischen Boxmodell, in Abhängigkeit von dem Stoßkoeffizienten  $\alpha$  und der Nukleationstheorie in Kapitel 4, haben gezeigt, daß sich die Aerosolgrößenverteilung und die H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Konzentration um einen Faktor fünf unterscheiden können, je nachdem, welcher Ansatz gewählt worden ist. Nukleation und Kondensationsparameterisierung müssen daher in dem globalen Zirkulationsmodell erneut ausgetestet werden.

In einem ersten Test für die dreidimensionale Modellierung von stratosphärischem Aerosol hat sich gezeigt, daß das Modell beobachtete Massenkonzentrationen und Oberflächenkonzentrationen in der richtigen Größenordnung reproduzieren kann. Die Bildung neuer Teilchen durch homogene Nukleation ist im wesentlichen von der Temperatur bestimmt und findet in der unteren tropischen Stratosphäre sowie in den polaren Gebieten im Frühjahr statt. Auf Grund der kurzen Integrationszeit ist jedoch keine endgültige Analyse möglich. Es zeigte sich bei der Betrachtung der Ergebnisse, daß für die weitere Modellierung die prognostische Behandlung von H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> sowie eine Erweiterung des Modells über die ersten 9 Schichten notwendig ist. Desweiteren ist eine Implementierung des Modells in eine der erweiterten stratosphärischen Versionen von ECHAM4 notwendig, um eine realistischere stratosphärische Zirkulation zu verwenden. Ebenfalls wäre die Koppelung mit dem Chemiemodell von Steil (1997) auch im Hinblick auf die globale Aerosolverteilung wünschenswert, um die stratosphärische Schwefelchemie besser zu berechnen. Da die H<sub>2</sub>O-Konzentration und die Temperatur einen erheblichen Einfluß auf die mikrophysikalische Parameterisierung haben, sind eventuell auf Grund von Defiziten des Zirkulationsmodells Simulationen mit vorgegebenen Klimatologien erforderlich.



# Kapitel 7

## Zusammenfassung und Ausblick

### 7.1 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit ist ein mikrophysikalisches Modell des stratosphärischen Aerosols für das binäre System Schwefelsäure-Wasser entwickelt worden, welches die Bildung und Entwicklung des stratosphärischen Hintergrundaerosols sowie den beobachteten Verlauf vulkanischer Störungen beschreibt. Dieses Modell ist für den Einbau in das dreidimensionale Zirkulationsmodell ECHAM4 konzipiert worden und gestattet damit, im Gegensatz zu bisherigen Parameterisierungsansätzen, auch die Berücksichtigung und explizite Behandlung von Größenverteilungen in der globalen Modellierung.

Eine Grundlage des stratosphärischen mikrophysikalischen Modells ist die weitgehend explizite Beschreibung der wesentlichen Parameter des binären Systems (Konzentration, Oberflächenspannung, Dichte, Dampfdruck über der Lösung) in Abhängigkeit von Temperatur und Partialdrücken. In dem Modell selbst werden homogene Nukleation, Kondensation von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , Koagulation und Sedimentation berücksichtigt. Das Modell umfaßt ein Größenspektrum des Aerosols von  $3 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}$  bis  $6 \mu\text{m}$ . Die Aerosolgrößenverteilung ist dabei in 44 Klassen aufgeteilt, wobei die Klassenbreite durch Massenverdopplung bestimmt ist.

Für eine Boxversion des mikrophysikalischen Modells sind Sensitivitätsstudien durchgeführt worden. Sie zeigten eine gute Übereinstimmung der berechneten Hintergrund-aerosol-Gleichgewichtsverteilung mit den beobachteten Werten. In Abhängigkeit von den Umgebungsbedingungen und der troposphärischen Quellstärke entsteht ein Grenzyklus der Aerosolkonzentration, der im wesentlichen durch die Wechselwirkung von Kondensation und Nukleation bestimmt wird. Es bilden sich für das Hintergrundaerosol je nach Gewichtung der einzelnen mikrophysikalischen Prozesse monomodale oder bimodale Größenverteilungen aus. Die Sequenz einer Periode des Grenzyklus der modellierten Hintergrundverteilungen kann dabei durch eine Lognormalverteilung, wie sie zur Darstellung von Beobachtungen verwendet wird, beschrieben werden. Ein Vergleich mit Messungen zeigt, daß das mikrophysikalische Modell die beobachteten Teilchenkonzentrationen und Größenverhältnisse für hohe und mittlere Breiten oberhalb von 73 hPa sehr gut wiedergeben kann. Das Modell ist in der Lage, sowohl den beobachteten sehr starken Anstieg des Größenverhältnisses  $N_{15}/N_{25}$  oberhalb von 50 hPa als auch die Ab-

nahme in der Aerosolkonzentration  $N_{15}$  widerzuspiegeln. Da in dem Boxmodell weder Advektion noch vertikale Diffusion berücksichtigt worden sind, können Beobachtungen aus den Tropen oder aus Höhen mit starken vertikalen Austauschprozessen nicht realistisch wiedergegeben werden.

Sensitivitätsstudien mit unterschiedlicher mikrophysikalischer Parameterisierung zeigten, daß das Boxmodell die beobachteten Teilchenkonzentrationen und Größenverhältnisse sehr gut wiedergeben kann, wenn ein Stoßkoeffizient von  $\alpha < 1$  angenommen wird und die Nukleationsraten entweder klassisch oder nach der Hydrattheorie mit SCC-Korrektur berechnet werden. Bei der Abhängigkeit der Sensitivitätsstudien von den Eingabedaten zeigte sich, daß Temperatur- und  $H_2O$ -Änderungen ein anderes Muster in der Aerosolgrößenverteilung in den Boxstudien hervorrufen als Änderungen der  $SO_2$ -Konzentration. Während bei einer Temperatur- und einer  $H_2O$ -Änderung eine Erhöhung der Aerosolkonzentration mit einer Erhöhung des Größenverhältnisses einhergeht, verhalten sich bei einer Veränderung der  $SO_2$ -Konzentration Aerosolkonzentration und Größenverhältnis zueinander umgekehrt.

Das Modell ist in der Lage, das zeitliche Verhalten des stratosphärischen Aerosols nach einer vulkanischen Störung in guter Näherung zu Beobachtungswerten zu simulieren. Insbesondere ist, ohne daß zusätzliche Annahmen gemacht werden müssen, die charakteristische Entwicklungszeit des Aufbaus und des langsamem Abbaus gut getroffen. Die zeitliche Entwicklung des effektiven Radius in der Post-Pinatuboperiode konnte von dem Boxmodell sehr gut wiedergegeben werden. Bei den entsprechenden Oberflächenkonzentrationen traten nach einem Jahr Simulation Differenzen zwischen Modellergebnissen und Beobachtungen auf Grund der nicht vorhandenen vertikalen Auflösung auf.

Für die globale Modellierung ist das mikrophysikalische Modell um ein einfaches Modul für die stratosphärische Schwefelchemie erweitert worden. Darüber hinaus ist das mikrophysikalische Modell mit dem troposphärischen Schwefelkreislauf von Feichter et al. (1996) gekoppelt worden, der Transport, Emission, Chemie sowie die nasse und trockene Deposition von gasförmigen Dimethylsulfid (DMS) und Schwefeldioxid ( $SO_2$ ) sowie  $SO_4^{2-}$  als flüssiges Sulfataerosol behandelt. Die Koppelung zwischen dem mikrophysikalischen Modell und dem troposphärischen Schwefelkreislauf stellt eine bisher noch nicht vorhandene Kombination dar, die es ermöglicht, für das stratosphärische Aerosol global und jahreszeitlich verschiedene troposphärische  $SO_2$ - und  $SO_4^{2-}$ -Quellen zu berücksichtigen. Erste Ergebnisse der dreidimensionalen Modellierung zeigen, daß das Modell die beobachteten Massenkonzentrationen und Oberflächenverteilungen in der richtigen Größenordnung reproduzieren kann. Die Bildung neuer Teilchen durch homogene Nukleation wird hauptsächlich von der Temperatur bestimmt, und findet im wesentlichen in der unteren tropischen Stratosphäre sowie in den polaren Gebieten im Frühjahr statt. Auf Grund der kurzen Integrationszeit sind jedoch im Rahmen dieser Arbeit nur qualitative Aussagen möglich.

In einem weiteren Schwerpunkt dieser Arbeit sind mit der ECHAM4-L19-Version transiente Pinatuboexperimente mit prognostischem Sulfataerosol durchgeführt worden. Um dabei mit dem Klimamodell den bestimmten Zeitraum von 1991 bis 1992 realistisch zu simulieren, ist ein Assimilationsverfahren angewendet worden. Es zeigte sich bei den Pinatubosimulationen die generelle Schwierigkeit von Gitterpunkts- und spektralen

Modellen, den in der Stratosphäre auf isentropen Flächen stattfindenden großräumigen Transport zu simulieren. Dies wurde besonders bei einem Vergleich der Pinatubosimulationen mit stationären Lidar- und Ballondaten aus der nördlichen Hemisphäre deutlich, die eine sehr gute Übereinstimmung für Laramie ( $41.2^\circ$  N) und Tsukuba ( $36.1^\circ$  N), jedoch Abweichungen für Garmisch ( $47.5^\circ$  N) und Geesthacht ( $53.3^\circ$  N) zeigten.

Durch die Einführung der in Kapitel 5.3.2 vorgestellten Reduzierung des vertikalen Transports auf einer isentropen Fläche von 380 K, STE-Parameterisierung, die nach Holton et al. (1995) die Grenze zwischen stratosphärischer Ober- und Unterwelt markiert, ist jedoch im Rahmen dieser Arbeit eine wesentliche Verbesserung für den stratosphärischen Tracertransport erzielt worden.

In den ECHAM4-Simulationen mit STE-Parameterisierung wird die beobachtete globale Ausbreitung der Pinatubowolke in der nördlichen Hemisphäre im ersten halben Jahr nach Beginn der Eruption gut wiedergeben. Es ist jedoch in den Simulationen ab Herbst 1991 ein zu starker meridionaler und vertikaler Transport im Vergleich zu den Messungen zu erkennen. Die in der ECHAM4-L19-Version kaum modellierte residuale stratosphärische Zirkulation ist eine der Ursachen für die Unterschiede zwischen der simulierten und der beobachteten Transportcharakteristik des Pinatuboaerosols. Ein erster Test mit der höherauflösenden Version des ECHAM4-Modells, ECHAM4-L39MPI, zeigte, daß zirkulationsbedingte Unterschiede behoben werden. Es wurde jedoch, in der 39-Schichtenversion, ebenfalls, wie in der 19-Schichtenversion, ein zu schneller Transport in die nördlichen Breiten und das Fehlen des tropischen Maximums im 50 hPa-Niveau festgestellt. Grund dafür ist die fehlende Ausbildung eines tropischen Aerosolreservoirs in den ECHAM4-Simulationen, so daß im wesentlichen nur der Transport des Pinatuboaerosols im unteren Transportregime simuliert wird.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen Modellsimulation und Beobachtung stellt der fehlende anfängliche Transport der Aerosolwolke in die Südhemisphäre dar, wodurch das tropische Aerosolmaximum in den Simulationen zu weit nördlich liegt. Interaktive Simulationen (Young et al., 1994) haben gezeigt, daß verstärkte IR-Absorption durch die erhöhte Aerosolkonzentration lokale Zirkulationsänderungen hervorrufen können. Die durch die lokale Heizung verursachte Aufwärtsbewegung sorgt nicht nur für eine anfängliche Ausbreitung der Aerosolwolke über den Äquator hinweg, sondern wirkt auch dem schnellen vertikalen Abwärtstransport entgegen. Darin könnte ein wesentlicher Grund für die vorhandenen Unterschiede zwischen Simulation und Beobachtung in der fehlenden Rückkoppelung zwischen Aerosol und Strahlung liegen.

Interaktive Simulationen der Pinatuboepisode sind aber nur mit der höheraufgelösten ECHAM4-L39-Version sinnvoll. In einer Vorabstudie sind anhand von Mierechnungen geeignete optische Parameter für das stratosphärische Aerosol bestimmt worden. Simulationen mit der eindimensionalen Morcretteversion zeigten dabei, daß Unsicherheiten in der Strahlungsberechnung auf Grund sich zeitlich ändernder Größenverteilungen in erster Näherung als vernachlässigbar anzusehen sind. Die mit dem ECHAM4-L19 berechneten Heizraten und Strahlungsflüsse stimmten dabei gut mit Literaturwerten überein.

## 7.2 Ausblick

Es wurde in Kapitel 6 gezeigt, daß für die dreidimensionale Modellierung des stratosphärischen Aerosols einige Erweiterungen notwendig sind. Dies beinhaltet vor allem die prognostische Behandlung von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und damit einhergehend einen einfachen Parameterisierungsansatz für die Gas-Teilchen-Umwandlung in der Troposphäre. Als eine weitere Ergänzung ist die prognostische Behandlung von COS geplant. Das in ECHAM4 implementierte mikrophysikalischen Modell ist besonders in Hinblick auf seine mikrophysikalischen Parameterisierungen und den vertikalen Tracertransport in den verschiedenen Versionen des ECHAM4-Modells auszutesten, um die optimale Modellvariante für die dreidimensionale Modellierung des stratosphärischen Aerosols zu ermitteln.

Durch die Koppelung des mikrophysikalischen Modells mit dem troposphärischen Schwefelkreislauf von Feichter et al. (1996) werden für das stratosphärische Aerosol global und saisonal unterschiedliche troposphärische  $\text{SO}_2$ - und  $\text{SO}_4^{2-}$ -Quellen berücksichtigt. Es ist damit möglich zu überprüfen, welche Ursachen dem in den letzten Jahren beobachteten Anstieg des stratosphärischen Hintergrundaerosols zu Grunde liegen. Mögliche Ursachen dafür könnten einerseits anthropogene  $\text{SO}_2$ -Emissionen, andererseits jedoch auch eine in den letzten Jahren beobachtete verstärkte Vulkanaktivität oder eine durch den atmosphärischen  $\text{CO}_2$ -Anstieg bedingte Veränderung sein. In diesem Zusammenhang ist auch die Möglichkeit gegeben, die Quellen für stratosphärisches Aerosol zu klassifizieren. Eine beabsichtigte Weiterentwicklung des dreidimensionalen stratosphärischen Aerosolmodells besteht in der Koppelung von Mikrophysik und Strahlung. So könnten für alle 44 Aerosolklassen die für das Strahlungsmodell benötigten optischen Parameter vorgegeben werden. Dieses hätte den Vorteil einer in sich konsistenten Formulierung sowie der Berücksichtigung von zeitlich variablen Größenverteilungen im Strahlungscode.

Eine der wichtigsten Aufgaben in der nahen Zukunft ist die Koppelung des mikrophysikalischen Modells mit dem chemischen Modell von Steil (1997).

Mit dem gekoppelten chemisch-mikrophysikalischen Modell, welches die Wechselwirkung zwischen Chemie, Mikrophysik und Strahlung berücksichtigt, ist es möglich, die physikalisch-dynamischen und die chemischen Anteile der Ozonzerstörung nach dem Ausbruch des Pinatubo durch das stufenweise Einbeziehen der Effekte in die Modellsimulationen zu trennen. Zunächst ist ein interaktives Pinatuboexperiment mit der ECHAM4-L39MPI-Version geplant, um zu sehen, inwieweit sich die Transportcharakteristik gegenüber dem assimilierten ECHAM4-L19-Experiment verändert.

Desweiteren sind Szenarienrechnungen im Klimamode für verschiedene Randbedingungen geplant, um die Auswirkungen von starken Vulkaneruptionen auf die Ozonkonzentration abzuschätzen.

Dies bedeutet im einzelnen Rechnungen ohne Chlor und mit erhöhter anthropogener Chlorkonzentration in der Stratosphäre. Ebenfalls sind Rechnungen für Bedingungen mit vorindustrieller  $\text{CO}_2$ -Konzentration und mit zwei- bzw. dreifacher effektiver Treibhausgaskonzentration in der Atmosphäre geplant, um die Auswirkung des weiter ansteigenden Treibhauseffektes und der damit geänderten Zirkulations- und Temperaturstruktur der Stratosphäre in Verbindung mit einer variablen Aerosolkonzentration auf die Ozonschicht zu prognostizieren. Darüber hinaus ist zu untersuchen, welchen Einfluß zusätzlicher Eintrag von  $\text{H}_2\text{O}$  und anderen Spurengasen bei starken Vulkanausbrüchen

hat.

Eine weitere interessante Untersuchung im Hinblick auf die klimatischen Auswirkungen vulkanischer Eruptionen ist die Modellierung sehr großer Vulkanausbrüche aus den letzten Jahrhunderten wie des Tambora, 1815 oder des Laki 1783. Im Hinblick auf längerfristige Klimaveränderungen ist die Simulation prähistorischer Vulkanausbrüche wie z.B. der Tobaeruption vor 73500 Jahren von Interesse, insbesondere im Hinblick auf die Änderung der Beeinflussung der Atmosphäre.

Für die Zukunft wäre zudem die Koppelung des Boxmodells mit einem Trajektorienmodell wünschenswert, um bessere Prozesstudien betreiben und die Simulationsergebnisse direkt mit Flugzeugmessungen vergleichen zu können. Ferner bietet sich an, das binäre System Schwefelsäure/Wasser auf ein ternäres System zu erweitern. In der Stratosphäre ist dabei vor allem die Bildung von polaren stratosphärischen Wolken interessant und damit die Ausweitung auf das ternäre System  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ . Für die Troposphäre bietet sich eine Ausweitung auf das ternäre System  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{NH}_4\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  an, um die 'Nukleationsbursts' in der marinen Grenzschicht besser zu verstehen. Darüber hinaus ist die Berücksichtigung von Aerosolteilchen mit einem unlöslichen Kern eine sinnvolle Erweiterung des Aerosolmodells, um heterogene Kondensation von gasförmiger Schwefelsäure auf Aschepartikel und Rußteilchen zu modellieren.

### 7.3 Schlußbemerkung

Im Rahmen dieser Arbeit ist ein mikrophysikalisches Modell für stratosphärisches Aerosol entwickelt und in das Hamburger Zirkulationsmodell ECHAM4 implementiert worden. Die Koppelung des mikrophysikalischen Modells mit einem troposphärischen Schwefelkreislauf stellt eine bisher einzigartige Verbindung dar, die es ermöglicht, für das stratosphärische Aerosol global und saisonal unterschiedliche troposphärische Quellen zu berücksichtigen. Das mikrophysikalische Modell als Teil eines Chemie-Mikrophysik-Klimamodells bietet darüber hinaus eine wesentliche Basis zur Trennung von dynamischen und chemischen Effekten in der Atmosphäre. Mit dieser Arbeit ist somit ein wichtiger Beitrag zur Berücksichtigung stratosphärischen Aerosols als prognostische Variable im Klimamodell geleistet worden, die zudem eine wichtige Grundlage für nachfolgende wissenschaftliche Untersuchungen geschaffen hat.



