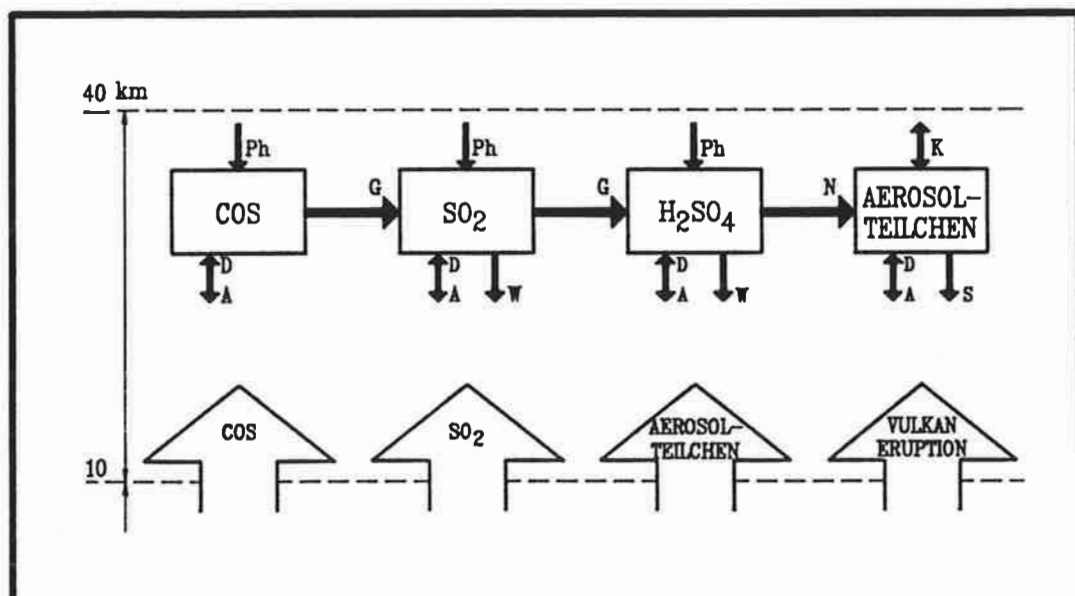




Max-Planck-Institut für Meteorologie

EXAMENSARBEIT Nr. 11



BILDUNG UND TRANSPORT VON AEROSOLTEILCHEN
IN DER STRATOSPHERE UND IHRE BEDEUTUNG
FÜR DEN STRAHLUNGSHAUSHALT

von
INGRID SCHULT

HAMBURG, FEBRUAR 1991

DOKTORARBEIT

AUTOR:

INGRID SCHULT

MAX-PLANCK-INSTITUT
FÜR METEOROLOGIE

TITELBILD: Prozesse im Transportmodell
Erläuterungen siehe Abbildung 2.2

MAX-PLANCK-INSTITUT
FÜR METEOROLOGIE
BUNDESSTRASSE 55
D-2000 HAMBURG 13
F.R. GERMANY

Tel.: (040) 4 11 73-0
Telex: 211092 mpime d
Telemail: MPI.METEOROLOGY
Telefax: (040) 4 11 73-298

**Bildung und Transport von Aerosolteilchen in der
Stratosphäre und ihre Bedeutung für den
Strahlungshaushalt**

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

vorgelegt von

Ingrid Schult

aus Berlin

Hamburg 1990

ISSN 0938–5177

Als Dissertation angenommen vom Fachbereich Geowissenschaften
der Universität Hamburg

auf Grund der Gutachten von Prof. Dr. H. Hinzpeter

und Prof. Dr. H. Graßl

Hamburg, den 8.2.91

..... Prof. Dr. M. Dunst
.....
(Sprecher des Fachbereichs Geowissenschaften)

Inhalt

Zusammenfassung	V
1 Einleitung	1
2 Modellstruktur	5
3 Das Transportmodell	9
3.1 Modellgleichungen	9
3.2 Numerik des Modells	10
3.3 Randbedingungen	12
4 Chemische Kinetik der Aerosolbildung	15
4.1 Schwefelkomponenten in der Stratosphäre	15
4.1.1 Schwefeldioxid SO_2	15
4.1.2 Carbonylsulfid COS	16
4.1.3 Carbondisulfid CS_2	16
4.1.4 Schwefelwasserstoff H_2S	17
4.2 Photochemische Prozesse	19
4.3 Homogene Gasphasenreaktionen	21
4.3.1 Oxidation von COS	21
4.3.2 Oxidation von SO_2	24
4.4 Rainout und Washout	28
5 Mikrophysikalische Prozesse	29
5.1 Gas-Teilchen-Umwandlung	29

5.2	Größenverteilung	36
5.3	Sedimentation	39
5.4	Koagulation	41
6	Das Strahlungsmodell	47
6.1	Einführung	47
6.2	Die Strahlungsübertragungsgleichung	48
6.3	Bestimmung der optischen Parameter	49
6.4	Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung	53
6.5	Bestimmung der Ozonabsorption	55
6.5.1	Globale Ozonverteilung	55
6.5.2	Ozonabsorption	57
7	Verwendete Eingabeparameter	59
7.1	Diffusionskoeffizienten	59
7.2	Windkomponenten	60
7.3	Temperatur und Feuchte	60
7.4	Konzentration der <i>OH</i> -Radikale	61
8	Ergebnisse des Transportmodells	63
8.1	Vulkanisch ungestörte Bedingungen	63
8.1.1	Globale Verteilung der Teilchenzahldichten	64
8.1.2	Globale Verteilung der Schwefelkomponenten	68
8.2	Wirkung der berücksichtigten Prozesse auf die Vertikalstruktur	78
8.3	Teilchenkonzentrationen nach Vulkaneruptionen	82
8.3.1	Der Vulkan <i>El Chichón</i>	82
8.3.2	Simulation der vulkanisch gestörten Atmosphäre	83

9 Strahlungstransportrechnungen	91
9.1 Aerosolfreie Atmosphäre	91
9.2 Erwärmungsraten der vulkanisch ungestörten Atmosphäre	96
9.3 Erwärmungsraten nach dem Ausbruch des <i>El Chichón</i>	101
10 Schlußbemerkungen	111
Danksagung	115
Symbolverzeichnis	117
Literaturverzeichnis	121
Anhang	135

Zusammenfassung

Die globale Ausbreitung natürlicher und anthropogener Aerosolteilchen dreier Größenklassen sowie gasförmiger Schwefelkomponenten in der oberen Troposphäre und Stratosphäre in Zeiten geringer und stärkerer Vulkanaktivität wird mit einem zwei-dimensionalen Transportmodell beschrieben.

In dem benutzten Gitterpunktsmodell werden neben den atmosphärischen Transportvorgängen die wesentlichen Quell- und Senkenprozesse der Substanzen berücksichtigt. Während unter vulkanisch ungestörten Bedingungen die Gas- und Teilchenflüsse am unteren Modellrand aus der Troposphäre bestimmt werden, transportieren unter gestörten Bedingungen hochreichende Vulkaneruptionen zusätzlich Aerosolteilchen und Gase direkt in die Stratosphäre. Die Photodissoziation der betrachteten Gase Schwefeldioxid, Carbonylsulfid und Schwefelsäure sowie die notwendigen chemischen Umwandlungen finden im Modell Beachtung. Aus den Reaktionsprodukten des Schwefeldioxids bilden sich Aerosolteilchen infolge der Gas-Teilchen-Umwandlung, die eine sekundäre Teilchenquelle in der freien Atmosphäre darstellt. Die Teilchenzahldichte wird durch eine höhenabhängige Sedimentation und durch Auswaschprozesse im unteren Modellgebiet reduziert; die Änderung der Teilchengröße durch Koagulation wird berücksichtigt.

Breiten- und höhenabhängige Aerosolteilchenzahldichten und Mischungsverhältnisse der Gase werden im Jahresgang ermittelt, der Einfluß vulkanischer Teilchen und Gase herausgestellt sowie die Wirkung mikrophysikalischer Prozesse erläutert. In der globalen Verteilung mittelgroßer Teilchen kann die Existenz der stratosphärischen Aerosolschicht nachgewiesen werden, die unter ungestörten Bedingungen im wesentlichen durch die Gas-Teilchen-Umwandlung aufrechterhalten wird. Am Beispiel der Vulkaneruption des *El Chichón* 1982 wird gezeigt, daß der Abbau vulkanisch eingebrachter Teilchen drei bis vier Jahre dauert, bevor wieder nahezu ungestörte Verhältnisse vorliegen.

Die durch Vulkaneruptionen erhöhte Teilchenzahldichte in der Stratosphäre bewirkt gegenüber der ungestörten Atmosphäre eine Veränderung der Strahlungsflüsse. Aus der Divergenz der Nettoflüsse, die mit Hilfe der Strahlungsübertragungsgleichung unter Berücksichtigung der δ -Eddington-Approximation berechnet werden, ergeben sich

höhen- und breitenabhängige Erwärmungsraten. Deutlich höhere Erwärmungsraten im Bereich der Aerosolschicht gegenüber vulkanisch ungestörten Bedingungen treten ein bis zwei Jahre nach der Eruption auf. Dabei wird anhand der berechneten Erwärmungsraten sichtbar, daß die Bestimmung des Aerosolspektrums und seiner optischen Eigenschaften besondere Bedeutung gewinnt.

1 Einleitung

Stratosphärische Aerosolteilchen spielen neben den Spurengasen bei Klimabetrachtungen eine bedeutende Rolle, da sie den Strahlungshaushalt der Erdatmosphäre auf verschiedene Weise beeinflussen. Die einfallende solare Strahlung wird von den Aerosolteilchen gestreut und die Absorption von terrestrischer und solarer Strahlung kann eine Erwärmung der Stratosphäre und eine Abkühlung der unteren Atmosphäre verursachen (Pollack et al., 1976; Harshvardhan et al., 1976; Graßl, 1988; Vuppuri et al., 1984; Ackermann, 1988). Da die chemischen Umwandlungsraten der atmosphärischen Spurengase temperaturabhängig sind, können Aerosolteilchen somit auch einen indirekten Einfluß auf das Klima haben (Kondratyev, 1983). Außer den ständig von der Erdoberfläche und in der bodennahen Atmosphärenschicht emittierten natürlichen und anthropogen erzeugten Aerosolteilchen und den sich aus Gasen in der freien Atmosphäre bildenden Teilchen sind die durch Vulkanausbrüche in die Atmosphäre kommenden Teilchen zu beachten.