# Anhang A

## A.1 Daten für Dichte und Oberflächenspannung

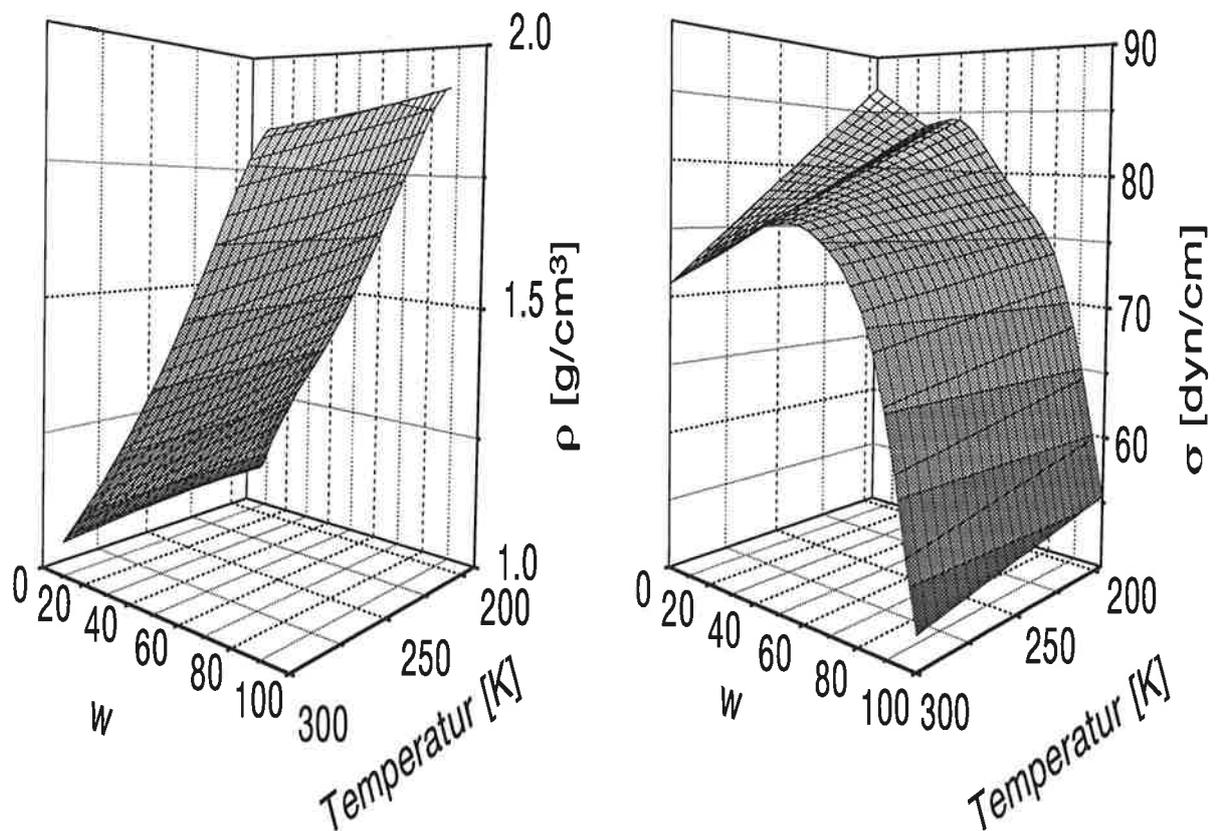


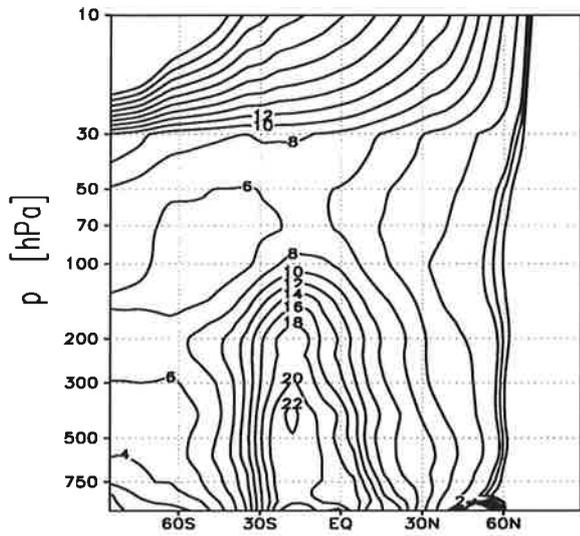
Abbildung A.1: Daten für die Dichte  $\rho$  (links) und die Oberflächenspannung  $\sigma$  (rechts) in Abhängigkeit von der Temperatur und der Schwefelsäurekonzentration.

## A.2 Eingabeparameter für Sensitivitätsstudien

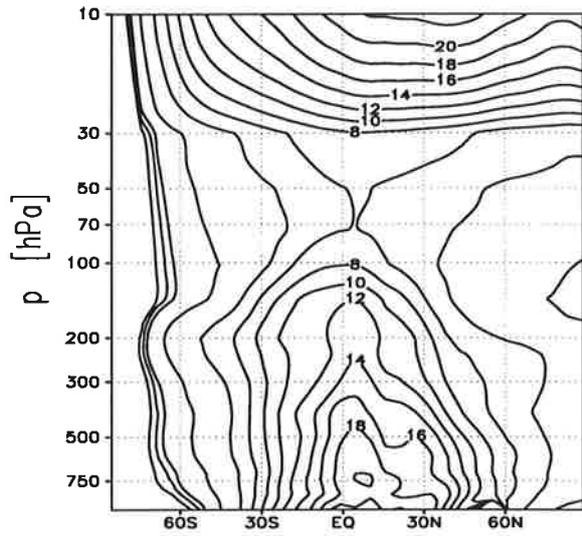
P [hPa]	T <sup>+</sup> [K]	OH [cm <sup>-3</sup> ]	SO <sub>2</sub> [ppbv]	H <sub>2</sub> O <sup>+</sup> [ppmv]	T* [K]	H <sub>2</sub> O* [ppmv]
Januar						
30	220	3.3 10 <sup>5</sup>	0.017	1.8	217.5	4.5
50	215.75	2.3 10 <sup>5</sup>	0.023	2.2	214.88	4.0
73	221	2.0 10 <sup>5</sup>	0.026	2.7	-	-
100	215	1.75 10 <sup>5</sup>	0.041	4.5	217.75	4
Juli						
30	223.5	7.7 10 <sup>5</sup>	0.01	1.9	222.75	4
50	216.5	5.8 10 <sup>5</sup>	0.023	2.5	217.45	3.8
73	215	5.25 10 <sup>5</sup>	0.026	4	-	-
100	210	5.35 10 <sup>5</sup>	0.041	6.7	210.65	7
April						
30	220	6.8 10 <sup>5</sup>	0.017	1.8	218.55	4.
50	215.5	4.7 10 <sup>5</sup>	0.023	2.4	215.55	3.5
73	218	4.2 10 <sup>5</sup>	0.026	3.0	-	-
100	216	3.8 10 <sup>5</sup>	0.041	5.	213.75	3.
Oktober						
30	223	4.3 10 <sup>5</sup>	0.017	1.9	218.75	4.
50	217	3.3 10 <sup>5</sup>	0.023	2.6	214.65	4.
73	218.5	2.8 10 <sup>5</sup>	0.026	3.7	-	-
100	210	2.5 10 <sup>5</sup>	0.041	5.75	210.75	5.

Tabelle A.1: Eingabedaten für die Sensitivitätsstudien in 41° N. + bezeichnet die Daten aus den ECHAM3 T21 Simulationen von Steil (1997). \* bezeichnet beobachtete Daten für die Temperatur von Pawson et al. (1993) und für H<sub>2</sub>O von Rind et al. (1993).

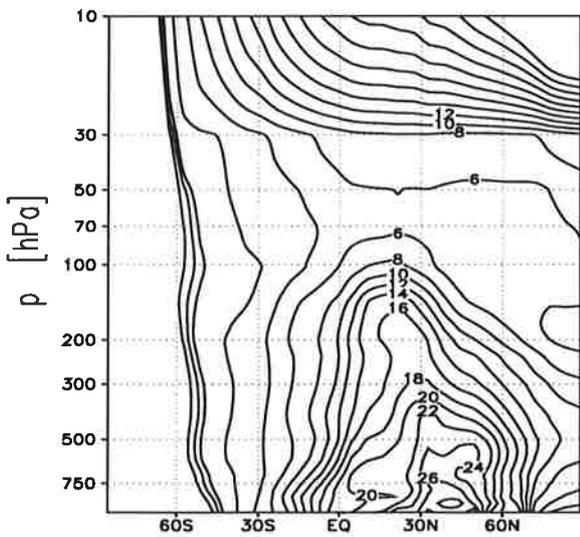
# OH [ $10^5 \text{cm}^{-3}$ ]



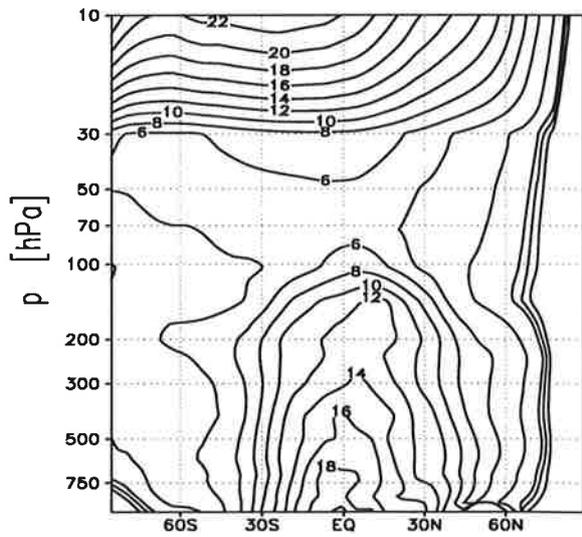
Januar



April



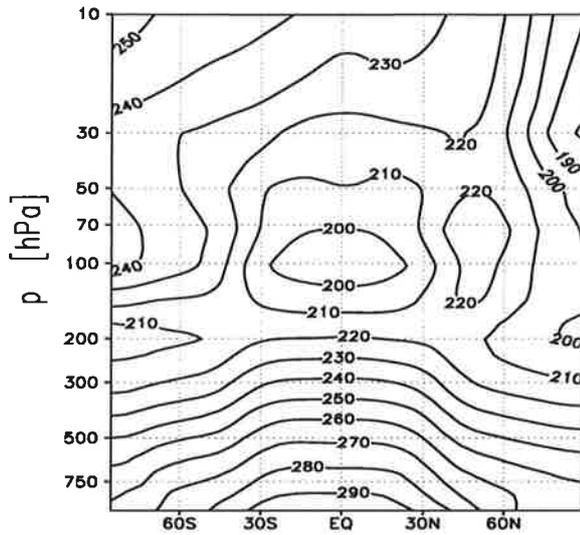
Juli



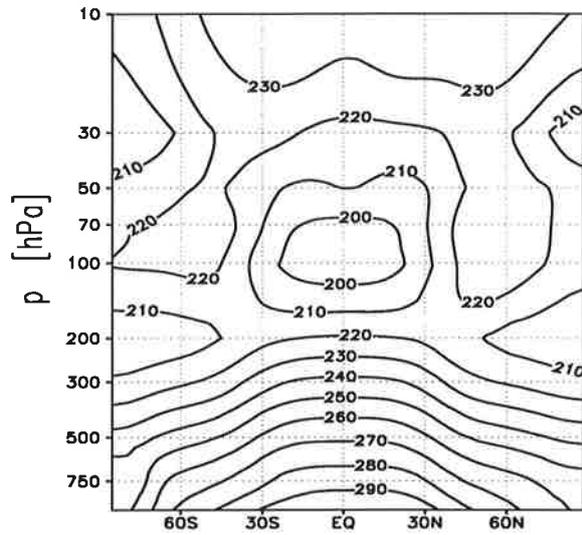
Oktober

Abbildung A.2: Monatlich und zonal gemittelte Werte der OH-Konzentration. Die Daten sind gemittelte Werte eines 12 Jahre-Feedback-Laufes mit ECHAM3 (Steil, 1997).

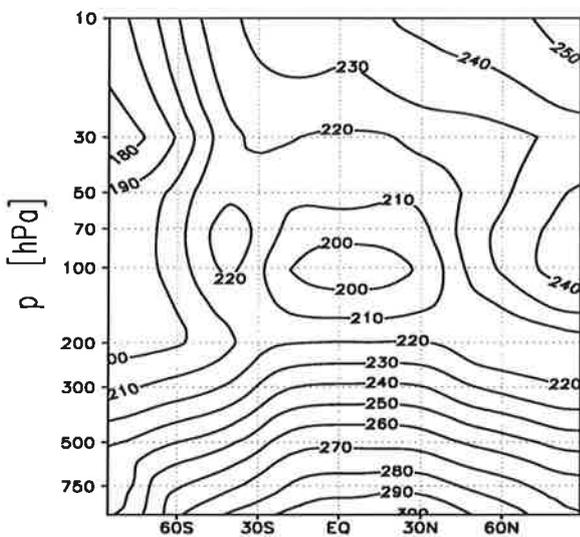
# Temperatur [ K ]



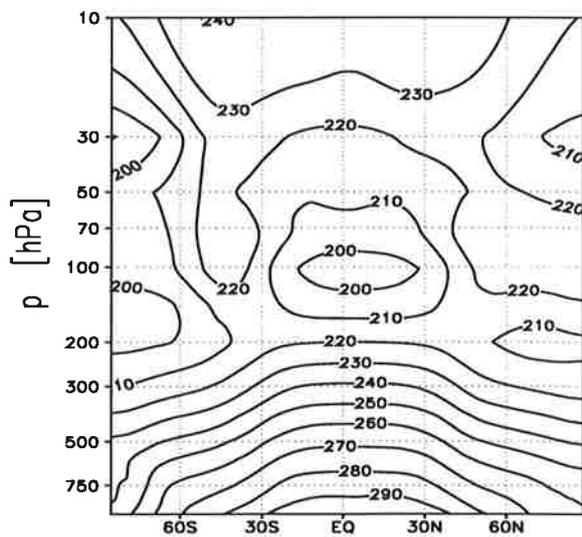
Januar



April



Juli

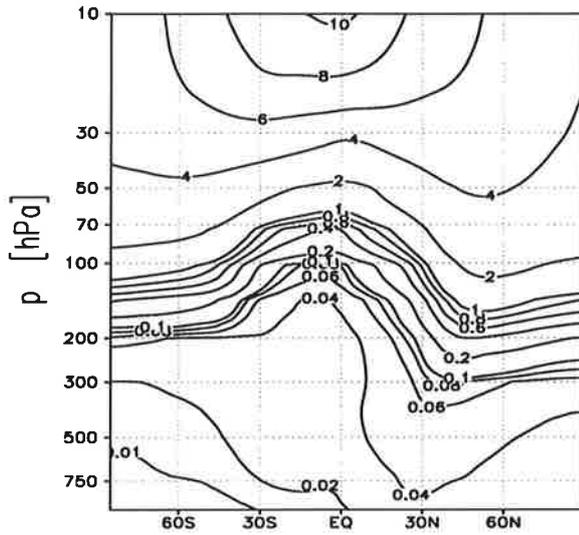


Oktober

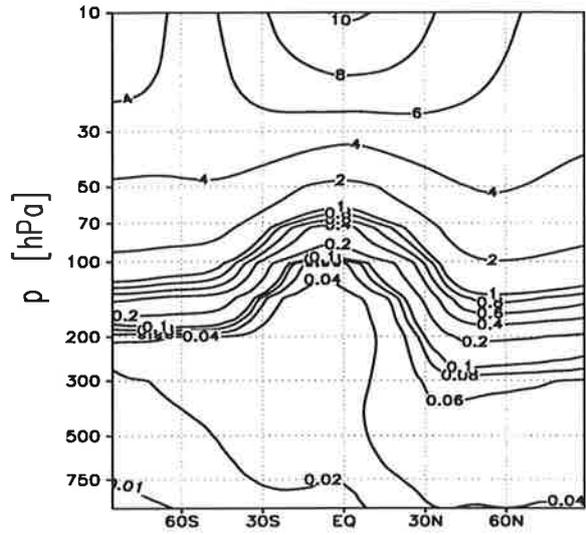
Abbildung A.3: Monatlich und zonal gemittelte Werte der Modelltemperatur. Die Daten sind gemittelte Werte eines 12 Jahre-Feedback-Laufes mit ECHAM3 (Steil, 1997).



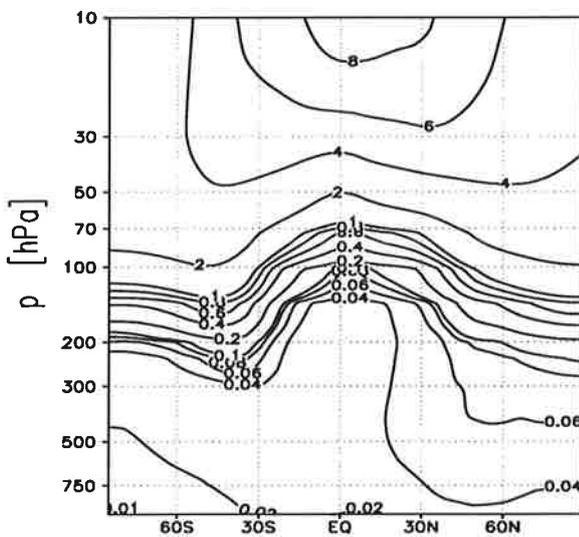
# O<sub>3</sub> [ ppmv ]



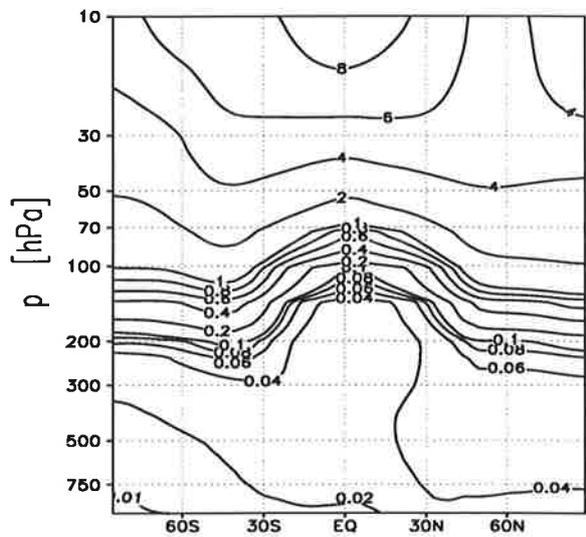
Januar



April



Juli



Oktober

Abbildung A.5: Monatlich und zonal gemittelte Werte der O<sub>3</sub>-Konzentration. Die Daten sind gemittelte Werte eines 12 Jahre-Feedback-Laufes mit ECHAM3 (Steil, 1997).

### A.3 Optische Parameter für das ECHAM4-Strahlungsschema

Extinktionskoeffizient [ $\text{cm}^2/\text{Teilchen}$ ]					
Band	A	B	C	D	E
1	$1.294 \cdot 10^{-9}$	$4.751 \cdot 10^{-10}$	$1.212 \cdot 10^{-8}$	$5.504 \cdot 10^{-8}$	$1.628 \cdot 10^{-9}$
2	$7.568 \cdot 10^{-10}$	$1.901 \cdot 10^{-10}$	$9.423 \cdot 10^{-9}$	$6.288 \cdot 10^{-8}$	$1.006 \cdot 10^{-9}$
3	$6.198 \cdot 10^{-11}$	$1.947 \cdot 10^{-11}$	$6.482 \cdot 10^{-10}$	$1.142 \cdot 10^{-8}$	$4.457 \cdot 10^{-11}$
4	$2.708 \cdot 10^{-11}$	$9.396 \cdot 10^{-12}$	$2.777 \cdot 10^{-10}$	$3.921 \cdot 10^{-9}$	$1.582 \cdot 10^{-11}$
5	$1.054 \cdot 10^{-10}$	$3.634 \cdot 10^{-11}$	$1.101 \cdot 10^{-9}$	$1.577 \cdot 10^{-8}$	$7.337 \cdot 10^{-11}$
6	$1.361 \cdot 10^{-10}$	$4.448 \cdot 10^{-11}$	$1.428 \cdot 10^{-9}$	$2.311 \cdot 10^{-8}$	$7.312 \cdot 10^{-11}$
7	$1.963 \cdot 10^{-11}$	$6.924 \cdot 10^{-12}$	$2.016 \cdot 10^{-10}$	$2.716 \cdot 10^{-9}$	$5.965 \cdot 10^{-12}$
Absorptionskoeffizient [ $\text{cm}^2/\text{Teilchen}$ ]					
Band	A	B	C	D	E
1	$3.489 \cdot 10^{-17}$	$9.685 \cdot 10^{-18}$	$3.7633 \cdot 10^{-16}$	$4.966 \cdot 10^{-15}$	$7.231 \cdot 10^{-17}$
2	$2.004 \cdot 10^{-12}$	$6.023 \cdot 10^{-13}$	$2.104 \cdot 10^{-10}$	$2.740 \cdot 10^{-10}$	$2.291 \cdot 10^{-11}$
3	$5.485 \cdot 10^{-11}$	$1.901 \cdot 10^{-11}$	$5.796 \cdot 10^{-9}$	$8.003 \cdot 10^{-9}$	$4.033 \cdot 10^{-11}$
4	$2.633 \cdot 10^{-11}$	$9.365 \cdot 10^{-12}$	$2.730 \cdot 10^{-10}$	$3.622 \cdot 10^{-9}$	$1.555 \cdot 10^{-11}$
5	$1.005 \cdot 10^{-10}$	$3.606 \cdot 10^{-11}$	$1.056 \cdot 10^{-9}$	$1.343 \cdot 10^{-8}$	$7.134 \cdot 10^{-11}$
6	$1.282 \cdot 10^{-10}$	$4.440 \cdot 10^{-11}$	$1.359 \cdot 10^{-9}$	$1.914 \cdot 10^{-8}$	$7.053 \cdot 10^{-11}$
7	$1.931 \cdot 10^{-11}$	$6.92 \cdot 10^{-12}$	$1.999 \cdot 10^{-10}$	$2.603 \cdot 10^{-9}$	$5.897 \cdot 10^{-12}$
Asymmetriefaktor					
Band	A	B	C	D	E
1	0.7262	0.6921	0.7429	0.7201	0.7177
2	0.6898	0.5891	0.7234	0.7100	0.5404
3	0.2943	0.0971	0.1451	0.2920	0.2038
4	0.1323	0.0246	0.0323	0.0603	0.0491
5	0.1769	0.0480	0.0676	0.1332	0.1008
6	0.1361	0.0517	0.0738	0.1426	0.1153
7	0.0890	0.0135	0.0170	0.0313	0.2430

Tabelle A.2: Optische Parameter für die in ECHAM4 vorhandenen Wellenlängenbereiche. Die optischen Parameter für das erste und das sechste langwellige Band werden zusammen behandelt. A–D kennzeichnen vier unterschiedliche Lognormalverteilungen A ( $r_m = 0.0838 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 2.3$ ), B ( $r_m = 0.075 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.8$ ), C ( $r_m = 0.3 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.5$ ) und D ( $r_m = 0.8 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.3$ ). E kennzeichnet die in ECHAM4 für die Klasse 11 vorgegebenen Parameter.

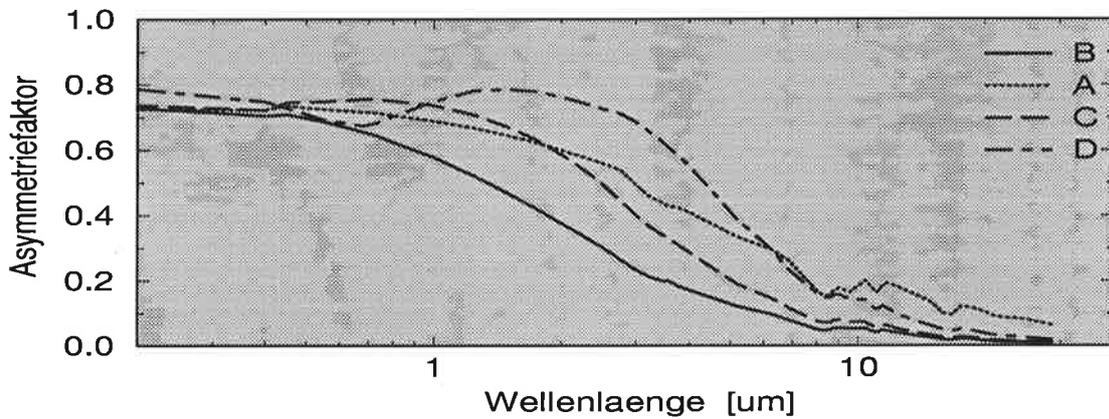
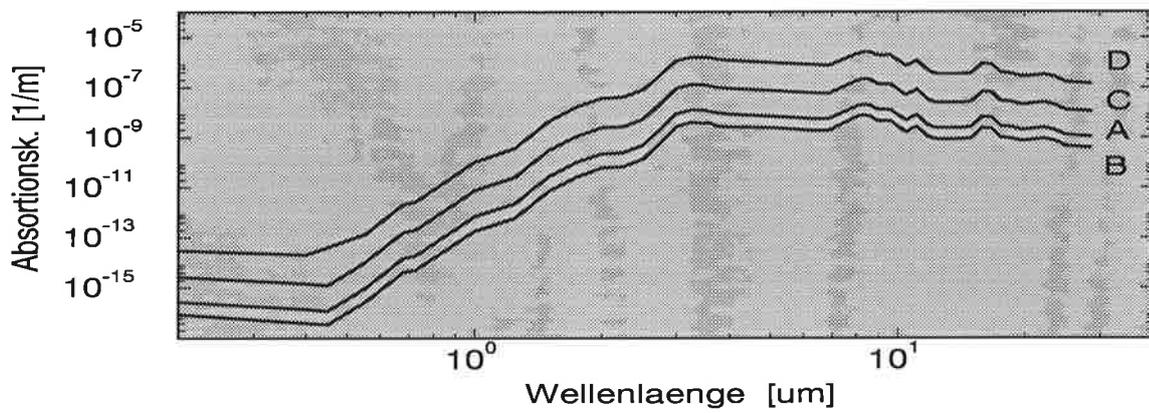
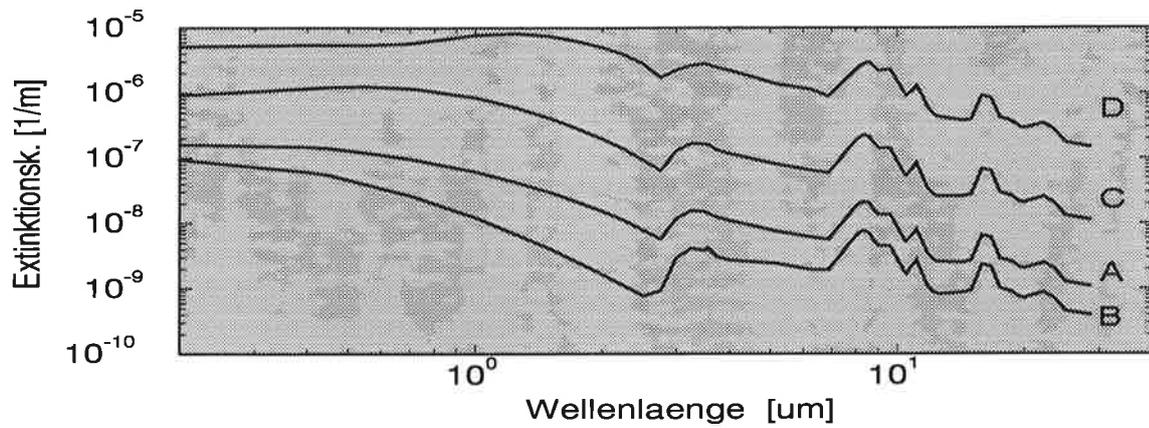
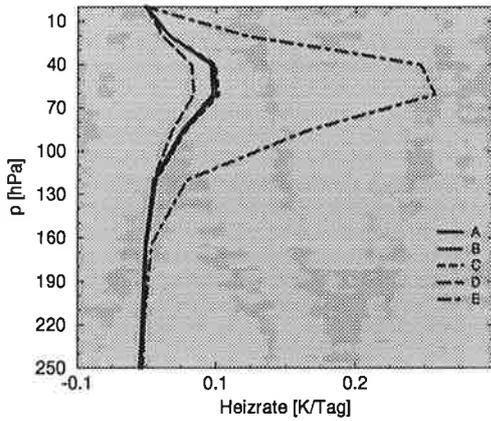


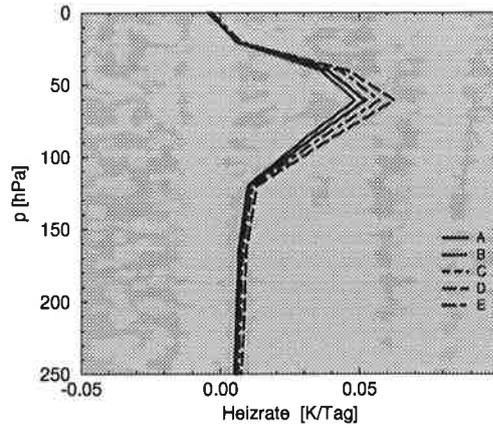
Abbildung A.6: Vergleich optischer Parameter über den Wellenlängenbereich von ECHAM4 für vier verschiedene Lognormalverteilungen A ( $r_m = 0.0838 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 2.3$ ), B ( $r_m = 0.075 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.8$ ), C ( $r_m = 0.3 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.5$ ) und D ( $r_m = 0.8 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.3$ ). Für die Mierechnung wurde eine 75%  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Lösung angenommen.

## Solar

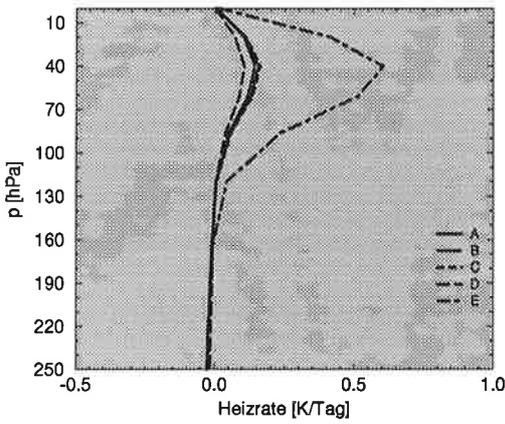
## Terrestrisch



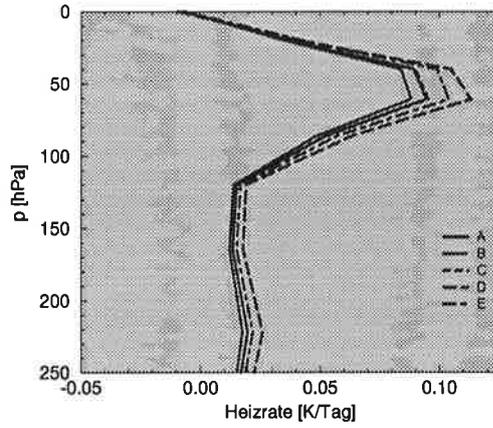
August 1991



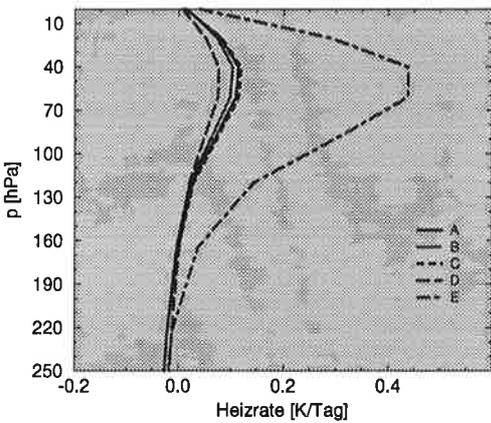
August 1991



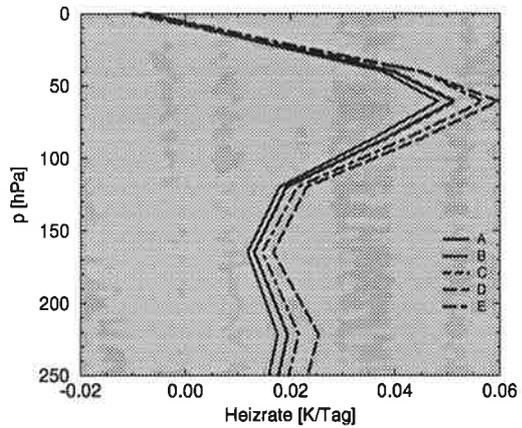
Oktober 1991



Oktober 1991



Januar 1991

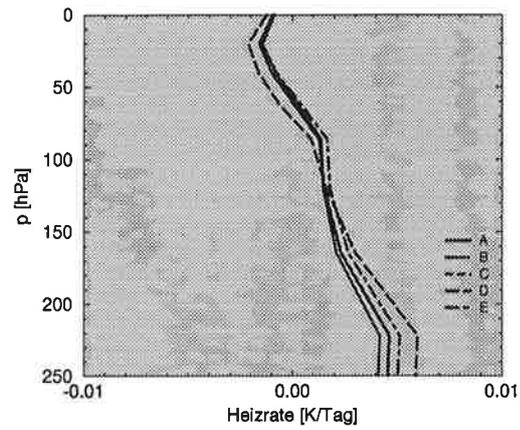
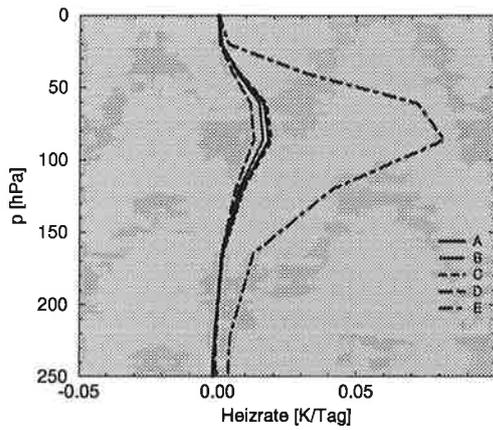


Januar 1991

Abbildung A.7: Mit der eindimensionalen ECHAM4-Version berechnete Heizraten in [K/Tag] für Profile des Experiments e) und für 30° N. A–D kennzeichnen vier unterschiedliche Lognormalverteilungen A ( $r_m = 0.0838 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 2.3$ ), B ( $r_m = 0.075 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.8$ ), C ( $r_m = 0.3 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.5$ ) und D ( $r_m = 0.8 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.3$ ). E kennzeichnet den im ECHAM4 vorliegenden Standardfall.

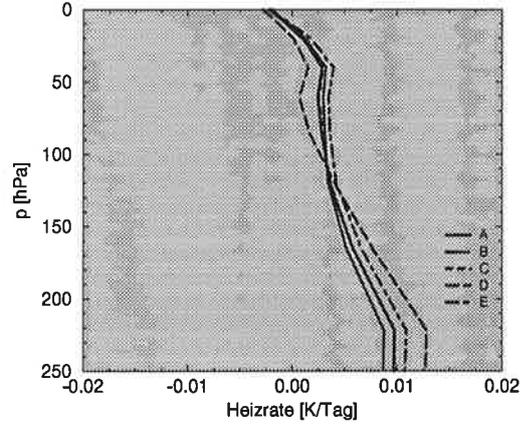
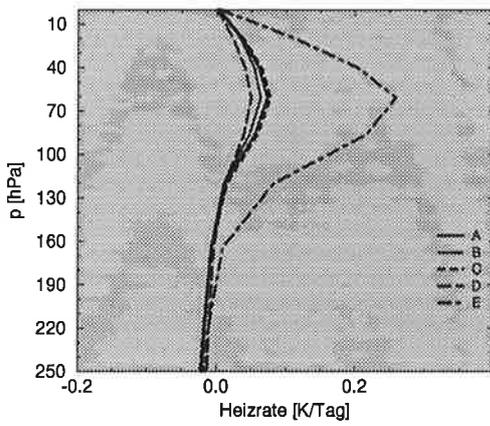
## Solar

## Terrestrisch



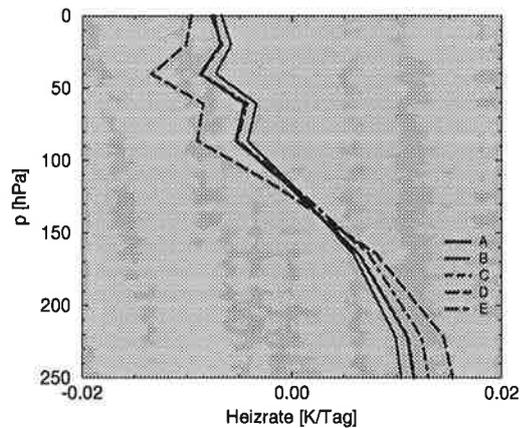
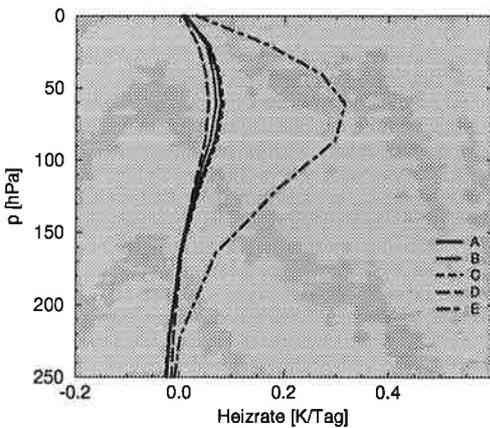
August 1991

August 1991



Oktober 1991

Oktober 1991



Januar 1992

Januar 1992

Abbildung A.8: Mit der eindimensionalen ECHAM4-Version berechnete Heizraten in [K/Tag] für Profile des Experiments e) und für 60° N. A–D kennzeichnen vier unterschiedliche Lognormalverteilungen A ( $r_m = 0.0838 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 2.3$ ), B ( $r_m = 0.075 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.8$ ), C ( $r_m = 0.3 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.5$ ) und D ( $r_m = 0.8 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_s = 1.3$ ). E kennzeichnet den im ECHAM4 vorliegenden Standardfall.