In der vorliegenden Arbeit wird eine Untersuchung der Bildung und globalen Ausbreitung von Aerosolteilchen in der oberen Troposphäre und der Stratosphäre in Zeiten geringer und stärkerer Vulkanaktivität vorgenommen. Zur Abschätzung der Klimawirksamkeit vulkanogener Teilchen dienen die im weiteren durchgeführten Strahlungshaushaltsbetrachtungen.

Durch die Messungen von Junge et al. (1961) wurde das Auftreten von Aerosolteilchen in der Stratosphäre und die Existenz einer stratosphärischen Aerosolschicht hinsichtlich ihrer globalen Verteilung als auch ihrer physikalischen und chemischen Eigenschaften nachgewiesen. Die oberhalb der Tropopause über 5 bis 10 Kilometer ausgedehnte Schicht (Rosen et al., 1978) zeichnet sich durch ein deutliches Maximum in der Teilchenzahldichte (0.1 bis 5 cm^{-3}) aus, wobei die darin befindlichen Teilchen Radien von 0.1 bis $1.0 \mu\text{m}$ besitzen. Schwefel in der Form von Sulfat und konzentrierter Schwefelsäure ist der Hauptbestandteil dieser stratosphärischen Teilchen. Aus Messungen des Verdampfungspunktes stratosphärischer Aerosole ergab sich, daß die Zusammensetzung der Teilchen einer Lösung von 75% Schwefelsäure und 25% Wasser entspricht (Rosen, 1971).

Innerhalb dieser Schicht unterliegen die Teilchenkonzentrationen jahreszeitlichen und längerfristigen Schwankungen (Hofmann et al., 1981). Das Auftreten der höchsten Dichten konnte den stratosphärischen Teilcheninjektionen durch Vulkanausbrüche zugeordnet werden. Erst ein bis drei Jahre nach der Eruption stellt sich wieder die Konzentration der nahezu vulkanisch ungestörten Stratosphäre ein (Hofmann et al., 1983).

In Zeiten ohne größere Vulkanaktivität - hier auch als ungestörte Stratosphäre bezeichnet - ist die anthropogene Teilchenerzeugung in der Troposphäre und der Gesamtschwefelfluß der aus natürlichen und industriellen Quellen stammenden gasförmigen Komponenten (Schwefeldioxid, Carbonylsulfid und Carbondisulfid) in die Stratosphäre für die Aufrechterhaltung der Aerosolschicht von Bedeutung. Der Schwefeldioxidanteil am Gesamtfluß ist gering (u.a. Meixner, 1984); vielmehr ist Carbonylsulfid eine dominante stratosphärische Quelle des Sulfats (Crutzen, 1976; Whitten et al., 1980; Turco et al., 1982). Carbonylsulfid tritt in der Troposphäre mit nahezu höhen- und breitenunabhängiger Konzentration und einer Verweilzeit von rund einem Jahr auf. Erst in der Stratosphäre findet eine starke photochemische Dissoziation des Carbonylsulfids statt, die die Voraussetzung zur weiteren Sulfatbildung darstellt.

Die durch vulkanische Aktivitäten in die Stratosphäre emittierte Schwefelmenge ist gegenüber diesen kontinuierlichen Quellen nicht vernachlässigbar (Monin, 1986). Bei Vulkaneruptionen bilden sich aus den in die Stratosphäre eingebrachten schwefelhaltigen Gasen Teilchen, die in der Sulfatschicht ein bis drei Jahre verbleiben und besonders nach großen Vulkanausbrüchen farbintensive Dämmerungserscheinungen am Himmel hervorrufen, so z.B. nach der Eruption des *Krakatau*/Indonesien 1883 (Busch, 1911; Rampino et al., 1984). Zur Modellierung der vulkanisch gestörten Stratosphäre bietet sich aus der Reihe der Vulkaneruptionen der Vulkan *El Chichón* (1982) an, da durch ihn eine größere Anzahl Teilchen und schwefelgebundene Gase in die Stratosphäre gelangten. Umfangreiche Messungen während und nach der Eruption belegen Eruptionshöhen zwischen 20 und 30 km Höhe. Bei derartig hochreichenden Vul-

kaneruptionen kann davon ausgegangen werden, daß die Gas-Teilchen-Umwandlung in der Stratosphäre auf Grund der in den Vulkanwolken rasch ablaufenden Gasphasenreaktionen sicher nur eine untergeordnete Rolle für die Teilchenzahldichten spielt (Hamill et al., 1977, 1982).

Vulkanausbrüche zählen wegen der optischen Wirkung der Aerosolteilchen zu den externen Klimaeinflüssen (Flohn, 1989); markante Ereignisse sind die Ausbrüche des *Krakatau*/Indonesien (1883), *Bezymiannya*/Kamschatka (1956) und *Mt. Agung*/Indonesien (1963). Nach den Eruptionen konnten signifikante globale Temperaturänderungen in der mittleren Stratosphäre, insbesondere in tropischen Breiten nachgewiesen werden (Mitchell, 1982; Labitzke et al., 1983 und 1984; Reiter et al., 1986). In der Zeitreihe der nordhemisphärischen Jahresmittelwerte der bodennahen Lufttemperatur ist allerdings die Wirksamkeit solcher Einzeleinflüsse weitaus geringer als der Einfluß längerer vulkanisch aktiver und inaktiver Zeiten (Schönwiese, 1987).

In den zahlreichen Hypothesen zur Entstehung des Ozonloches wird auch der Einfluß von Vulkanausbrüchen nicht ausgeschlossen (Fabian, 1988). Durch Vulkaneruptionen eingebrachte Gase können chemische Reaktionen auslösen, die zum Ozonabbau führen; z.B. wurde nach der Eruption des *El Chichón* eine erhöhte *HCl*-Konzentration nachgewiesen, durch die ein Ozonabbau begünstigt wird (Hofmann, 1987). Außerdem wird umgekehrt durch eine veränderte Ozonschichtdicke die Temperatur in der Atmosphäre verändert, die die chemischen Umwandlungen und reaktionskinetischen Schritte von Spurengasen beeinflusst (Vupputuri et al., 1984). Auch der oft eminente Eintrag von Wasserdampf mit der Eruption, aus dem dann direkt Hydroxyl-Radikale gebildet werden, führt zu veränderten Reaktionsbedingungen (Burnett et al., 1984).

Um den globalen Klimaeinfluß von Aerosolteilchen mit Modellen zu verdeutlichen, ist die Kenntnis dreidimensionaler Teilchenverteilungen notwendig. Da die Berechnungen globaler Verteilungen der schwefelhaltigen Gase und Teilchen mit Hilfe dreidimensionaler Modelle sehr aufwendig sind, beruhen die bisher durchgeführten Simulationen der stratosphärischen Aerosolschicht auf eindimensionalen Modellen, die

die Quellen, Senken und atmosphärische Transportvorgänge der am Schwefelhaushalt beteiligten Komponenten beinhalten (Turco et al., 1979; Toon et al., 1979; Turco, 1986; Whitten et al., 1980). Rehkopf (1984) entwickelte ein zweidimensionales (geographische Breite und Höhe) Transportmodell für die globale Ausbreitung troposphärischer Aerosolteilchen und Schwefelkomponenten. Die vorliegende Untersuchung stellt eine direkte Fortsetzung dieser Arbeit dar, wobei das Transportmodell auf die Stratosphäre erweitert und durch die für diese Region relevanten Gasreaktionen ergänzt wurde. Zur Unterscheidung wird deshalb im folgenden die Bezeichnung *stratosphärisches* Modell benutzt, obwohl das Modellgitter mit einer vertikalen Ausdehnung von 10 bis 40 km Höhe auch noch den Bereich der oberen Troposphäre und das Tropopausenniveau abdeckt.

Nach einer Übersicht der Modellstruktur im zweiten Kapitel wird das zweidimensionale Transportmodell (Kapitel 3) mit den chemischen, photochemischen und mikrophysikalischen Prozessen (Kapitel 4 und 5) erläutert. Die Quellen und Senken der Strahlungsenergie werden in der Strahlungsübertragungsgleichung bilanziert. Aerosolteilchen streuen und absorbieren die einfallende solare Strahlung und emittieren die langwellige Strahlung. Neben der Konzentration der Aerosolteilchen und ihrem komplexen Brechungsindex bestimmt die angenommene Größenverteilung der Teilchen ihre Wirkung auf das Strahlungsfeld (Kapitel 6). Im Kapitel 7 schließt sich die Beschreibung der verwendeten Modellparameter an, die im Anhang für die vier Jahreszeiten graphisch dargestellt sind. Die Diskussion der Ergebnisse unter vulkanisch ungestörten und gestörten Bedingungen sowie der Auswirkungen auf den Strahlungshaushalt erfolgt in Kapitel 8 und 9.

2 Modellstruktur

Zur Modellierung der Bildung und des Transportes stratosphärischer Aerosolteilchen und deren Auswirkungen auf den Strahlungshaushalt sind unterschiedlich geartete Rechenschritte notwendig, die im folgenden Abschnitt zusammenfassend dargelegt werden. Die Übersicht in Abb. 2.1 zeigt die Kopplung der Modellteile und die Hauptergebnisse.

Ein einheitliches Transportmodell Troposphäre-Stratosphäre würde wegen der unterschiedlichen Zeitkonstanten der dominanten Prozesse in den einzelnen Schichten der Atmosphäre zu sehr hohen Rechenzeiten führen. Da die zonalen advektiven und diffusiven Transporte schneller als die meridionalen erfolgen, scheint eine Reduktion auf zunächst zwei Dimensionen (Breite und Höhe) möglich, um die unterschiedlichen Mechanismen der Bildung, des Transportes und des Abbaus der Teilchen zu überprüfen.