# Anhang B

## B.1 Nukleation

### B.1.1 Thermodynamik von Hydraten

#### Verteilung der Hydrate

In einem Gasgemisch aus Säure- und Wassermoleküle liegen die Säuremoleküle meist als Hydrate mit einem oder mehreren  $H_2O$ -Molekülen vor, wie Heist und Reiss (1974) theoretisch bewiesen haben. Diese Theorie der Hydratbildung wurde von Jaeger-Voirol et al. (1987) und Jaeger-Voirol und Mirabel (1988) überarbeitet und ist heutzutage allgemein anerkannt. Betrachtet man ein binäres Gemisch aus Wasser und Säuremolekülen so ist die Summe der Moleküle,  $N_1$  und  $N_2$ , konstant.

$$N_1 = \bar{N}_1 + \sum_h h \left[ \sum_a N(a, h) \right] \quad (B.1)$$

$$N_2 = \bar{N}_2 + \sum_a a \left[ \sum_h N(a, h) \right] \quad (B.2)$$

Im folgenden bezieht sich 1 auf Wasser- und 2 auf Säuremoleküle,  $\bar{N}_i$  ist die Anzahl der freien Moleküle und  $N(a, h)$  bestimmt die Anzahl der Hydrate die  $a$  Säure- und  $h$  Wassermoleküle erhalten. In der herkömmlichen Theorie werden Hydrate als flüssige Tropfen behandelt, daher wird der Betrag der freien Energie,  $\overline{\Delta G}(a, h)$ , welcher für die Bildung der Hydrate benötigt wird, folgendermaßen ausgedrückt:

$$\overline{\Delta G}(a, h) = h (\mu_1 - \bar{\phi}_1) + a (\mu_2 - \bar{\phi}_2) + 4\pi\sigma(a, h) r(a, h)^2 \quad (B.3)$$

mit  $\mu_i$ , dem chemischen Potential von  $i$  in der flüssigen Phase, und  $\bar{\phi}_i$  dem chemischen Potential von  $i$  als freie Moleküle in einer gasförmigen Mischung, die Hydrate beinhaltet. Werden die Hydrate als individuelle Spezies betrachtet, so gilt:

$$\phi(a, h) = \phi^0(a, h) + k_b T \ln \left( -\frac{N(a, h)}{N_t} \right) \quad (B.4)$$

wobei  $N_t$  ist die Gesamtzahl aller Moleküle ist und

$$\phi^0(a, h) = a\mu_2 + h\mu_1 + 4\pi\sigma(a, h) r(a, h)^2 \quad (B.5)$$

der Standardzustand, für den Fall, daß sich das chemische Potential auf ein Gas bezieht, welches nur aus Hydraten besteht. Für Gleichgewichtsbedingungen sind das chemische Potential der freien Moleküle und der Hydrate identisch.

$$\phi(a, h) = a\bar{\phi}_2 + h\bar{\phi}_1 \quad (\text{B.6})$$

Gleichung B.3 – B.4 in Kombination mit Gleichung B.6 führt zu:

$$N(a, h) = N_t \exp\left(-\frac{\overline{\Delta G}(a, h)}{k_B T}\right) \quad (\text{B.7})$$

In den meisten Fällen ist nur die Gesamtanzahl der Säure- und Wassermoleküle bekannt. Es empfiehlt sich daher  $N(a, h)$  in der Gleichung B.7 als eine Funktion von  $\overline{\Delta G}(a, h)$  darzustellen, d.h. als Funktion der freien Energie, wenn alle Moleküle ungebunden vorliegen würden. Das chemische Potential  $\phi_i$  in einem Gas ohne Hydrate ist mit  $\bar{\phi}_i$  verbunden über:

$$\phi_i = \bar{\phi}_i + K_b T \ln\left(-\frac{N_i}{\bar{N}_i}\right) \quad (\text{B.8})$$

Daraus folgt:

$$\overline{\Delta G}(a, h) = \Delta G(a, h) + a k_b T \ln\left(\frac{N_2}{\bar{N}_2}\right) + h k_b T \ln\left(\frac{N_1}{\bar{N}_1}\right) \quad (\text{B.9})$$

Überschreitet die Anzahl der Wassermoleküle bei weitem die Anzahl der Säuremoleküle und der Hydrate  $\bar{N}_1 \approx N_1 \approx N_t$  so ändert sich Gleichung B.7 zu:

$$N(a, h) = N_1 \left(\frac{\bar{N}_2}{N_2}\right)^a \exp\left(-\frac{\overline{\Delta G}(a, h)}{k_B T}\right) \quad (\text{B.10})$$

wobei  $\bar{N}_2$  gegeben ist durch:

$$\bar{N}_2 = \frac{N_2}{1 + K_1 N_1 + \dots + K_1 K_2 \dots K_h (N_1)^h} \quad (\text{B.11})$$

### Binäre Nukleationsrate von $\text{H}_2\text{O}/\text{H}_2\text{SO}_4$ unter Berücksichtigung von Hydraten

Nach Jaecker-Voirol und Mirabel(1988) überschreitet in einem binären Gemisch  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  die Anzahl der Hydrate, die ein Säuremolekül enthält, die Anzahl mit mehreren Molekülen bei weitem. Daher werden im folgenden nur (1,h) Hydrate betrachtet.

In der klassischen Theorie ohne Hydrate ist die freie Enthalpie für die Bildung eines Embryos gegeben durch Gleichung 3.11. Berücksichtigt man die Formation von Hydraten, so erhält man:

$$\Delta G_{\text{hyd.}} = \bar{n}_1 (\bar{\mu}_1 - \bar{\phi}_1) + \bar{n}_2 (\bar{\mu}_2 - \bar{\phi}_2) + \sum_h n_h (\mu_h - \phi_h) + 4\pi\sigma r^2 \quad (\text{B.12})$$

Nach Gleichung B.6 existiert ein Gleichgewicht zwischen Hydraten und freien Molekülen, welches zu

$$\Delta G_{\text{hyd.}} = (\bar{n}_1 + \sum h n_h) (\bar{\mu}_1 - \bar{\phi}_1) + (\bar{n}_2 + \sum n_h) (\bar{\mu}_2 - \bar{\phi}_2) + 4\pi\sigma r^2 \quad (\text{B.13})$$

führt.

Aus Gleichung B.1 und B.2 folgt  $n_1 = \bar{n}_1 + \sum h n_h$  und  $n_2 = \bar{n}_2 + \sum n_h$  und mit Gleichung B.8 kann  $\Delta G_{\text{hyd.}}$  folgendermaßen geschrieben werden:

$$\Delta G_{\text{hyd.}} = -n_1 k_b T \ln \left( \frac{\bar{P}_1}{\bar{P}_1^{\text{sol}}} \right) - n_2 k_b T \ln \left( \frac{\bar{P}_2}{\bar{P}_2^{\text{sol}}} \right) + 4\pi\sigma r^2 \quad (\text{B.14})$$

Die freie Enthalpie für die Bildung eines flüssigen Embryos aus einem Dampfgemisch mit Hydraten ist somit :

$$\Delta G_{\text{hyd.}} = -n_1 k_b T \ln \left( \frac{P_1}{P_1^{\text{sol}}} \right) - n_2 k_b T \ln \left( \frac{P_2}{P_2^{\text{sol}}} \right) + n_2 k_B T \ln C_h + 4\pi\sigma r^2 \quad (\text{B.15})$$

oder anders ausgedrückt:

$$\Delta G_{\text{hyd.}} = \Delta G_{\text{unhyd.}} - n_2 k_B T \ln C_h \quad . \quad (\text{B.16})$$

$C_h$  ist ein Korrekturfaktor, der sich aus der Hydrate-Clusterbildung ergibt:

$$C_h = \frac{P_2 \bar{P}_2^{\text{sol}}}{\bar{P}_2 P_2^{\text{sol}}} \quad (\text{B.17})$$

Dies führt auf Grund von Gleichgewichtsverteilungen in der Hydratverteilung nach Jaeger-Voirol et al. (1987) auf:

$$C_h = \left[ \frac{1 + \acute{K}_1 P_1 + \dots + \acute{K}_1 \acute{K}_2 \dots \acute{K}_h (P_1)^h}{1 + \acute{K}_1 P_1^{\text{sol}} + \dots + \acute{K}_1 \acute{K}_2 \dots \acute{K}_h (P_1^{\text{sol}})^h} \right] \quad . \quad (\text{B.18})$$

Somit kann die Nukleationsrate berechnet werden nach:

$$J = C \left[ \frac{1 + \acute{K}_1 P_1^{\text{sol}} + \dots + \acute{K}_1 \acute{K}_2 \dots \acute{K}_h (P_1^{\text{sol}})^h}{1 + \acute{K}_1 P_1 + \dots + \acute{K}_1 \acute{K}_2 \dots \acute{K}_h (P_1)^h} \right]^{n_2} \exp \left( -\frac{\Delta G^*}{k_B T} \right) \quad . \quad (\text{B.19})$$

Das Problem ist die Bestimmung der Gleichgewichtskonstante  $\acute{K}$ , da bisher keine experimentellen oder theoretischen Daten dafür vorliegen.

$$\Delta G_{h^0} = -k_B T \ln \acute{K}_h \quad (\text{B.20})$$

Aus der Ableitung von  $\Delta G$  in Bezug auf  $n_1$  ergibt sich:

$$\Delta G_{h^0} = \ln P_1^{\text{sol}} + \frac{2}{k_B T} \frac{M_1 \sigma}{\rho r} \left\{ 1 + \frac{W}{\rho} \frac{d\rho}{dW} \right\} \quad . \quad (\text{B.21})$$

Daher kann die Gleichgewichtskonstante berechnet werden nach:

$$\dot{K}_h = \frac{1}{P_1^{\text{sol}}} \exp - \left( \frac{\frac{M_1 \sigma}{\rho r} \left\{ 1 + \frac{W}{\rho} \frac{d\rho}{dW} \right\}}{k_B T} \right) \quad . \quad (\text{B.22})$$

Auf Grund der Existenz von stabilen Hydraten sind weniger Clusterkollisionen notwendig, um einen kritischen Embryo zu bilden. Berücksichtigt man diesen 'kinetischen Effekt', so ist der Vorfaktor C für (1,h) Cluster nach Shugard et al. (1974) gegeben durch:

$$C = \sqrt{(8\pi k_B T)} \sum (r + r_h)^2 \tilde{m}^{-\frac{1}{2}} N_h N_a \frac{Z}{\sin^2 \vartheta} \quad (\text{B.23})$$

$r_h$  ist der Hydratradius und  $\tilde{m}$  ist die reduzierte Masse der Hydrate und des kritischen Kerns. Die Nukleationrate unter Berücksichtigung von Hydrates wird daher zu:

$$J = \sqrt{(8\pi k_B T)} \sum (r + r_h)^2 \tilde{m}^{-\frac{1}{2}} N_h N_1 \frac{Z}{\sin^2 \vartheta} \left[ \frac{1 + K_1 P_1^{\text{sol}} + \dots + K_1 K_2 \dots K_h (P_1^{\text{sol}})^h}{1 + K_1 P_1 + \dots + K_1 K_2 \dots K_h (P_1)^h} \right]^{n_2} \exp \left( - \frac{\Delta G^*}{k_B T} \right) \quad . \quad (\text{B.24})$$

## B.2 Parameterisierungen für das Zirkulationsmodell

Für die Anwendung des mikrophysikalischen Modelles in einem globalen Zirkulationsmodell ist zu überprüfen, ob eine Optimierung des Modells in Bezug auf Rechenzeit und Speicherkapazität möglich ist. In Tabelle B.1 sind fünf verschiedene Optimierungsansätze für das mikrophysikalische Modell dargestellt.

Eine Möglichkeit, Rechenzeit und Speicherkapazität bei der dreidimensionalen Anwendung des mikrophysikalischen Modells zu sparen, ist die Anzahl der Aerosolklassen möglichst gering zu halten. Es stellt sich in diesem Zusammenhang die Frage, inwieweit eine Modellierung der ultrafeinen Teilchen mit Radien  $r < 0.08 \mu\text{m}$  notwendig ist und ob Aerosolteilchen mit Radien  $r > 2.5 \mu\text{m}$  bei der Betrachtung von löslichem  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol überhaupt mit berücksichtigt werden müssen. Es wurden daher Sensitivitätsstudien für 35 Klassen a) und 25 Klassen b) durchgeführt. Es wurde in Kapitel 3.2.2 gezeigt, daß der Kelvineffekt nur für kleine Teilchen wichtig ist. Da die Modellierung des Kelvineffektes sehr rechenzeitintensiv ist, wird im Fall c) ausgetestet, ob er einen großen Einfluß auf die Ergebnisse des Boxmodells hat. Ebenfalls wird anhand von Sensitivitätsstudien überprüft, welche Auswirkungen eine gröbere Aufteilung der Schwefelsäurekonzentration bei der in Abbildung 3.2 gezeigten Aerosoltabelle auf die Aerosolgrößenverteilung hat (Fall d) und Fall e). Eine gröbere Aufteilung der Konzentrationen verringert nicht nur die Rechenzeit, sondern auch den Speicherbedarf des globalen Modells.

In Abbildung B.1 sind Aerosolkonzentrationen und Größenverhältnis für die in Tabelle B.1 aufgeführten Fälle mit den Werten der Standardsimulation verglichen worden. Die für 30 hPa, 50 hPa, 73 hPa und 100 hPa dargestellten Sensitivitätsstudien sind mit monatlich gemittelten Simulationsdaten für  $41^\circ \text{N}$  durchgeführt worden. Für alle Sensitivitätsstudien wurde die Nukleationsrate nach der Hydrattheorie mit SCC-Korrektur berechnet und ein Stoßkoeffizient von  $\alpha = 0.04$  angenommen.

Abbildung B.1 zeigt, daß sich die Werte ohne Berücksichtigung des Kelvineffektes nur

Fall	Unterschied zur Standardversion
a	35 Klassen $1 \cdot 10^{-3} \mu\text{m} - 2.58 \mu\text{m}$
b	25 Klassen $1 \cdot 10^{-2} \mu\text{m} - 2.56 \mu\text{m}$
c	ohne Kelvineffekt
d	0% -60% $\Delta W = 1\%$
	60% -85% $\Delta W = 0.5\%$
e	0% -100% $\Delta W = 1\%$
	0% -100% $\Delta W = 1\%$

Tabelle B.1: Optimierungsansätze des mikrophysikalischen Modells für die globale Modellierung

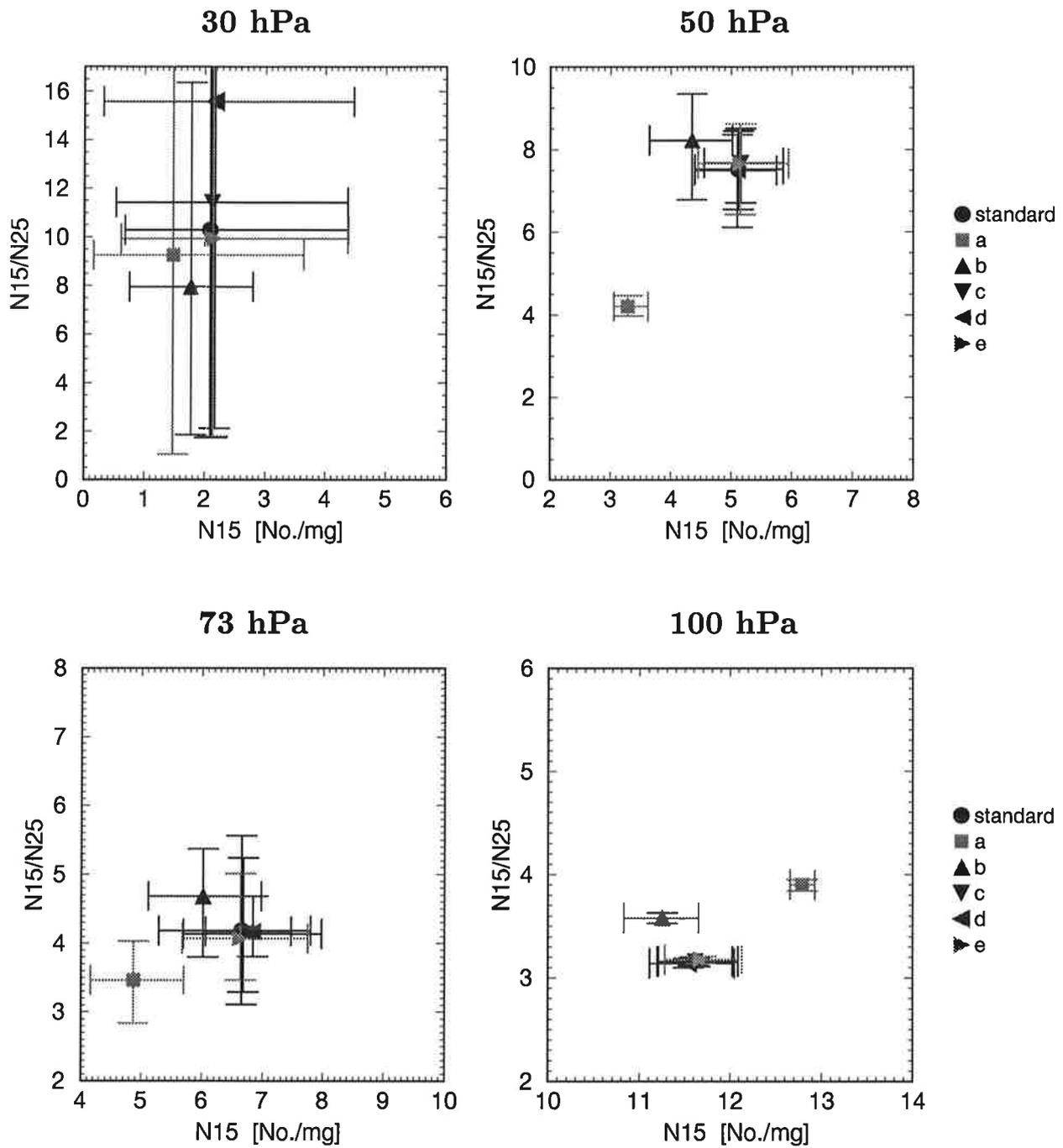


Abbildung B.1: Abhängigkeit der Aerosolkonzentration  $N_{15}$  und des  $N_{15}/N_{25}$  Größenverhältnis für verschiedene GCM-Parameterisierungen nach Tabelle B.1. Es ist für die einzelnen Bilder eine unterschiedliche Achsenskalierung gewählt worden.

geringfügig von denen mit Kelvineffekt unterscheiden. Der Kelvineffekt kann damit in erster Näherung bei der globalen Modellierung des stratosphärischen Aerosols vernachlässigt werden. Bei einer Erweiterung des mikrophysikalischen Modells von einer binären  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  auf eine ternäre Lösung  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}/\text{HNO}_3$  sollte die Sensitivität des Modells bezüglich des Kelvineffekts erneut überprüft werden.

Auch die Sensitivitätsstudien d) und e) mit einer grobmaschigeren Aufteilung in der Aerosoltabelle weichen von den mit einer feineren Aufteilung gerechneten nur wenig ab. Ausnahme ist das Größenverhältnis für d) in 30 hPa, doch liegen die Werte im Bereich des Standardfalls. In dem Zirkulationsmodell kann daher eine kleinere Aerosoltabelle verwendet werden.

Die größten Abweichungen von dem Standardfall sind bei den Sensitivitätsstudien mit einem Anfangsradius von  $0.001 \mu\text{m}$  und  $0.01 \mu\text{m}$  berechneten Aereosolkonzentrationen und Größenverhältnisse zu finden. Während die Sensitivitätsstudien mit 35 Klassen und einem Anfangsradius  $0.001 \mu\text{m}$  im Bereich der Ausgangsdaten liegen, weisen die Werte mit einem Anfangsradius von  $0.01 \mu\text{m}$  wie in 50 hPa und 73 hPa deutliche Differenzen zu den Ausgangsdaten auf.

Es zeigt sich somit anhand von Abbildung B.1, daß der Verlauf der Verteilung stark von dem gewählten Bereich mitbestimmt wird. Aus rechentechnischen Gründen kann in der globalen Modellierung in erster Näherung mit einem Anfangsradius von  $10^{-3} \mu\text{m}$  gerechnet werden, doch wäre ein Aerosolmodell mit 44 Klassen wünschenswert.