Mit dem zweidimensionalen, zonal gemittelten Transportmodell werden die globalen Aerosolteilchenverteilungen in drei Größenklassen und die Mischungsverhältnisse dreier verschiedener gasförmiger Schwefelverbindungen in Zeiten geringer und größerer Vulkanaktivität in der Stratosphäre zu den einzelnen Jahreszeiten berechnet. Bei den gasförmigen Komponenten handelt es sich um Carbonylsulfid (CO_2), Schwefeldioxid (SO_2) und Schwefelsäure (H_2SO_4), die in der Stratosphäre für die Bildung von Sulfatteilchen wesentlich sind. Die verwendeten jahreszeitlich gemittelten Modellparameter des dynamischen Zustandes der Atmosphäre entstammen langjährigen Beobachtungen und Modelluntersuchungen. Die Berechnung der jahreszeitabhängigen SO_2 - und Teilchenflüsse am unteren Rand des Modellgitters erfolgt mit den Ergebnissen des troposphärischen Modells unter ungestörten Bedingungen; für die Bestimmung des CO_2 -Flusses werden Meßwerte des CO_2 -Mischungsverhältnisses aus der Literatur entnommen. Im Fall der vulkanisch gestörten Atmosphäre wird eine Teilchenquelle in der Stratosphäre als Folge von hochreichenden Vulkaneruptionen berücksichtigt, deren Größe nach den Messungen im Anschluß an die Eruption des *El Chichón* abgeschätzt wird.

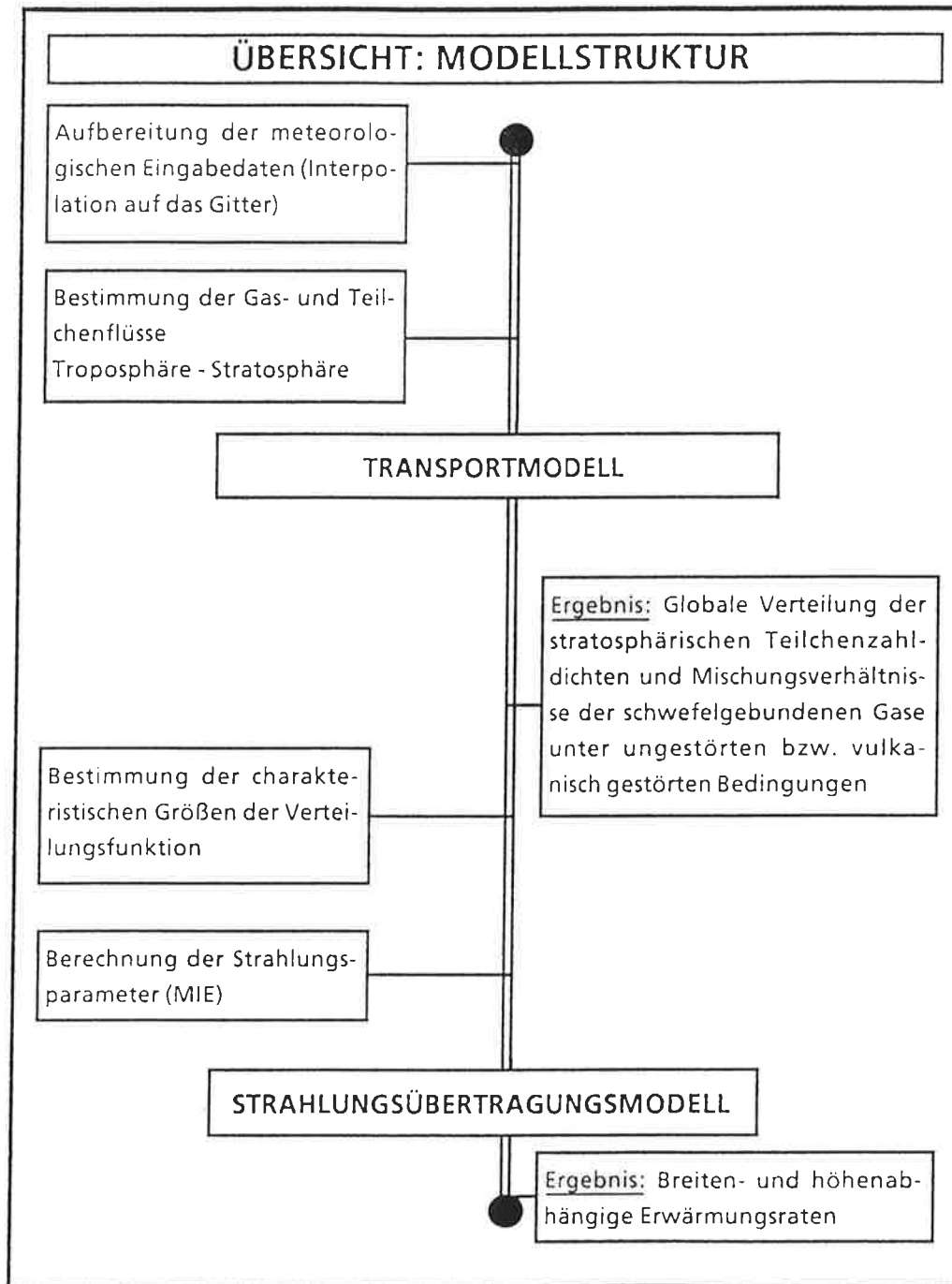


Abbildung 2.1: Schema der Kopplung der Modellteile mit den wesentlichen Eingabedaten und Ergebnisse.

Die in dem Transportmodell berücksichtigten chemischen und mikrophysikalischen Prozesse, auf die in der vorliegenden Arbeit im weiteren näher eingegangen wird, sind in der Abb. 2.2 für die verschiedenen Substanzen schematisch dargestellt.