### B.3 Numerische Lösung der Schwefelchemie

Die in dem stratosphärischen Aerosolmodell berücksichtigten Schwefelverbindungen werden in drei Familien transportiert:

$$[\text{COS}]$$

$$[\text{SOX}] = [\text{S}] + [\text{SO}] + [\text{SO}_2]$$

$$[\text{HYSOX}] = [\text{SO}_3] + [\text{HSO}_3] + [\text{H}_2\text{SO}_4] .$$

Für die Familien werden folgende Gleichungen gelöst:

$$\frac{d[\text{COS}]}{dt} = -J_{\text{COS}}[\text{COS}] - R_{\text{S3}}[\text{O}][\text{COS}] - R_{\text{S4}}[\text{OH}][\text{COS}] \quad (\text{B.25})$$

$$\frac{d[\text{SOX}]}{dt} = -R_{\text{S5}}[\text{OH}][\text{SO}_2] + R_{\text{S4}}[\text{OH}][\text{COS}] + J_{\text{COS}}[\text{COS}] + R_{\text{S3}}[\text{O}][\text{COS}] \quad (\text{B.26})$$

$$\frac{d[\text{HYSOX}]}{dt} = -\frac{d[\text{H}_2\text{SO}_4]}{dt}_{\text{aerosol}} + R_{\text{S5}}[\text{OH}][\text{SO}_2] \quad . \quad (\text{B.27})$$

Unter Annahme von Quasistationarität werden die Konzentrationen der Familienmitglieder folgendermaßen bestimmt:

$$[\text{S}] = \frac{J_{\text{COS}}[\text{COS}]}{K_1[\text{O}_2]} \quad (\text{B.28})$$

$$[\text{SO}_2] = \frac{[\text{SOX}] - \frac{J_{\text{COS}} + R_{\text{S3}}[\text{O}] + R_{\text{S4}}[\text{OH}]}{R_{\text{S2}}[\text{O}_2]}[\text{COS}]}{1 + \frac{J_{\text{SO}_2}}{R_{\text{S2}}[\text{O}_2]}} \quad (\text{B.29})$$

$$[\text{SO}] = \frac{J_{\text{SO}_2}}{R_{\text{S2}}[\text{O}_2]}[\text{SO}_2] + \frac{J_{\text{COS}} + R_{\text{S3}}[\text{O}] + R_{\text{S4}}[\text{OH}]}{R_{\text{S2}}[\text{O}_2]}[\text{COS}] \quad (\text{B.30})$$

$$[\text{HSO}_3] = \frac{R_{\text{S5}}[\text{OH}]}{R_{\text{S6}}[\text{O}_2]}[\text{SO}_2] \quad (\text{B.31})$$

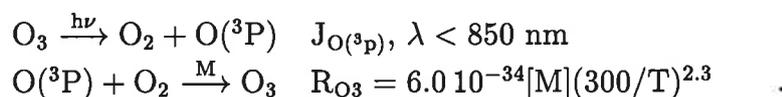
$$[\text{SO}_3] = \frac{R_{\text{S5}}[\text{OH}]}{R_{\text{S7}}[\text{H}_2\text{O}]}[\text{SO}_2] \quad (\text{B.32})$$

$$[\text{H}_2\text{SO}_4] = [\text{HXSOY}] - [\text{SO}_3] - [\text{HSO}_3] \quad . \quad (\text{B.33})$$

Zusätzlich wird die  $\text{O}(^3\text{P})$ -Konzentration durch ein stationärer Zustand bestimmt:

$$[\text{O}(^3\text{P})] = \frac{J_{\text{O3}}[\text{O}_3]}{K_8[\text{O}_2]} \quad (\text{B.34})$$

mit:



# Anhang C

## Symbol- und Abkürzungsverzeichnis

### C.1 Wichtige Symbole

$a_i$	Aktivität der Substanz $i$ ( $\frac{p_i^{sol}}{p_i^0}$ )	
$c_i$	thermische Geschwindigkeit	m/s
$D$	Diffusionskoeffizient	m <sup>2</sup> /s
$E$	Extinktionskoeffizient	1/m
$\tilde{E}$	Massen-Extinktionskoeffizient	m <sup>2</sup> /g
$\Delta G$	Enthalpieänderung bei der Gas-Teilchenbildung	N m
$g$	Schwerebeschleunigung	9.81 m/s <sup>2</sup>
$c_i$	thermische Geschwindigkeit	m/s
$Kn$	Knudsenzahl	
$K_{ij}$	Koagulationskoeffizient von Teilchen der Größe $i$ und $j$	m <sup>3</sup> /s
$K_N$	Nudgingkoeffizient	1/s
$k_B$	Boltzmannkonstante	1.380662 10 <sup>-23</sup> J/K
$N_{15}$	Aerosolteilchen mit Radien $r > 0.25 \mu\text{m}$	No./mg
$N_{25}$	Aerosolteilchen mit Radien $r > 0.25 \mu\text{m}$	No./mg
$N_{15}/N_{25}$	Größenverhältnis	
$P_i$	Partialdruck	Pa
$P_i^0$	Gleichgewichtsdampfdruck über einer Flüssigkeit	Pa
$P_i^{sol}$	Gleichgewichtsdampfdruck über der flüssigen Lösung	Pa
$R$	Gaskonstante	8.31441 J/mol K
$r_{eff}$	effektiver Radius	$\mu\text{m}$
$r_m$	Moderadius	$\mu\text{m}$
$S_a$	relative Feuchte ( $\frac{P_a}{P_a^0}$ )	
$S_b$	relative Säure ( $\frac{P_b}{P_b^0}$ )	
$W$	Gewichtsprozent Schwefelsäure	
$X$	Tracer	kg/kg
$v_s$	Sedimentationsgeschwindigkeit	m/s
$v_r$	Wachstumsrate bei der H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> -Kondensation	m/s
$Z$	Faktor bei der Nukleationsberechnung	

$\alpha$	Stoßkoeffizient	
$\beta$	Stoßrate auf einer Einheitsfläche	m/s cm <sup>3</sup>
$\eta$	dynamische Viskosität	N s/m <sup>2</sup>
$\tilde{\lambda}$	mittlere freie Weglänge	1/m
$\rho$	Dichte	g/cm <sup>3</sup>
$\sigma$	Oberflächenspannung	dyn/cm
$\sigma_s$	Standardabweichung	
$\Theta$	Potentielle Temperatur	K
$\vartheta$	Winkel bei der Nukleationsberechnung am Sattelpunkt zwischen der Wachstumsrichtung und der $n_a$ Achse	
$\mu_i$	chemisches Potential der Komponente i in der flüssigen Phase	N m
$\phi_i$	chemisches Potential der Komponente i in der Gasphase	N m
$\tau$	optische Dicke	

## C.2 Chemische Formeln

COS	Carbonylsulfid
CO	Kohlenmonoxid
DMS	Dimethylsulfid
H <sub>2</sub> O	Wasser
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	Wasserperoxid
HO <sub>2</sub>	Hydroperoxyradikal
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Schwefelsäure
HSO <sub>3</sub>	Hydroxysulfonylradikal
HNO <sub>3</sub>	Salpetersäure
O	Sauerstoffradikal
O <sub>2</sub>	Sauerstoff
O <sub>3</sub>	Ozon
OH	Hydroxylradikal
NO <sub>3</sub>	Stickstofftrioxid
S	Schwefel
SO	Schwefelmonoxid
SO <sub>2</sub>	Schwefeldioxid
SO <sub>3</sub>	Schwefeltrioxid

### C.3 Abkürzungsverzeichnis

AVHRR	Advanced Very High Resolution Radiometer
EASOE	European Arctic Stratospheric Ozone Experiment
ECHAM4	4. Generation des globalen Hamburger Klimamodells
ECMWF	European Centre for Medium Range Weather Forecast
ERBE	Earth Radiation Budget Experiment
FCKW's	Fluorchlorkohlenwasserstoffe
CCM2	Community Climate Model, Version 2
CN	Condensation Nuclei, d.h. Aerosolpartikel mit Radien $r > 0.01 \mu m$
DKRZ	Deutsches Klimarechenzentrum GmbH
DLR	Deutschen Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt e.V.
GADS	Global Aerosol Data Set
HALOE	HALogen Occultation Experiment
HIRS	High-Resolution Infrared Radiation Sounder
IR	Infrarot
JPL	Jet Propulsion Laboratory
MLS	Microwave Limb Sounder
MM4	Penn State/NCAR Mesoscale Model Version 4
NAT	Nitric Acid Trihydrate $HNO_3 \cdot 3 H_2O$
NCAR	National Center of Atmospheric Research
NESDIS	National Environmental Satellite Information Services
NOAA	National Oceanographic Atmospheric Administration
PSCs	Polar Stratospheric Clouds
QBO	Quasi Biennial Oscillation
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SAM	Stratospheric Aerosol Measurement
SCC	Self Consistency Correction
SL	Semi-Lagrange-Verfahren
SLT	Semi-Lagrange-Transport
SMM	Stratosphere-Mesosphere Modell
SL	Semi-Lagrange-Verfahren
ST	Stratosphäre-Troposphäre
ST	Stratosphere Troposphere Exchange
TMK	Transport Model KNMI (Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut)
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite
WMO	World Meteorological Organization
ZOL	Zero-Order-Logarithmic



# Abbildungsverzeichnis

1.1	Atmosphärische Auswirkungen hochreichender Vulkaneruptionen . . . . .	2
2.1	Vertikale Auflösung der drei ECHAM4-Versionen . . . . .	8
3.1	Schematische Übersicht des mikrophysikalischen Modells . . . . .	17
3.2	Schematische Darstellung der Aerosoltabelle . . . . .	19
3.3	Kritischer Radius des Nukleus für 216 K in Abhängigkeit von der relativen Feuchte und der relativen Säure . . . . .	22
3.4	Homogene Nukleationsrate für 216 K in Abhängigkeit von der relativen Feuchte und der relativen Säure . . . . .	23
3.5	Homogene Nukleationsrate nach der Hydrattheorie mit und ohne Berücksichtigung der SCC-Korrektur in Abhängigkeit von der Temperatur. . . . .	26
3.6	Wasserdampfcurven in Abhängigkeit von der Schwefelsäurekonzentration und vom Teilchenradius. . . . .	29
3.7	Abhängigkeit der Schwefelsäurekonzentration von der Temperatur . . . . .	29
3.8	Relative Größenänderung der Partikel als Funktion des Dampfdruckes und der Temperatur . . . . .	30
3.9	Schematische Darstellung der Berechnung des Feuchtewachstums . . . . .	31
3.10	Wachstumsraten der Aerosolpartikel durch $H_2SO_4$ -Kondensation . . . . .	35
3.11	Zeitliche Veränderung einer Größenverteilung durch Kondensation . . . . .	36
3.12	Koagulationskoeffizienten für vier verschieden große Aerosolteilchen in Abhängigkeit vom Radius . . . . .	38
3.13	Zeitliche Änderung einer Größenverteilung durch Koagulation . . . . .	39
3.14	Sedimentationsgeschwindigkeit verschiedener Partikel in Abhängigkeit von der Höhe . . . . .	41
4.1	Vertikalprofil der $SO_2$ -Konzentration . . . . .	44
4.2	Boxsimulationen stratosphärischer Hintergrundverteilungen . . . . .	48
4.3	Der Grenzyklus . . . . .	49
4.4	Abhängigkeit der Aerosolkonzentration $N_{15}$ und des Größenverhältnisses $N_{15}/N_{25}$ von der Nukleationsrate und dem Stoßkoeffizienten $\alpha$ . . . . .	50
4.5	Vergleich von beobachteten Profilen der Aerosolkonzentration $N_{15}$ und des Größenverhältnisses $N_{15}/N_{25}$ für die Monate November bis Februar 1978–1979 mit Boxsimulationen . . . . .	54

4.6	Vergleich von beobachteten Profilen der Aerosolkonzentration $N_{15}$ und des Größenverhältnisses $N_{15}/N_{25}$ für die Monate März bis Juni 1978–1979 mit Boxsimulationen. . . . .	55
4.7	Vergleich von Profilen der Aerosolkonzentration $N_{15}$ und des Größenverhältnisses $N_{15}/N_{25}$ für die Monate Juli bis Oktober 1978–1979 mit Boxsimulationen . . . . .	56
4.8	Abhängigkeit der Aerosolkonzentration und des Größenverhältnisses von den Initialisierungsbedingungen. . . . .	59
4.9	Vergleich von Boxsimulationen mit Meßprofilen und anderen Modellergebnissen für $41^\circ$ N . . . . .	62
4.10	Vergleich von Boxsimulationen mit Meßprofilen für $67^\circ$ N und $5^\circ$ S. . . .	63
4.11	Boxsimulation einer vulkanischen Störung . . . . .	67
4.12	Zeitliche Entwicklung des effektiven Radius nach einer vulkanischen Störung in Abhängigkeit verschiedener Parameter . . . . .	69
4.13	Vergleich des effektiver Radius aus der Boxsimulation mit Beobachtungen nach der Eruption des Mt. Pinatubo . . . . .	72
4.14	Vergleich der Oberflächenkonzentration aus der Boxsimulation mit Beobachtungen nach der Eruption des Mt. Pinatubo . . . . .	73
5.1	Initialisierung der Pinatubowolke . . . . .	81
5.2	Anfängliche Ausbreitung des Pinatuboaerosols . . . . .	84
5.3	Vergleich der globalen Sulfatmasse nach dem Ausbruch des Mt. Pinatubo zwischen ECHAM4–Simulationen und monatlich gemittelten HIRS–Satellitendaten . . . . .	85
5.4	Schematische Darstellung des ST–Austausches . . . . .	88
5.5	Vergleich der globalen Sulfatmasse nach dem Ausbruch des Mt. Pinatubo zwischen ECHAM4–Simulationen mit verschiedener STE–Parameterisierung und HIRS–Satellitendaten . . . . .	91
5.6	Vergleich der simulierten stratosphärischen optischen Dicke nach dem Pinatuboausbruch mit AVHRR–Daten . . . . .	93
5.7	Veränderung in der geographischen Verteilung der optischen Dicke durch eine interaktive Simulation . . . . .	95
5.8	Beobachtete und simulierte Extinktionen nach dem Pinatuboausbruch für einen Wellenlängenbereich von $0.68 \mu m$ bis $4.0 \mu m$ . . . . .	97
5.9	Geographische Verteilung der modellierten Aerosolkonzentration im Herbst 1991 . . . . .	98
5.10	Vergleich der geopotentiellen Höhe zwischen Simulation und Beobachtung für Oktober 1991 . . . . .	101
5.11	Vergleich von Säulenmassen zwischen ECHAM4–Simulationen und Lidarbeobachtungen . . . . .	103
5.12	Vergleich der Aerosolkonzentration zwischen ECHAM4–Simulationen und stationären Beobachtungen . . . . .	105
5.13	Mit ECHAM4–1d berechnete Heizraten für verschiedene Lognormalverteilungen . . . . .	109

5.14	Vergleich von Heizraten zwischen ECHAM4-Simulationen mit vorgeschriebenem und prognostischem Pinatubo-aerosol . . . . .	111
5.15	Strahlungsantrieb am oberen Rand der Atmosphäre . . . . .	113
5.16	Mit ECHAM4-L39 modellierte Extinktionen im Vergleich zu Beobachtungen	115
6.1	Das stratosphärische Aerosolmodell in ECHAM4 . . . . .	118
6.2	Vertikalprofil des stratosphärischen Mischungsverhältnisses von COS . .	119
6.3	Vergleich global beobachteter und simulierter Aerosolmassen-Konzentrationen	123
6.4	Vergleich simulierter Aerosol-Oberflächenkonzentration mit einer stratosphärischen Aerosolklimatologie . . . . .	124
6.5	Zonal-Vertikalschnitte zur Bedeutung der homogenen Nukleation im globalen Mode . . . . .	126
A.1	Dichte- und Oberflächenspannungsdaten in Abhängigkeit von der Temperatur und der Konzentration . . . . .	135
A.2	Monatlich und zonal gemittelte Werte der OH-Konzentration eines 12 Jahre-Feedback-Laufes mit ECHAM3 . . . . .	137
A.3	Monatlich und zonal gemittelte Werte der Temperatur eines 12 Jahre-Feedback-Laufes mit ECHAM3 . . . . .	138
A.4	Monatlich und zonal gemittelte Werte der H <sub>2</sub> O-Konzentration eines 12 Jahre-Feedback-Laufes mit ECHAM3 . . . . .	139
A.5	Monatlich und zonal gemittelte Werte der O <sub>3</sub> -Konzentration eines 12 Jahre-Feedback-Laufes mit ECHAM3 . . . . .	140
A.6	Vergleich optischer Parameter über den Wellenlängenbereich von ECHAM4 für vier verschiedene Lognormalverteilungen . . . . .	142
A.7	Mit ECHAM4-1d berechnete Heizraten für verschiedene Lognormalverteilungen . . . . .	143
A.8	Mit ECHAM4-1d berechnete Heizraten für verschiedene Lognormalverteilungen . . . . .	144
B.1	Abhängigkeit der Aerosolkonzentration N <sub>15</sub> und des N <sub>15</sub> /N <sub>25</sub> Größenverhältnis für verschiedene GCM-Parameterisierungen . . . . .	150



# Tabellenverzeichnis

2.1	Aerosolklassen der GADS-Klimatologie . . . . .	12
2.2	Globale Schwefelemissionen . . . . .	14
3.1	Konzentration des Schwefelsäuredampfes $N_b^{sol}$ in Abhängigkeit von der Höhe	33
4.1	Übersicht über die verschiedenen Sensitivitätsstudien mit unterschiedlichen mikrophysikalischen Parameterisierungen. . . . .	51
4.2	Effektiver Radius für modellierte Hintergrundverteilungen in Abhängigkeit von ihrer mikrophysikalischen Parameterisierung . . . . .	68
5.1	Die Pinatuboexperimente . . . . .	90
6.1	Reaktionen der Schwefelkomponenten in der Stratosphäre . . . . .	121
A.1	Eingabedaten für die Sensitivitätsstudien in 41° N . . . . .	136
A.2	Optische Parameter für die in ECHAM4 vorhandenen Wellenlängenbereiche. . . . .	141
B.1	Optimierungsansätze des mikrophysikalischen Modells für die globale Modellierung . . . . .	149



# Literaturverzeichnis

- AEA Technology (1993), FACSIMILE SOFTWARE, Release H025, Harwell Laboratory, Oxfordshire.
- Ansmann, A., U. Wandinger und C. Weitkamp (1993), 'One-year observations of Mount-Pinatubo aerosol with an advanced Raman lidar over Germany at 53.5° N', *Geophys. Res. Lett.* 20, 711–714.
- Arnold, F. und Th. Bührke (1983), 'New H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> and HSO<sub>3</sub> vapour measurements in the stratosphere—evidence for a volcanic influence', *Nature* 301, 294–295.
- Ayers, G. P., R. W. Gillett und J. L. Gras (1980), 'On the vapor pressure of sulfuric acid', *Geophys. Res. Lett.* 7, 433–436.
- Baran, A. J. und J. S. Foot (1994), 'New application of the operational sounder HIRS in determining a climatology of sulphuric acid aerosol from the Pinatubo eruption', *J. Geophys. Res.* 99, 25673–26679.
- Bates, T. S., D. Cline, R. H. Gammon und S. R. Kelly-Hansen (1987), 'Regional and seasonal variations in the flux of oceanic dimethylsulfide to the atmosphere', *J. Geophys. Res.* 92, 2930–2938.
- Baumgardner, D., J. E. Dye, B. W. Gandrud und R. G. Knollenberg (1992), 'Interpretation of measurements made by the Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP-300) during the Airborne Arctic Stratospheric Expedition', *J. Geophys. Res.* 97, 8035–8046.
- Bekki, S., R. Toumi und J. A. Pyle (1993), 'Role of sulphur photochemistry in tropical ozone change after the eruption of Mount Pinatubo', *Nature* 362, 331–333.
- Bekki, S. und J. A. Pyle (1994), 'A two-dimensional modeling study of the volcanic eruption of Mount Pinatubo', *J. Geophys. Res.* 99, 18861–18869.
- Bekki, S., J. A. Pyle, W. Zhong, R. Toumi, J. D. Haigh und D. M. Pyle (1996), 'The role of microphysical and chemical processes in prolonging the climate forcing of the Toba eruption', *Geophys. Res. Lett.* 23, 2669–2672.
- Bekki, S., M. Chipperfield, J. A. Pyle, J. J. Remedios, S. E. Smith, R. G. Grainger, A. Lambert, J. B. Kumer und J. L. Mergenthaler (1997), 'Coupled aerosol-chemical modelling of UARS HNO<sub>3</sub> and N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> measurements in the Arctic upper stratosphere', *J. Geophys. Res.* 102, in press.