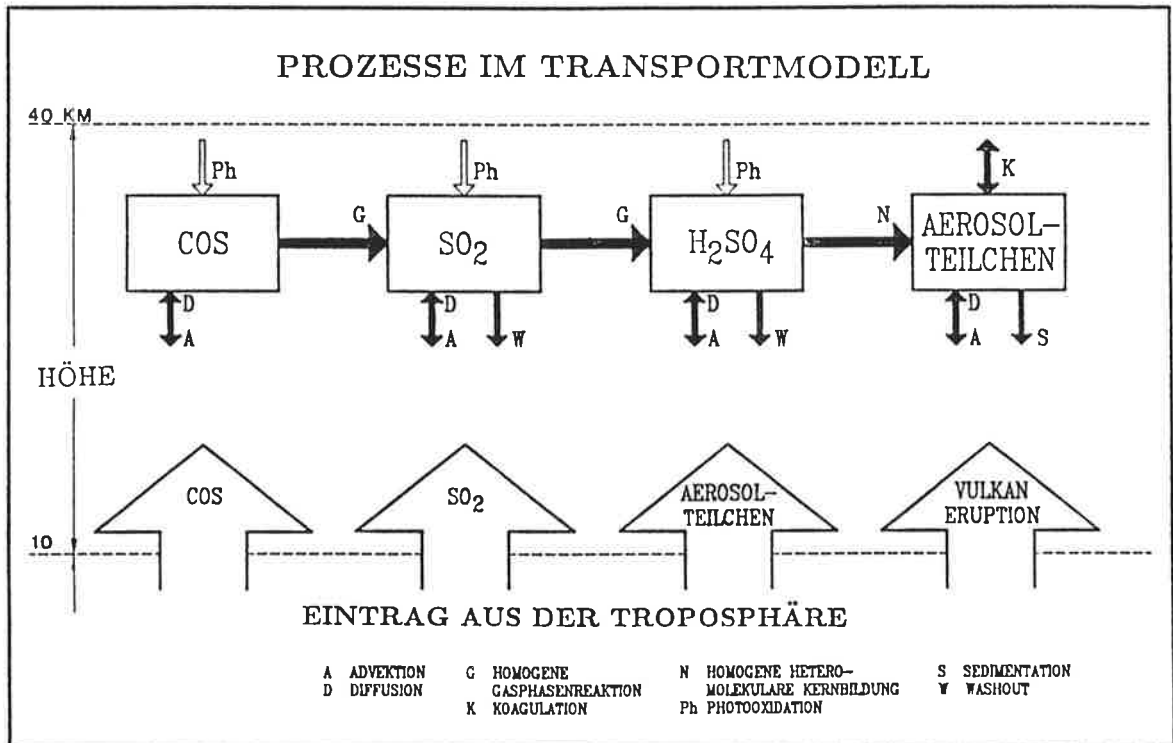


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der im Transportmodell berücksichtigten Gas- und Teilchenflüsse sowie der ablaufenden chemischen und mikrophysikalischen Prozesse in dem stratosphärischen Modell unter ungestörten und vulkanisch beeinflussten Bedingungen.

In das Transportmodell gehen die Flüsse natürlicher und anthropogen erzeugter Teilchen aus der Troposphäre sowie im Fall der gestörten Stratosphäre die vulkanogenen Teilchen als Quelle ein. Den globalen Transport der gasförmigen Verbindungen und Aerosolteilchen übernehmen das mittlere Strömungsfeld und die nicht explizit aufgelösten subskaligen Transportprozesse. Durch die Absorption ultravioletter Strahlung werden die betrachteten gasförmigen Schwefelverbindungen in der oberen

Stratosphäre photochemisch abgebaut. Neben dem Massenfluß aus der Troposphäre bilden die Gasphasenreaktionen des CO_2 eine zusätzliche stratosphärische Quelle von SO_2 . Obwohl die einzelnen Reaktionsschritte der homogenen Gasphasenreaktionen von SO_2 noch nicht vollständig verstanden werden, gilt es als sicher, daß die SO_2 -Oxidation unter der Beteiligung von OH -Radikalen zu H_2SO_4 der wesentliche Abbauprozess von SO_2 ist (z.B. Finlayson-Pitts et al., 1986). Die sich anschließende Gas-Teilchen-Umwandlung der Reaktionsprodukte des SO_2 führt zur Bildung neuer Aerosolteilchen und damit zu einer sekundären Teilchenquelle in der Stratosphäre. Da die Wolken oder Niederschlags-elemente in der Troposphäre für SO_2 und H_2SO_4 eine effektive Senke (washout) sind, wird dieser Prozess im Modell bis zum Tropopausenniveau über eine einfache Parameterisierung berücksichtigt. Das Auswaschen von CO_2 wird auf Grund seiner geringen Wasserlöslichkeit (Turco et al., 1980) vernachlässigt. Aus der Stratosphäre werden die Aerosolteilchen hauptsächlich durch Sedimentation entfernt, wobei die Sedimentationsgeschwindigkeit stark höhenabhängig ist. Der hauptverantwortliche Prozess des Größenwachstums der Aerosolteilchen ist die Koagulation. In dem Transportmodell wird diese Transformation der Teilchen durch eine von der zeitlichen Entwicklung der Größenverteilung abhängige Koagulationsfunktion berücksichtigt.