- Benkovitz, C. M., C. M. Berkovitz, R. C. Easter, S. Nemesure, R. Wagener und S. Schwartz (1994), 'Sulfate over the north Atlantic and adjacent continental regions: Evaluation for October and November 1986 using a three-dimensional model driven by observation-derived meteorology', *J. Geophys. Res.* 99, 20825–20756.
- Berge, E. (1993), 'Coupling of wet scavenging of sulphur to clouds in a numerical weather prediction model', *Tellus* 45B, 1–22.
- Bigg, K. E. (1975), 'Stratospheric particles', *J. Atmos. Sci.* 32, 910–917.
- Bluth, G. J. S., S. D. Doiron, C. C. Schnetzler, A. J. Krueger und L. S. Walter (1992), 'Global tracking of the SO<sub>2</sub> clouds from the June 1991 Mount Pinatubo eruptions', *Geophys. Res. Lett.* 19, 151–154.
- Borrmann, S., J. E. Dye, D. Baumgardner, J. C. Wilson, H. H. Jonsson, C. A. Brock, M. Loewenstein, J. R. Podolske, G. V. Ferry und K. S. Barr (1993), 'In-situ measurements of changes in stratospheric aerosol and the N<sub>2</sub>O–aerosol relationship inside and outside the polar vortex', *Geophys. Res. Lett.* 20, 2559–2562.
- Bott, A. (1989a), 'A positive definite advection scheme obtained by nonlinear general circulation model', *Mon. Weather Rev.* 117, 1006–1015.
- Bott, A. (1989b), 'Reply', *Mon. Weather Rev.* 117, 2633–2636.
- Boville, B. A., J. R. Holton und P. W. Mote (1991), 'Simulation of the Pinatubo aerosol cloud in general circulation model', *Geophys. Res. Lett.* 18, 2281–2284.
- Brasseur, G. und S. Solomon (1986), *Aeronomy of the Middle Atmosphere*, D. Reidel, Hingham, Mass.
- Brasseur, G. und C. Granier (1992), 'Mount Pinatubo aerosols, chlorofluorocarbons and ozone depletion', *Science* 257, 1239–1242.
- Brill, K. F., L. W. Uccellini, J. Manobianco, P. J. Kocin und J. H. Homan (1990), 'The use of successive dynamic initialization by nudging to simulate cyclogenesis during GALE IOP 1', *Meteorol. Atmos. Phys.* 45, 15–40.
- Brinkop, S. und E. Roeckner (1995), 'Cloud turbulence interactions: Sensitivity of a general circulation model to closure assumptions', *Tellus* 47B, 197–220.
- Brock, C. A., J. C. Wilson, H. H. Jonsson und K. R. Chan (1995), 'Particle formation in the upper tropical troposphere: A source of nuclei for the stratospheric aerosol', *Science* 270, 1650–1653.
- Brost, R. A., J. Feichter und M. Heimann (1991), 'Three-dimensional simulation of <sup>7</sup>Be in a global climate model', *J. Geophys. Res.* 96, 22423–22445.
- Brühl, C. und P. J. Crutzen (1989), 'On the disproportionate role of tropospheric ozone as a filter against UV-B radiation', *Geophys. Res. Lett.* 16, 703–706.
- Cadle, R. D. und C. S. Kiang (1977), 'Stratospheric Aitken particles', *Rev. Geophys. Space Phys.* 15, 195–202.

- Chin, M. und D. D. Davis (1995), 'A reanalysis of carbonyl sulfide as a source of stratospheric background sulfur aerosol', *J. Geophys. Res.* 100, 8993–9005.
- Chlond, A. (1994), 'Locally modified Bott-scheme for highly convective flows', *Mon. Weather Rev.* 122, 113–125.
- Coffey, M. T. und W. G. Mankin (1993), 'Observations of the loss of stratospheric NO<sub>2</sub> following volcanic eruptions', *Geophys. Res. Lett.* 20, 2873–2876.
- Coffey, M. T. (1996), 'Observations of the impact of volcanic activity on stratospheric chemistry', *J. Geophys. Res.* 101, 6767–6780.
- Crutzen, P. J. (1976), 'The possible importance of CSO for the sulfate layer of the stratosphere', *Geophys. Res. Lett.* 3, 73–76.
- Crutzen, P. J. und F. Arnold (1986), 'Nitric acid cloud formation in the cold antarctic stratosphere: A major cause for the springtime 'ozone hole' ', *Nature* 324, 651–655.
- de More, W. B., S.P. Sander, D. M. Golden, R. F. Hampson, M. J. Kurylo, C. J. Howard, A. R. Ravishankara, C. E. Kolb und M. J. Molina (1992), Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling. Evaluation number 10, JPL Publication 92–20, Jet Propulsion Laboratory, Pasadena, California.
- DeFoor, T. E., E. Robinson und S. Ryan (1992), 'Early lidar observations of the June 1991 Pinatubo eruption plume at Mauna Loa observatory, Hawaii', *Geophys. Res. Lett.* 19, 187–190.
- Deshler, T., D. J. Hofmann, B. J. Johnson und W. R. Rozier (1992a), 'Balloonborne measurements of the Pinatubo aerosol size distribution and volatility at Laramie, Wyoming during the summer of 1991', *Geophys. Res. Lett.* 19, 199–203.
- Deshler, T., A. Adriani, G. P. Gobbi, D. J. Hofmann, G. Di Donfrancesco und B. J. Johnson (1992b), 'Volcanic aerosol and ozone depletion within the Antarctic polar vortex during the austral spring of 1991', *Geophys. Res. Lett.* 19, 1819–1822.
- Deshler, T., B. J. Johnson und W. R. Rozier (1993), 'Balloonborne measurements of Pinatubo aerosol during 1991 and 1992 at 41° N: Vertical profiles, size distribution, and volatility.', *Geophys. Res. Lett.* 1435–1438.
- Dingenen, R. Van (1990), The dynamics of sub-micron H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O aerosols: A smog chamber study, Dissertation, Rijksuniversiteit Gent, Gent.
- Doiron, S. D. (1991), 'Transport of the Cerro Hudson SO<sub>2</sub> clouds', *EOS. Trans. AGU* 72, 489–498.
- Doyle, G. J. (1961), 'Self-nucleation in the sulfuric-acid-water-system', *J. Chem. Phys.* 35, 795–799.
- Dutton, E. G. und J. R. Christy (1992), 'Solar radiative forcing at selected locations and evidence for global lower tropospheric cooling following the eruptions of El Chichón and Pinatubo', *Geophys. Res. Lett.* 19, 2313–2316.

- Ebel, A., H. Hass, H. J. Jakobs, M. Laube, M. Memmesheimer und A. Oberreuter (1991), 'Simulation of ozone intrusion caused by a tropopause fold and cut-off lows', *Atmos. Env.* 25A, 2131–2144.
- Eliassen, E., B. Machenhauer und E. Rasmussen (1970), On a numerical method for integration of the hydrodynamical equations with a spectral representation of the horizontal fields, Report 2, Inst. of Theo. Meteorol., Univ. of Copenhagen.
- Elson, L. S., W. G. Read, J. W. Waters, P. W. Mote, J. S. Kinnersley und R. S. Harwood (1996), 'Space-time variations in water vapor as observed by the UARS Microwave Limb Sounder', *J. Geophys. Res.* 101, 9001–9015.
- Fairlie, T. D. A. (1995), 'Three-dimensional transport simulations of the dispersal of volcanic aerosol from Mount Pinatubo', *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 121, 1943–1980.
- Feichter, J., E. Kjellström, H. Rodhe, F. Dentener, J. Lelieveld und G.-J. Roelofs (1996), 'Simulation of the tropospheric sulfur cycle in a global climate model', *Atmos. Env.* 30, 1693–1707.
- Feichter, J., U. Lohmann und I. Schult (1997), 'The atmospheric sulfur cycle and its impact on the shortwave radiation', *Clim. Dyn.* 13, 235–246.
- Flood, H. (1934), 'Tröpfchenbildung in übersättigten Äthylalkohol-Wasserdampfgemischen.', *Z. Physik. Chem.* A170, 286–294.
- Fouquart, Y. und B. Bonnel (1980), 'Computations of solar heating of the earth atmosphere: A new parameterization', *Contrib. Atmos. Phys.* 53, 35–62.
- Fuchs, N. A. (1964), 'Observation of the aerosol layer at 20 km by optical radar', *J. Atmos. Sci.* 21, 323–324.
- Fuchs, N. A. und A. G. Sutugin (1971), High-dispersed aerosol, in G. M. Hidy und J. R. Brock, ed., 'Topics in Current Aerosol', first edn, Vol. 2 of *Int. Reviews in Aerosol Physics and Chemistry*, Pergamon, New York, pp. 1–60.
- Gear, C. W. (1971a), 'The automatic integration of ordinary differential equations', *Comm. ACM* 14, 176–779.
- Gear, C. W. (1971b), 'DIFSUB for solution of ordinary differential equations [D2]', *Comm. ACM* 14, 185–190.
- Giauque, W. F., E. W. Hornung, J. E. Kunzler und T. R. Rubin (1960), 'The thermodynamic properties of aqueous-sulfuric acid solutions and hydrates from 15 to 300K', *J. Am. Chem. Soc.* 82, 62–70.
- Giorgi, F. und W. L. Chameides (1986), 'Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model', *J. Geophys. Res.* 91, 14367–14376.
- Girshick, S. L. und C.-P. Chiu (1990), 'Kinetic nucleation theory: A new expression for the rate of homogeneous nucleation from an ideal supersaturated vapor', *J. Chem. Phys.* 93, 1273–1277.

- Graf, H.-F., I. Kirchner, A. Robock und I. Schult (1993), 'Pinatubo eruption winter climate effects: Model versus observation.', *Clim. Dyn.* 9, 81–93.
- Graf, H.-F., J. Perlwitz und I. Kirchner (1994), 'Northern hemisphere tropospheric midlatitude circulation after violent volcanic eruption', *Contrib. Atmos. Phys.* 67, 3–13.
- Graf, H.-F., I. Kirchner und I. Schult (1996), Modelling Mt. Pinatubo climate effects, in G. Fiocco, D. Fua und G. Visconti, eds, 'The Mount Pinatubo Eruption Effects on the Atmosphere and Climate', Vol. I 42 of *NATO ASI*, Springer-Verlag, pp. 219–232.
- Graf, H.-F., J. Feichter und B. Langmann (1997), 'Volcanic sulfur emissions: Estimates of source strength and its contribution to the global sulfate distribution', *J. Geophys. Res.* 102, in print.
- Grant, W. B., E. V. Browell, J. Fishman, V. G. Brackett, R. E. Veiga, D. Nganga, A. Minga, B. Cros, C. F. Butler, M. A. Fenn, C. S. Long und L. L. Stowe (1994), 'Aerosol-associated changes in tropical stratospheric ozone following the eruption of Mount Pinatubo', *J. Geophys. Res.* 99, 8197–8211.
- Grewe, V. und M. Dameris (1996a), 'Calculating the global mass exchange between stratosphere and troposphere', *Ann. Geophys.* 14, 431–442.
- Grewe, V. und M. Dameris (1996b), The large scale mass-exchange between stratosphere and troposphere in the ECHAM3 model, in A. Staniforth, ed., 'Research Activities in atmospheric and oceanic modelling', Vol. 23, CAS/JSC working group on numerical experimentation, pp. 7.21 –7.22.
- Hamill, P. (1975), 'The time dependent growth of H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>- H<sub>2</sub>O aerosols by heteromolecular condensation', *J. Aerosol Sci.* 6, 475–482.
- Hamill, P., C. S. Kiang und R. D. Cadle (1977), 'The nucleation of H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>- H<sub>2</sub>O solution aerosol particles in the stratosphere', *J. Atmos. Sci.* 34, 150–162.
- Hamill, P., R. P. Turco, C. S. Kiang, O. B. Toon und R. C. Whitten (1982), 'An analysis of various nucleation mechanisms for sulfate particles in the stratosphere', *J. Aerosol Sci.* 13, 561–585.
- Hansen, J. und L. Travis (1974), 'Light scattering in planetary atmospheres', *Space Sci. Rev.* 16, 527–610.
- Hao, W. M., M. H. Liu und P. J. Crutzen (1990), Estimates of annual and regional releases of CO<sub>2</sub> and other trace gases to the atmosphere from fires in the tropics, based on the FAO statistics for the period 1975–1980, in J. G. Goldammer, ed., 'Fire in the Tropical Biota', number 84 in 'Ecol. Stud.', Springer Verlag, New York, pp. 440 –462.
- Heist, R. H. und H. Reiss (1974), 'Hydrates in supersaturated binary sulfuric acid – water vapor', *J. Chem. Phys.* 61, 573–581.
- Herman, J. R. und D. Larko (1994), 'Low ozone amounts during 1992–1993', *J. Geophys. Res.* 99, 3483–3496.
- Hitchmann, M. H., M. McKay und C. R. Trepte (1994), 'A climatology of stratospheric aerosol', *J. Geophys. Res.* 99, 20689–20700.

- Hoff, R. M. (1992), 'Differential SO<sub>2</sub> column measurements of the Mt. Pinatubo volcanic plume', *Geophys. Res. Lett.* 19, 175–178.
- Hofmann, D. J., T. J. Pepin und R. G. Pinnick (1975), 'Stratospheric aerosol measurements I: Time variations at northern midlatitudes', *J. Atmos. Sci.* 32, 1446–1456.
- Hofmann, D. J., J. M. Kiernan und J. Laby (1976), 'Stratospheric aerosol measurements IV: Global time variations of the aerosol burden and source considerations', *J. Atmos. Sci.* 33, 1782–1788.
- Hofmann, D. J. und J. M. Rosen (1981), 'On the background stratospheric aerosol layer', *J. Atmos. Sci.* 38, 168–181.
- Hofmann, D. J. und J. M. Rosen (1983), 'Stratospheric sulfuric acid fraction and mass estimate for the 1982 volcanic eruption of El Chichón', *Geophys. Res. Lett.* 10, 313–316.
- Hofmann, D. J., J. M. Rosen, J. W. Harder und S. R. Rolf (1986), 'Ozone and aerosol measurements in the springtime Antarctic stratosphere in 1985', *Geophys. Res. Lett.* 13, 1252–1255.
- Hofmann, D. J. und S. Solomon (1989), 'Ozone destruction through heterogeneous chemistry following the eruption of El Chichón', *J. Geophys. Res.* 94, 5029–5041.
- Hofmann, D. J., J. M. Rosen, J. W. Harder und J. V. Hereford (1989), 'Balloon-borne measurements of aerosol, condensation nuclei and cloud particles in the stratosphere at McMurdo Station, Antarctica during spring 1987', *J. Geophys. Res.* 94, 11253–11270.
- Hofmann, D. J. und T. L. Deshler (1989), 'Comparison of stratospheric clouds in the Antarctic and the Arctic', *Geophys. Res. Lett.* 16, 1429–1432.
- Hofmann, D. J. (1990), 'Increase in the stratospheric background sulfuric acid aerosol mass in the past 10 years', *Science* 248, 996–1000.
- Hofmann, D. J., S. J. Oltmans, J. M. Harris, S. Solomon, T. Deshler und B. J. Johnson (1992), 'Observation and possible causes of new ozone depletion in Antarctica in 1991', *Nature* 359, 283–287.
- Hoinka, K. P., M. E. Reinhardt und W. Metz (1993), 'North atlantic air traffic within the lower stratosphere: Cruising times and corresponding emissions', *J. Geophys. Res.* 98, 23113–23131.
- Hoke, J. E. und A. Anthes (1976), 'The initialization of numerical models by a dynamic-initialization technique', *Mon. Weather Rev.* 104, 1551–1556.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood und L. Pfister (1995), 'Stratosphere-Troposphere Exchange', *Rev. Geophys.* 33, 403–439.
- Hoskins, B. J. (1991), 'Towards a PV-theta view of the general circulation', *Tellus* A43, 27–35.
- Hunten, D. M. (1975), 'Residence time of aerosols and gases in the stratosphere', *Geophys. Res. Lett.* 2, 26–28.
- Jaeger-Voirol, A., P. Mirabel und H. Reiss (1987), 'Hydrates in supersaturated binary sulfuric acid-water vapor: A reexamination', *J. Chem. Phys.* 87, 4849–4852.

- Jaeger-Voirol, A. und P. Mirabel (1988), 'Nucleation rate in a binary mixture of sulfuric acid and water vapor', *J. Chem. Phys.* 92, 32518–3521.
- Jäger, H. und K. Wege (1990), 'Stratospheric ozone depletion at northern midlatitudes after major volcanic eruptions', *J. Atmos. Chem.* 10, 273–278.
- Jäger, H. (1992), 'The Pinatubo eruption cloud observed by lidar at Garmisch-Partenkirchen', *Geophys. Res. Lett.* 19, 191–194.
- Jäger, H., O. Uchino, T. Nagai, T. Fujimoto, V. Freudenthaler und F. Homburg (1995), 'Ground-based remote sensing of the decay of the Pinatubo eruption cloud at three northern hemisphere sites', *Geophys. Res. Lett.* 22, 607–610.
- Jensen, E. J. und O. B. Toon (1992), 'The potential effects of volcanic aerosols on cirrus cloud microphysics', *Geophys. Res. Lett.* 19, 1759–1762.
- Jeuken, A. B. M., P. C. Siegmund, L. Heijboer, J. Feichter und L. Bengtsson (1996), 'On the potential of assimilating meteorological analyses into a global climate model for the purpose of model validation', *J. Geophys. Res.* 101, 16939–16950.
- Johnston, P. V., R. L. McKenzie, J. G. Keys und W. A. Matthews (1992), 'Observation of depleted stratospheric NO<sub>2</sub> following the Pinatubo volcanic eruption', *Geophys. Res. Lett.* 19, 211–213.
- Jonsson, H. H., J. C. Wilson, C. A. Brock, J. E. Dye, G. V. Ferry und K. R. Chan (1996), 'Evolution of the stratospheric aerosol in the northern hemisphere following the June 1991 volcanic eruption of Mount Pinatubo: Role of tropospheric-stratospheric exchange and transport', *J. Geophys. Res.* 102, 1553–1570.
- Junge, C. E., C. W. Chagnon und J. E. Manson (1961), 'Stratospheric aerosols', *J. Meteorol.* 18, 81–108.
- Kärcher, B., Th. Peter und R. Ottmann (1995), 'Contrail formation: Homogeneous nucleation of H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O droplets', *Geophys. Res. Lett.* 22, 1501–1504.
- Kinne, S., O. B. Toon und M. J. Prather (1992), 'Buffering of stratospheric circulation by changing amounts of tropical ozone: A Pinatubo case study', *Geophys. Res. Lett.* 19, 1927–1930.
- Kinne, S. und R.W. Bergstrom (1996), 'Latitudinal and temporal variations of the climatic response to enhanced stratospheric aerosol concentration from the Mt. Pinatubo eruption', in M. Kulmala und P. E. Wagner, eds, 'Proceedings of the 14th International Conference on Nucleation and Atmospheric Aerosols', Elsevier Science, Oxford.
- Kinnison, D. E., K. E. Grant, P. S. Connell, D. A. Rotman und D. J. Wuebbles (1994), 'The chemical and radiative effects of the Mount Pinatubo eruption', *J. Geophys. Res.* 99, 25705–25731.
- Kirchner, I., H.-F. Graf, G. L. Stenchikov und A. Robock (1996), 'ECHAM4 GCM simulations of the climatic response to the 1991 Pinatubo eruption – Winter warming confirmed', in 'Proceedings of the First SPARC General Assembly on Stratospheric Processes and their Role in Climate', Melbourne, Australien.

- Kjellström, E. (1997), 'A three-dimensional global model study of Carbonyl sulfide in the troposphere and in the lower stratosphere', *J. Atmos. Chem.* submitted.
- Koepke, P., M. Hess, I. Schult und E. P. Shettle (1997), 'Global aerosol data set', *Theo. Appl. Clim.* submitted.
- Koike, M., N. B. Jones, W. A. Matthews, P. V. Johnston, R. L. McKenzie, D. Kinnison und J. Rodriguez (1994), 'Impact of Pinatubo aerosols on the partitioning between  $\text{NO}_2$  and  $\text{HNO}_3$ ', *Geophys. Res. Lett.* 21, 597–600.
- Koop, T., U. M. Biermann, W. Raber, P.B. Luo, P. J. Crutzen und T. Peter (1995), 'Do stratospheric aerosol droplets freeze above the ice frost point', *Geophys. Res. Lett.* 22, 917–920.
- Krishnamurti, T. N., J. Xue, H. S. Bedi, K. Ingles und D. Oosterhof (1991), 'Physical initialization for numerical weather prediction over the tropics', *Tellus* 43AB, 53–81.
- Kritz, M. A. (1975), Formation mechanism of the stratospheric aerosol, Ph.D.Thesis, Yale University, New Haven, Conn.
- Krueger, A. J., L. S. Walter, P. K. Bhartia, C. C. Schnetzler, N. A. Krotkov, I. Sprod und G. J. S. Bluth (1995), 'Volcanic sulfur dioxide measurements from the total ozone mapping spectrometer instruments', *J. Geophys. Res.* 100, 14057–14076.
- Kulmala, M. und A. Laaksonen (1990), 'Binary nucleation of water-sulfuric acid system: Comparison of classical theories with different  $\text{H}_2\text{SO}_4$  saturation vapor pressures', *J. Chem. Phys.* 93, 696–701.
- Kulmala, M., M. Lazaridis, A. Laaksonen und T. Vesala (1991), 'Extended hydrates interaction model: Hydrate formation and the energetics of binary homogeneous nucleation', *J. Chem. Phys.* 94, 7411–7413.
- Kulmala, M., A. Laaksonen und S. L. Girshick (1992), 'The self-consistency correction to homogeneous nucleation: Extension to binary systems', *J. Aerosol Sci.* 23, 309–312.
- Laaksonen, A. und M. Kulmala (1991), 'Homogeneous heteromolecular nucleation of sulfuric acid and water vapors in stratospheric conditions: A theoretical study of the effect of hydrate interaction.', *J. Aerosol Sci.* 22, 779–787.
- Labitzke, K. und M. P. McCormick (1992), 'Stratospheric temperature increases due to Pinatubo aerosols', *Geophys. Res. Lett.* 19, 207–210.
- Lacis, A., J. Hansen und M. Sato (1992), 'Climate forcing by stratospheric aerosols', *Geophys. Res. Lett.* 19, 1607–1610.
- Laursen, L. und E. Eliassen (1989), 'On the effect of the damping mechanism in an atmospheric general circulation model', *Tellus* 41A, 385–400.
- Legrand, M. und R. J. Delmas (1987), 'A 220 year continuous record of volcanic  $\text{H}_2\text{SO}_4$  in the Antarctic ice sheet', *Nature* 327, 671–676.
- Long, C. S. und L. L. Stowe (1994), 'Using the NOAA/AVHRR to study stratospheric aerosol optical thickness following the Mt. Pinatubo eruption', *Geophys. Res. Lett.* 21, 2215–2218.

- Manzini, E. und L. Bengtsson (1994), Stratospheric climate and variability from a general circulation model and observations: Part I: Results for the December–February season., Report 148, Max–Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- Manzini, E. und L. Bengtsson (1995), Stratospheric climate and variability from a general circulation model and observations: Part II: Results for March–May, June –August and September–November, Report 164, Max–Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- Mattis, I. (1996), Zeitliche Entwicklung des stratosphärischen Aerosols nach dem Ausbruch des Pinatubo: Analyse von Raman-Lidarmessungen, Diplomarbeit, Universität Leipzig, Leipzig.
- McCormick, M. P. und R. E. Veiga (1992), ‘SAGE II measurements of early Pinatubo aerosols’, *Geophys. Res. Lett.* 19, 155–158.
- McCormick, M. P., L. W. Thomason und C. R. Trepte (1995), ‘Atmospheric effects of the Mt. Pinatubo eruption’, *Nature* 373, 399–404.
- McDonald, J. E. (1965), ‘Saturation vapor pressures over supercooled water’, *J. Geophys. Res.* 70, 1553–1554.
- McElroy, M. B., R. J. Salawitch, S. C. Wofsy und J. A. Logan (1986), ‘Reductions of Antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine’, *Nature* 321, 759–762.
- Michelangeli, D. V., M. Allen und Y. L. Yung (1989), ‘El Chichón volcanic aerosols: Impact of radiative, thermal, and chemical perturbations’, *J. Geophys. Res.* 94, 18429–18443.
- Minnis, P., E. F. Harrison, L. L. Stowe, G. G. Gibson, F. M. Denn, D. R. Doelling und W. L. Smith Jr. (1993), ‘Radiative climate forcing by the Mount Pinatubo eruption’, *Science* 259, 1411–1415.
- Mirabel, P. J. und A. Jaecker-Voirol (1988), Binary homogeneous nucleation, in P. E. Wagner und G. Vali, eds, ‘Atmospheric Aerosols and Nucleation’, Springer–Verlag, Berlin, Heidelberg, New York.
- Mirabel, P. und J. L. Clavelin (1978), ‘Experimental study of nucleation in binary mixtures: The nitric acid–water and sulfuric acid–water systems’, *J. Chem. Phys.* 68, 5020–5027.
- Möhler, O und F. Arnold (1992), ‘Gaseous sulfuric acid and sulfur dioxide measurements in the arctic troposphere and lower stratosphere: Implications for hydroxyl radical abundances’, *Geophys. Res. Lett.* 17, 1763–1766.
- Molina, M. J., T. L. Tso, L. T. Molina und F. C. Wang (1987), ‘The chemical interaction of ClONO<sub>2</sub> and ice and the release of active chlorine in the Antarctic stratosphere’, *Science* 238, 1253–1259.
- Morcrette, J. J. (1991), ‘Radiation and cloud radiative properties in the ECMWF operational weather forecast model’, *J. Geophys. Res.* 96, 9121–9132.
- Mote, P. W., J. R. Holton und B. A. Boville (1994), ‘Characteristics of stratosphere–troposphere exchange in a general circulation model’, *J. Geophys. Res.* 99, 16815–16829.

- Nair, P. V. N. und K. G. Vohra (1975), 'Growth of aqueous sulphuric acid droplets as a function of relative humidity', *J. Aerosol Sci.* 6, 265–271.
- Neuber, R., G. Beyerle, G. Fiocco, A. di Sarra, K. H. Fricke, Ch. David, S. Godin, B. M. Knudsen, L. Stefanutti, G. Vaughan und J.-P. Wolf (1994), 'Latitudinal distribution of stratospheric aerosols during the EASOE winter 1991/92.', *Geophys. Res. Lett.* 21, 1283–1286.
- Nicholls, N., G. V. Gruza, J. Jouzel, T.R. Karla, L. A. Ogallao und D. E. Parker (1996), Observed climate variability and change, in J. T.Houghton, F. G. M.Filho, B. A.Callander und K.Maskell, eds, 'Climate Change 1995. The IPCC Second Scientific Assessment', Cambridge Univ. Press, pp. 137–181.
- Nordeng, T. E. (1997), 'Extended versions of the convective parameterization scheme at ECM-WF and their impact and transient activity of the models in the tropics.', *Q.J.R. Meteorol. Soc.* submitted.
- Organization, World Meteorological (1992), Scientific assessment of ozone depletion: 1991, WMO Report 25, Global Ozone Research and Monitoring Project, Geneva.
- Orszag, S. A. (1970), 'Transform method for calculation of vector coupled sums', *J. Atmos. Sci.* 27, 890–895.
- Palmer, K. F. und D. Williams (1975), 'Optical constants of sulfuric acid: Application to the clouds of Venus', *Appl. Opt.* 14, 208–219.
- Pawson, S., K. Labitzke, R. Lenschow, B. Naujokat, B. Rajewski, M. Wiesener und R. Wohlfahrt (1993), Climatology of the Northern Hemisphere Stratosphere. Derived from Berlin Analyses. Part 1: Monthly Means., Meteorologische Abhandlungen Band 7 Heft 3, Freie Universität Berlin, Institut für Meteorologie, Berlin.
- Perlwitz, J. und H.-F. Graf (1995), 'The statistical connection between tropospheric and stratospheric circulation of the northern hemisphere in winter', *J. Climate* 8, 2281–2295.
- Peter, T. (1996), Formation mechanismus of polar stratospheric clouds, in M.Kulmala und P. E.Wagner, eds, 'Proceedings of the 14th International Conference on Nucleation and Atmospheric Aerosols', Elsevier Science, Oxford.
- Phillips, W. F. (1975), 'Drag on a small sphere moving through a gas', *Phys. Fluids* 18, 1089–1093.
- Pinnick, R. G., J. M. Rosen und D. J. Hofmann (1976), 'Stratospheric aerosol measurements III: Optical model calculations', *J. Atmos. Sci.* 33, 304–314.
- Pinto, J. R., R. P. Turco und O. B. Toon (1989), 'Self-limiting physical and chemical effects in volcanic eruption clouds', *J. Geophys. Res.* 94, 11165–11174.
- Pitari, G. (1993a), 'A numerical study of the possible perturbation of stratospheric dynamics due to Pinatubo aerosols: Implications for tracer transport', *J. Atmos. Sci.* 50, 2443–2461.
- Pitari, G. und V. Rizzi (1993b), 'An estimate of the chemical and radiative perturbation of stratospheric ozone following the eruption of Mt. Pinatubo', *J. Atmos. Sci.* 50, 3260–3276.

- Prather, M. (1992), 'Catastrophic loss of stratospheric ozone in dense volcanic clouds', *J. Geophys. Res.* 97, 10187–10191.
- Pruppacher, H. R. und J. O. Klett (1978), *Microphysics of Clouds and Precipitation*, D. Reidel, Boston.
- Pudykiewicz, J. A. und A. P. Dastoor (1995), 'On numerical simulation of the global distribution of sulfate aerosol produced by a large volcanic eruption', *J. Climate* 8, 464–473.
- Pueschel, R. F., J. M. Livingston, P. B. Russel und S. Verma (1994), 'Physical and optical properties of the Pinatubo volcanic aerosol: Aircraft observations with impactors and a suntracking photometer', *J. Geophys. Res.* 95, 12915–12922.
- Raes, F., A. Saltelli und R. Van Dingenen (1992), 'Modelling formation and growth of H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O aerosols: Uncertainty analysis and experimental evaluation', *J. Aerosol Sci.* 22, 759–771.
- Randel, W. J., F. Wu, J. M. Russel III, J. W. Waters und L. Froidevaux (1995), 'Ozone and temperature changes in the stratosphere following the eruption of Mount Pinatubo', *J. Geophys. Res.* 100, 16753–16764.
- Rao, N. R. C., L. L. Stowe und E. P. McClain (1989), 'Remote sensing of aerosols over the oceans using AVHRR data: Theory, practice, and applications', *Int. J. Remote. Sens.* 10, 743–749.
- Rasch, P. J. und D. L. Williamson (1990a), 'On shape-preserving interpolation and semi-Lagrangian transport', *SIAM, J. Sci. Stat. Comput.* 11, 656–687.
- Rasch, P. J. und D. L. Williamson (1990b), 'Computational aspects of moisture transport in global models of the atmosphere', *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 116, 1071–1090.
- Rasch, P. J., B. A. Boville und G. P. Brasseur (1995), 'A three-dimensional general circulation model with coupled chemistry for the middle atmosphere', *J. Geophys. Res.* 100, 9041–9071.
- Read, W.G., L. Froidevaux und J. W. Waters (1993), 'Microwave limb sounder measurements of stratospheric SO<sub>2</sub> from the Mt. Pinatubo volcano', *Geophys. Res. Lett.* 20, 1299–1302.
- Reiss, H. (1950), 'The kinetic of phase transitions in binary systems', *J. Chem. Phys.* 18, 840–848.
- Remsberg, E. E., P. P. Bhatt und J. M. Russel III (1996), 'Estimates of water vapor budget of the stratosphere from UARS HALOE data', *J. Geophys. Res.* 101, 6749–6766.
- Renninger, R.G., F. C. Hiller und R. C. Bone (1981), 'Comment on "self-nucleation in the sulfuric acid-water system"', *J. Chem. Phys.* 75, 1584–1586.
- Rind, D., E.-W. Chiou, S. Oltmanns, J. Lerner, J. Larsen, M. P. McCormick und L. McMaster (1993), 'Overview of the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II water vapor observations: Method, validation and data characteristics', *J. Geophys. Res.* 98, 4835–4856.
- Robock, A. und J. Mao (1992), 'Winter warming from large volcanic eruptions', *Geophys. Res. Lett.* 19, 2405–2408.

- Rockel, B., E. Raschke und B. Weyres (1991), 'A parameterization of broad band radiative transfer properties of water, ice, and mixed clouds', *Contrib. Atmos. Phys.* 64, 1–12.
- Roeckner, E., K. Arpe, L. Bengtsson, M. Christoph, M. Claussen, L. Dümenil, M. Esch, M. Giorgetta, U. Schlese und U. Schulzweida (1996), The atmospheric general circulation model ECHAM-4: Model description and simulation of the present-day climate, Report 218, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- Rosen, J. M., D. J. Hofmann und J. Laby (1975), 'Stratospheric aerosol measurements II: The worldwide distribution', *J. Atmos. Sci.* 32, 1457–1462.
- Rosen, J. M., D. J. Hofmann und S. P. Singh (1978), 'A steady-state stratospheric aerosol model', *J. Atmos. Sci.* 35, 1304–1313.
- Rosen, J. M., N. T. Kjöme und H. Fast (1992), 'Penetration of Mt. Pinatubo aerosols in the north polar vortex', *Geophys. Res. Lett.* 19, 1751–1754.
- Russel, P. B., T. J. Swisler, M. P. McCormick, W. P. Chu, J. M. Livingston und T. J. Pepin (1981), 'Satellite and correlative measurements of the stratospheric aerosol. I: An optical model for data conversions', *J. Atmos. Sci.* 38, 1279–1294.
- Russel, P. B., J. M. Livingston, E. G. Dutton, R. F. Pueschel, J. A. Regan, T. E. DeFoor, M. A. Box, D. Allen, P. Pilewskie, B. M. Herman, S. A. Kinne und D. J. Hofmann (1993), 'Pinatubo and pre-Pinatubo optical depth spectra Mauna Loa measurements, comparisons, inferred particle size distributions, radiative effects, and relationship to lidar data', *J. Geophys. Res.* 98, 22969–22985.
- Russel, P. B., J. M. Livingston, R. F. Pueschel, J. J. Hughes, J. B. Pollack, S. L. Brooks, P. Hamill, L. W. Thomason, L. L. Stowe, E. G. Dutton und R. W. Bergstrom (1996), 'Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol, derived from diverse measurements and analyses', *J. Geophys. Res.* 101, 18745–18763.
- Sabinina, L. und L. Terpugow (1935), 'Die Oberflächenspannung des Systems Schwefelsäure-Wasser.', *Z. Physik. Chem.* A173, 237–241.
- Sassen, K., D. O. Starr, G. G. Mace, M. R. Poellot, S. H. Melfi, W. L. Eberhard, J. D. Spinhirne, E. W. Eloranta, D. E. Hagen und J. Hallett (1995), 'The 5–6 December 1991 FIRE II jet stream cirrus case study: Possible influences of volcanic aerosols', *J. Atmos. Sci.* 52, 97–132.
- Sato, M., J. E. Hansen, M. P. McCormick und J. B. Pollack (1993), 'Stratospheric aerosol optical depths, 1850–1990', *J. Geophys. Res.* 98, 22987–22994.
- Schlager, H., F. Arnold, D. Hofmann und T. Deshler (1990), 'Balloon observation of nitric acid aerosol formation in the arctic stratosphere: I. Gaseous nitric acid', *Geophys. Res. Lett.* 17, 1275–1278.
- Schoeberl, M. R., P. K. Bhartia und E. Hilsenrath (1993), 'Tropical ozone loss following the eruption of Mt. Pinatubo', *Geophys. Res. Lett.* 20, 29–32.
- Schult, I. (1991), Bildung und Transport von Aerosolteilchen in der Stratosphäre und Ihre Bedeutung für den Strahlungshaushalt, Dissertation, Universität Hamburg, Hamburg.