In dem zweiten Modellteil (Abb. 2.1) wird die Wirkung der Aerosolteilchen auf den Strahlungshaushalt untersucht. Die Bilanz der Absorptions- und Emissionsprozesse wird durch die Strahlungsübertragungsgleichung beschrieben, die unter der Annahme einer planparallelen Atmosphäre mit der Delta-Eddington-Näherung gelöst wird. In dem Strahlungsmodell wird die Wasserdampf-, Ozon- und CO_2 -Absorption sowie Streuung und Absorption durch Aerosolteilchen berücksichtigt. Die Bestimmung der notwendigen optischen Parameter der Aerosolteilchen erfolgt nach der MIE-Theorie mit einer Größenverteilung, die vom stratosphärischen Zustand zeitabhängig vorgegeben wird. Aus der Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung im kurz- und langwelligen Spektralbereich können für die verschiedenen stratosphärischen Teilchenverteilungen höhen- und breitenabhängige Erwärmungsraten ermittelt werden.

3 Das Transportmodell

3.1 Modellgleichungen

In einer meridionalen Ebene mit den Koordinaten geographische Breite ϕ und Höhe z kann für beliebige Beimengungen (Index i) die Bilanzgleichung wie folgt angegeben werden (z.B. Rodhe, 1980):

$$\begin{aligned} \rho \left(\frac{\partial M_i}{\partial t} \right) + \rho \left(\frac{1}{a \cos \phi} \frac{\partial}{\partial \phi} (M_i v_\phi \cos \phi) + \frac{\partial}{\partial z} (M_i v_z) \right) = \\ \frac{1}{a \cos \phi} \frac{\partial}{\partial \phi} \left(\frac{\rho K_{\phi\phi} \cos \phi}{a} \frac{\partial}{\partial \phi} M_i \right) + \frac{1}{a \cos \phi} \frac{\partial}{\partial \phi} \left(\rho K_{\phi z} \cos \phi \frac{\partial}{\partial z} M_i \right) + \\ \frac{1}{a} \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho K_{z\phi} \frac{\partial}{\partial \phi} M_i \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho K_{zz} \frac{\partial}{\partial z} M_i \right) + Q_i + S_i \quad (3.1) \end{aligned}$$

mit

$M_i = n_i / \rho$	Mischungsverhältnis der Beimengung
n_i	Zonal gemittelte Dichte der Beimengung
ρ	Luftdichte
v_ϕ, v_z	Mittlere Geschwindigkeitskomponenten in meridionaler bzw. vertikaler Richtung
$\left. \begin{matrix} K_{\phi\phi} & K_{\phi z} \\ K_{z\phi} & K_{zz} \end{matrix} \right\}$	Turbulente Diffusionskoeffizienten
a	Erdradius
Q_i	Quellen für die Beimengung
S_i	Senken für die Beimengung

In dieser Arbeit gelten als Beimengung Sulfataerosolteilchen, Schwefeldioxid, Carbonylsulfid und Schwefelsäure. Ohne die chemische Zusammensetzung der Aerosolteilchen zu berücksichtigen, werden die Teilchen in folgende drei Größenklassen eingeteilt:

Klasse 1: Teilchen mit dem Radius $r < 0.1 \mu\text{m}$

Klasse 2: Teilchen mit $0.1 \leq r \leq 1.0 \mu\text{m}$

Klasse 3: Teilchen mit $r > 1.0 \mu\text{m}$.

Diese Einteilung erfolgt in Übereinstimmung mit der des *troposphärischen* Modells (Rehkopf, 1984) und erleichtert die Behandlung radienabhängiger Quell- und Senkenprozesse.

Die zeitliche Veränderung des Mischungsverhältnisses der Beimengung wird durch den advektiven Transport auf Grund der mittleren meridionalen Zirkulation (zweiter und dritter Term der Gleichung (3.1)), durch die turbulente Diffusion (Term 1 bis 4 der rechten Seite der Gleichung (3.1)) und Quell- und Senkenprozesse (Term 5 und 6 der rechten Seite der Gleichung (3.1)) bedingt. Da eine Korrelation zwischen meridionalen und vertikalem Transport beim Austauschprozeß besteht (Reed et al., 1965), werden auch die nichtdiagonalen Terme des Diffusionstensors berücksichtigt. Die Abhängigkeit der Luftdichte von der geographischen Breite kann für die Modellrechnung vernachlässigt werden (Rehkopf, 1984), selbstverständlich jedoch nicht ihre starke Höhenabhängigkeit. Als Quelle für die Stratosphäre ist unter ungestörten Bedingungen der Gas- und Teilchentransport aus der Troposphäre wirksam und unter vulkanisch gestörten Bedingungen zusätzlich der Teilcheneintrag durch Vulkaneruptionen. Eine nähere Beschreibung der Quell- und Senkenprozesse erfolgt in Kapitel 3.3, 4 und 5.