- Seinfeld, J. H. (1986), *Atmospheric chemistry and physics of air pollution*, John Wiley & Sons, New York.
- Shaw, Sir Napier (1930), *Manual of meteorology*, Vol. III, The Physical Processes of Weather, University Press, Cambridge.
- Sheridan, P. J., R. C. Schnell, D. J. Hofmann und T. Deshler (1992), 'Electron microscope studies of Mt. Pinatubo aerosol layers over Laramie, Wyoming during summer 1991', *Geophys. Res. Lett.* 19, 203–206.
- Shugard, W. J., R. H. Heist und H. Reiss (1974), 'Theory of vapor phase nucleation in binary mixtures of water and sulfuric acid', *J. Chem. Phys.* 61, 5298–5305.
- Solomon, S., R. R. Garcia, F. S. Rowland und D. J. Wuebbles (1986), 'On the depletion of Antarctic ozone', *Nature* 321, 755–758.
- Solomon, S., R. W. Portmann, R. R. Garcia, L. W. Thomason, L. R. Poole und M. P. McCormick (1996), 'The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northern midlatitudes', *J. Geophys. Res.* 101, 6713–6727.
- Spalding, D. B. (1972), 'A novel finite-difference formulation for differential expression involving both first and second derivatives', *Int. J. Num. Methods Eng.* 4, 555.
- Spiro, P. A., D. A. Jacob und J. A. Logan (1992), 'Global inventory of sulfur emissions with  $1^\circ \times 1^\circ$  resolution', *J. Geophys. Res.* 97, 6023–6036.
- Sprod, I. E., G.J.S. Bluth, A.J. Krueger, L.S. Walter und C.C. Schnetzler (1993), 'Comparison of TOMS SO<sub>2</sub> data from El Chichón and Mount Pinatubo eruptions', *EOS. Trans. AGU* 74, 132.
- Stauffer, D. (1976), 'Kinetic theory of two-component ("heteromolecular") nucleation and condensation', *J. Aerosol Sci.* 7, 319–33.
- Steele, H. M. und P. Hamill (1981), 'Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulphuric acid–water droplets in the stratosphere', *J. Aerosol Sci.* 12, 517–528.
- Steil, B. (vor. 1997), *Modellierung der Chemie der globalen Strato- und Troposphäre mit einem dreidimensionalen Zirkulationsmodell*, Dissertation, Universität Hamburg, Hamburg.
- Stenchikov, G. L., I. Kirchner, A. Robock, H.-F. Graf, J. C. Antuna, R. Grainger, A. Lambert und L. Thomason (1997), *Radiative forcing from the 1991 Mt. Pinatubo volcanic eruption*, Report 231, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- Stowe, L. L., R. M. Carey und P. P. Pellegrino (1992), 'Monitoring the Mt. Pinatubo aerosol layer with NOAA/11 AVHRR data', *Geophys. Res. Lett.* 19, 159–162.
- Sundquist, H. (1978), 'A parameterization for non convective condensation including prediction of cloud water content', *Q.J.R. Meteorol. Soc.* 104, 677–690.
- Tabazadeh, A. und R. P. Turco (1993), 'Stratospheric chlorine injection by volcanic eruptions – HCl scavenging and implication for ozone', *Science* 260, 1082–1086.

- Tanre, D., J. F. Geleyn und J. Slingo (1984), First results of the introduction of an advanced aerosol-radiation interaction in the ECMWF low resolution global model, *in* H. E. Gerber und A. Deepak, eds, 'Aerosols and their climate effects', A. Deepak Publishing, pp. 133-177.
- The Numerical Algorithmus Group Ltd. (1991), The NAG Fortran Library Manual, Mark 15, Oxford.
- Thomason, L. W., L. R. Poole und T. Deshler (1997), 'A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II: 1984-1994', *J. Geophys. Res.* submitted.
- Tie, X., X. Lin und G. Brasseur (1994a), 'Two-dimensional coupled dynamical/chemical/microphysical simulation of global distribution of El Chichón volcanic aerosols', *J. Geophys. Res.* 99, 16779-16792.
- Tie, X., G. P. Brasseur, B. Briegleb und C. Grainer (1994b), 'Two-dimensional simulation of Pinatubo aerosol and its effect on stratospheric ozone', *J. Geophys. Res.* 99, 20545-20562.
- Tiedtke, M. (1989), 'A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models.', *Mon. Weather Rev.* 117, 1779-1800.
- Toon, O. B., R. P. Turco, P. Hamill, C. S. Kiang und R. C. Whitten (1979a), 'A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere: II. Sensitivity studies and comparison with observations', *J. Atmos. Sci.* 36, 718-36.
- Toon, O. B., R. P. Turco, P. Hamill, C. S. Kiang und R. C. Whitten (1979b), The NASA-Ames Research Center stratospheric aerosol Model II. Sensitivity studies and comparison with observations, NASA Technical Paper 1362, NASA.
- Toon, O. B., P. Hamill, R. P. Turco und J. Pinto (1986), 'Condensation of HNO<sub>3</sub> and HCl in the polar stratospheres', *Geophys. Res. Lett.* 13, 1284-1287.
- Toon, O. B., R. P. Turco, D. Westphal, R. Malone und M. S. Liu (1988), 'A multidimensional model for aerosols: Description of computational analogs', *J. Atmos. Sci.* 45, 2123-2143.
- Trepte, C. R. und M. H. Hitchman (1992), 'Tropical stratospheric circulation deduced from satellite aerosol data', *Nature* 355, 626-628.
- Trepte, C. R., R. V. Veiga und M. P. McCormick (1993), 'The poleward dispersal of Mount Pinatubo volcanic aerosol', *J. Geophys. Res.* 98, 18563-18573.
- Trepte, C. R., L. W. Thomason und G. S. Kent (1994), 'Banded structures in stratospheric aerosol distributions', *Geophys. Res. Lett.* 98, 2397-2400.
- Turco, R. P., P. Hamill, O. B. Toon, R. C. Whitten und C. S. Kiang (1979a), 'A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere: I. Physical processes and computational analogs', *J. Atmos. Sci.* 36, 718-36.
- Turco, R. P., P. Hamill, O. B. Toon, R. C. Whitten und C. S. Kiang (1979b), The NASA-Ames Research Center stratospheric aerosol model I. Physical processes and computational analogs, NASA Technical Paper 1362, NASA.

- Turco, R. P., R. J. Cicerone, E.C. Y. Inn und L. A. Capone (1981), 'Long wavelength carbonyl sulfide photodissociation', *J. Geophys. Res.* 86, 5373–5377.
- Turco, R. P., R. C. Whitten und O. B. Toon (1982), 'Stratospheric aerosol: Observation and theory', *Rev. Geophys. Space Phys.* 20, 233–279.
- Valero, F. P. J. und P. Pilewskie (1992), 'Latitudinal survey of spectral optical depths of the Pinatubo volcanic cloud – derived particle sizes, columnar mass loadings, and effects on planetary albedo', *Geophys. Res. Lett.* 19, 163–166.
- van Velthoven, P. F. J. und H. Kelder (1996), 'Estimates of stratosphere–troposphere exchange: Sensitivity to model formulation and horizontal resolution', *J. Geophys. Res.* 101, 1429–1434.
- Wandinger, U., A. Ansmann, J. Reichardt und T. Deshler (1995), 'Determination of stratospheric–aerosol microphysical properties from independent extinction and backscattering measurements with a Raman lidar', *Appl. Opt.* 34, 8315–8329.
- Weber, J. R., J. J. Marti, P. H. McMurray, F. L. Eisle und D. J. Tanner (1994), 'A comparison of measured atmospheric nucleation rates to classical and collision controlled nucleation rate theories', *EOS. Trans. AGU* 75, 134.
- Whitten, R. C., O. B. Toon und R. P. Turco (1980), 'The stratospheric sulfate aerosol layer: Processes, models, observations, and simulations', *Pure Appl. Geophys.* 118, 86–127.
- Wilemski, G. (1984), 'Composition of the critical nucleus in multicomponent vapor nucleation', *J. Chem. Phys.* 80, 1370–1371.
- Williamson, D. L. und P. J. Rasch (1989), 'Two–dimensional semi–lagrangian transport with shape–preserving interpolation', *Mon. Weather Rev.* 117, 102–129.
- Williamson, D. L. (1990), 'Semi–lagrangian moisture transport in the NMC spectral model', *Tellus* 42A, 413–428.
- Wilson, J. C., M. Loewenstein, , D. W. Fahey, B. Gary, S. D. Smith, K. K. Kelly, G. V. Ferry und K. R. Chan (1989), 'Observations of condensation nuclei in the airborne arctic ozone experiment: Implications for new particle formation and polar stratospheric cloud formation', *J. Geophys. Res.* 94, 16437–16448.
- Wilson, J. C., M. R. Stolzenburg, W. E. Clark, M. Loewenstein, G. V. Ferry, K. R. Chan und K. K. Kelly (1992), 'Stratospheric sulfate aerosol in and near the northern hemisphere polar vortex: The morphology of the sulfate layer, multimodal size distributions and the effect of denitrification', *J. Geophys. Res.* 97, 7997–8013.
- Wilson, J. C., H. H. Jonsson, C. A. Brock, D. W. Toohey, L. M. Avallone, D. Baumgardner, J. E. Dye L. R. Poole, D. C. Woods, R. J. DeCoursey, M. Osborn, M. C. Pitts, K. K. Kelly, K. R. Chan, G. V. Ferry, M. Loewenstein, J. R. Podolske und A. Weaver (1993), 'In situ observations of aerosol and chlorine monoxide after the 1991 eruption of Mount Pinatubo: Effect of reactions on sulfate aerosols', *Science* 261, 1140–1143.
- Wofsy, S. E. und M. B. McElroy (1973), 'On vertical mixing in the upper stratosphere and lower mesosphere', *J. Geophys. Res.* 78, 2619–2624.

- Wyslouzil, B.E., J. H. Seinfeld, R. C. Flanagan und K. Okuyama (1991), 'Binary nucleation in acid water systems: II. Sulfuric acid-water and a comparison with methanesulfonic acid-water', *J. Chem. Phys.* 94, 6842-6850.
- Wyslouzil, B. E. und G. Wilemski (1996), Transient behavior and time lags in binary nucleation, in M.Kulmala und P. E.Wagner, eds, 'Proceedings of the 14th International Conference on Nucleation and Atmospheric Aerosols', Elsevier Science, Oxford.
- Young, R. E., H. Houben und O. B. Toon (1994), 'Radiatively forced dispersion of the Mt. Pinatubo volcanic cloud and induced temperature perturbations in the stratosphere during the first few months following the eruption', *Geophys. Res. Lett.* 21, 369-372.
- Yue, G. K. und P. Hamill (1979), 'The homogeneous nucleation rates of H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O aerosol particles in air', *J. Aerosol Sci.* 10, 609-614.
- Yue, G. K., L. R. Poole, P. H. Wang und E. W. Chiou (1994), 'Stratospheric aerosol acidity, and refractive index deduced from SAGE II and NMC temperature data', *J. Geophys. Res.* 99, 3727-3738.
- Zhao, J. (1993), Numerical Studies of the Stratospheric Aerosol layer under Background and Perturbed Conditions, Phd thesis, University of California, Los Angeles.
- Zhao, J., R. P. Turco und O. B. Toon (1995a), 'A model simulation of Pinatubo volcanic aerosols in the stratosphere', *J. Geophys. Res.* 100, 7315-7328.
- Zhao, J. und R. P. Turco (1995b), 'Nucleation simulation in the wake of a jet aircraft in stratospheric flight', *J. Atmos. Sci.* 26, 779-795.
- Washburn, E. W., ed. (1928), *International Critical Tables*, Vol. 3. vol, Mc Graw Hill, New York. p. 56.

## Danksagung

Ohne die Anregung, Kritik und Unterstützung einer Reihe von Leuten, wäre diese Arbeit nicht geschrieben worden. Mein besonderer Dank gilt dabei:

- Dr. Hans-F. Graf für die interessante Aufgabenstellung und die hilfreichen Anregungen und Diskussionen. Sein Enthusiasmus und Optimismus haben mir immer wieder aufgezeigt, wie spannend Wissenschaft sein kann. Dies hat mir vor allem in den kritischen Phasen dieser Arbeit sehr geholfen.
- Herrn Prof. Dr. Hasselmann für die Möglichkeit, diese Arbeit am Max-Planck-Institut für Meteorologie anfertigen zu können. Die sehr guten technischen Möglichkeiten sowie die offene Atmosphäre am Institut sind sicher nicht selbstverständlich.
- Hans Feichter, Bernd Kärcher, Ingrid Schult und Benedikt Steil für die vielen interessanten und anregenden Diskussionen. Ich habe eine Menge von ihnen gelernt.
- Uli Schleese für seine geduldige Hilfe bei der Verwendung des ECHAM-Modells.
- meinen Kolleginnen und Kollegen am Schlump, weil ich immer mit Fragen und Problemen zu ihnen kommen konnte.
- Albert Ansmann, Terry Deshler, Horst Jäger und Benedikt Steil für die Bereitstellung von Meßdaten bzw. Simulationsdaten.
- Christoph Brühl, Andreas Chlond, Hans Feichter und Stefan Kinne für die freundliche Überlassung von Programmen.
- Marion Grunert für ihre Hilfe bei der Anfertigung der Abbildungen.
- meinen Eltern dafür, daß sie mich immer, fern und nah, ermutigt haben, meinen eigenen Weg zu gehen.
- Frauke Timmreck und Martin Welters für ihre Geduld und ihr Verständnis. Sie haben besonders in den letzten Monaten einen großen Teil meiner schlechten Laune über sich ergehen lassen müssen.
- Hannes Thiemann dafür, daß er mit mir gemeinsam den Entstehungsprozeß dieser Arbeit erlebt und erlitten hat. Ohne seinen Zuspruch wäre diese Arbeit nie zu Ende geschrieben worden.

- |   |  |
|---|--|
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 14</b><br>März 1992      | <b>Windinduzierte interannuale Variabilität in der Warmwassersphäre von 1981 bis 1987</b><br><b>Teil II: Fluktuationen im Kohlenstoffkreislauf</b><br>Arne M. E. Winguth       |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 15</b><br>Dezember 1992  | <b>Fernerkundung der optischen Eigenschaften von Seen mit Landsat 5 Thematic Mapper</b><br>Waltraud Manschke   |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 16</b><br>Juli 1993      | <b>Baroklin instabile Wellen der Atmosphäre:<br/>Empirisch abgeleitete Moden im Vergleich zu quasi-geostrophischer Theorie</b><br>Reiner Schnur                                |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 17</b><br>September 1993 | <b>Messung des Wasserdampfes in der konvektiven Grenzschicht mit DIAL und RADAR-RASS</b><br>Christoph Senff  |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 18</b><br>November 1993  | <b>Zur saisonalen Variation des ozeanischen Kohlendioxidpartialdrucks</b><br>Katharina D. Kurz   |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 19</b><br>Januar 1994    | <b>Dynamisch-stochastische Vorhersage-Experimente mit Modellen der allgemeinen Zirkulation für einen Zeitraum von 10 Tagen bis 100 Jahren</b><br>Ulrich Cubasch                |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 20</b><br>Februar 1994   | <b>Deposition radioaktiver Tracer in einem Transportmodell der Atmosphäre</b><br>Stefan Rehfeld  |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 21</b><br>Februar 1994   | <b>Der Einfluß vulkanischen Aerosols und simultaner Temperaturanomalien der tropischen Meeresoberfläche ( El Niño) auf das Klimasystem</b><br>Ingo Kirchner                    |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 22</b><br>Juni 1994      | <b>ENSO induzierte Variabilität im Indischen Ozean</b><br>Andreas Villwock   |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 23</b><br>Juni 1994      | <b>Untersuchungen zu Mechanismus und Vorhersagbarkeit von ENSO mit einem vereinfachten gekoppelten Ozean - Atmosphäre - Modell</b><br>Moritz Flügel                            |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 24</b><br>Juli 1994      | <b>Nordatlantische Variabilität in einem Ozeanzirkulationsmodell im Zeitbereich von Dekaden</b><br>Ralf Weiße  |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr.25</b><br>August 1994     | <b>Inverse Modellierung des atmosphärischen Methan-Kreislaufs unter Verwendung eines drei-dimensionalen Modells des Transports und der Chemie der Troposphäre</b><br>Ralf Hein |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 26</b><br>August 1994    | <b>Optimierung eines Seegangmodells mit der Adjungierten Methode</b><br>Georg Barzel   |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 27</b><br>März 1995      | <b>Stabile Wasserisotope im allgemeinen Zirkulationsmodell ECHAM</b><br>Georg Hoffmann   |

- EXAMENSARBEIT Nr. 28**  
Mai 1995  
**The Atmospheric Response to North Atlantic Sea Surface Temperature Anomalies in GCM Experiments**  
Viacheslav V. Kharin
- EXAMENSARBEIT Nr. 29**  
Juni 1995  
**Einbindung der regionalen troposphärischen Chemie in die Hamburger Klimamodellumgebung: Modellrechnungen und Vergleich mit Beobachtungsdaten**  
Bärbel Langmann
- EXAMENSARBEIT Nr. 30**  
Juli 1995  
**Messung des Ozonflusses in der unteren Troposphäre mit einem neuen Ozon-DIAL-System und einem Radar-RASS**  
Thorsten Schaberl
- EXAMENSARBEIT Nr. 31**  
November 1995  
**Untersuchungen troposphärischen Ozons mit DIAL**  
Gunther C. Grabbe
- EXAMENSARBEIT Nr. 32**  
November 1995  
**Die Schneedecke als Komponente des Klimasystems und ihre Modellierung**  
Bettina Loth
- EXAMENSARBEIT Nr. 33**  
Dezember 1995  
**Der Einfluß des El Niño/Southern Oscillation Phänomens auf die atmosphärische Zirkulation in den mittleren Breiten der Nordhalbkugel: Beobachtungen und Modellsimulationen**  
Wilhelm May
- EXAMENSARBEIT Nr. 34**  
Dezember 1995  
**DIAL-Messungen von vertikalen Wasserdampfverteilungen Ein Lasersystem für Wasserdampf- und Temperaturmessungen in der Troposphäre**  
Volker Wulfmeyer
- EXAMENSARBEIT Nr. 35**  
Januar 1996  
**Der Einfluß von Datenassimilation auf ENSO Simulationen und Vorhersagen**  
Martin Fischer
- EXAMENSARBEIT Nr. 36**  
Februar 1996  
**Bodengebundene Fernerkundung von Eiswolken im nahen Infrarot**  
Margarita Betancor Gothe
- EXAMENSARBEIT Nr. 37**  
März 1996  
**Turbulenzcharakteristiken von Golfstromtrajektorien in einem quasigeostrophischen Zirkulationsmodell basierend auf Lagrange'schen Vorticitytracern**  
Miguel Zorita Calvo
- EXAMENSARBEIT Nr. 38**  
Mai 1996  
**Entwicklung eines Kopplungsverfahrens zur Reduzierung der Rechenzeit von Atmosphäre-Ozean-Modellen**  
Reinhard Voß
- EXAMENSARBEIT Nr. 39**  
Mai 1996  
**Kombination von Ensemble-Klimavorhersagen am Beispiel ENSO**  
Sven Marcus Metzger (März 1995)
- EXAMENSARBEIT Nr. 40**  
Juni 1996  
**Der Einfluß der quasi-zweijährigen Oszillation auf die allgemeine Zirkulation: Modellsimulationen mit ECHAM4**  
Marco Andrea Giorgetta
- EXAMENSARBEIT Nr. 41**  
Juli 1996  
**Sensitivität des Modellklimas eines globalen Zirkulationsmodells der Atmosphäre gegenüber Änderungen der Wolkenmikrophysik**  
Ulrike Lohmann
- EXAMENSARBEIT Nr. 42**  
July 1996  
**Simulation der Kohlenstoffdynamik der globalen Landbiosphäre mit SILVAN-Modellbeschreibung und Ergebnisse**  
Jörg Kaduk

- |  |   |
|--|---|
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 43</b><br>Oktober 1996  | <b>Zur Dynamik des interhemisphärischen CO<sub>2</sub>-Transports im Ozean</b><br>Christine Weber   |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 44</b><br>November 1996 | <b>Erstellung eines adjungierten Modells zur Assimilierung von Daten in ein Modell der globalen ozeanischen Zirkulation</b><br>Ralf Giering             |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 45</b><br>Mai 1997      | <b>Einfluß von Wolken auf den spektralen solaren Strahlungsfluß an der Meeresoberfläche</b><br>Jens Meywerk   |
| <b>EXAMENSARBEIT Nr. 46</b><br>Mai 1997      | <b>Simulationen zur Bildung und Entwicklung von stratosphärischem Aerosol unter besonderer Berücksichtigung der Pinatuboepisode</b><br>Claudia Timmreck |