3.2 Numerik des Modells

Um die Bildung und Ausbreitung von Aerosolteilchen in der oberen Troposphäre und Stratosphäre zu untersuchen, erfolgt die numerische Lösung der Bilanzgleichung (3.1) für einen Höhenbereich von 10 bis 40 km. Das verwendete Gitternetz erstreckt sich über alle geographischen Breiten vom Südpol (-90°) bis zum Nordpol (90°) mit einer meridionalen Auflösung von 10° . Für alle vertikalen Schichten wird der Gitterabstand auf 2 km festgelegt.

Die Polarkoordinaten ϕ und z werden mit der horizontalen Koordinate $y = a \sin\phi$ in ein einfaches kartesisches Koordinatensystem überführt (Miller et al., 1981). Weiterhin gilt vereinfachend:

$$\begin{aligned} v_z &= w \\ v_\phi &= v \\ K_{\phi\phi} \cos^2\phi &= K_{yy} \\ K_{\phi z} \cos\phi &= K_{yz} \\ K_{z\phi} \cos\phi &= K_{zy} \end{aligned}$$

v ist die mittlere Advektionsgeschwindigkeit in meridionaler Richtung und w in vertikaler Richtung, K_{yy} , K_{yz} , K_{zy} und K_{zz} sind die Komponenten des Diffusionstensors in dem nun betrachteten Koordinatensystem. Damit wird die Gleichung (3.1) in (3.2) überführt.

$$\begin{aligned} \rho \left(\frac{\partial M_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial y} (M_i v) + \frac{\partial}{\partial z} (M_i w) \right) = \\ \frac{\partial}{\partial y} \left(\rho K_{yy} \frac{\partial M_i}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\rho K_{yz} \frac{\partial M_i}{\partial z} \right) + \\ \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho K_{zy} \frac{\partial M_i}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho K_{zz} \frac{\partial M_i}{\partial z} \right) + Q_i + S_i \end{aligned} \quad (3.2)$$

Die numerische Integration erfolgt mit einem impliziten Differenzenverfahren. Das numerische Lösungsverfahren wird aus der Arbeit von Rehkopf (1984) uneingeschränkt übernommen. Für die Diffusion wird ein gemischtes 'forward-backward'-Verfahren (Richtmeyer und Morton, 1967) und für die Advektion ein 'upstream'-Verfahren (Molenkamp, 1968) benutzt. Die iterative Lösung der diskretisierten Modellgleichungen erfolgt nach der Methode von Gauss und Seidel (z.B. Marsal, 1976) mit einem Zeitschritt von einer Stunde. Da Rehkopf (1984) sowohl die Massenerhaltung im Modell abgeschätzt als auch den Modelltransport für Wasserdampf getestet hat, wird auf weitere ausführliche Tests zur Überprüfung der numerischen Methode verzichtet.

3.3 Randbedingungen

Die meridionale und vertikale Komponente des Konzentrationsflusses F_y und F_z läßt sich nach Gidel et al. (1983) annähernd angeben

$$\begin{aligned} F_y &= v_y n_i - K_{yy} \rho \frac{\partial M_i}{\partial y} - K_{yz} \rho \frac{\partial M_i}{\partial z} \\ F_z &= v_z n_i - K_{zz} \rho \frac{\partial M_i}{\partial z} - K_{zy} \rho \frac{\partial M_i}{\partial y} \end{aligned} \quad (3.3)$$

Damit der Massenfluß an den Polen (seitliche Ränder des Gitters) verschwindet, werden die Größen v_y , K_{yy} und K_{yz} dort Null gesetzt. Für die numerische Integration wird das Mischungsverhältnis auch am Rand des Gitters bei 90° S und 90° N benötigt, dessen Berechnung das Differenzenverfahren nicht ermöglicht. Deshalb werden die benötigten Randwerte aus logarithmischen Gradienten über eine Breite von 80° S und 80° N hinaus gebildet.

An der oberen Modellgrenze wird ein Gas- und Teilchenfluß in die obere Stratosphäre zugelassen. Die Bedeutung des Eintrags extraterrestrischer Teilchen am oberen Gitterrand ist für die Stratosphäre nicht eindeutig klar (Turco et al., 1981); dieser wird deshalb nicht berücksichtigt.

Am unteren Rand des Gitters (10 km Höhe) werden die vertikalen Flüsse F_z entsprechend Gleichung (3.3) aus der Troposphäre berechnet. Die dazu notwendigen Teilchenzahldichten und SO_2 -Mischungsverhältnisse werden aus den Ergebnissen der stationären Rechnungen mit dem troposphärischen Modell für Sommer und Winter in einer Höhe von 9 und 11 km entnommen (Rehkopf, 1984). Grundlage der troposphärischen Rechnungen bildeten die Quellstärken natürlicher und anthropogener Gase und Teilchen, wie sie im wesentlichen im Umweltbrief 20 (Hrsg. Bundesminister, 1980) abgeschätzt wurden. Für COS wird ein troposphärischer Wert von 0.4 ppbv (das heißt billionste Volumenanteile; parts per billion) ohne meridionale und vertikale Unterschiede angenommen (siehe dazu auch Kapitel 4.1). Die so berechneten Flüsse am unteren Rand des *stratosphärischen* Modellgitters sind in der Abb. 3.3

(Seite 14) für den Januar und Juli dargestellt.

Global betragen die anthropogen erzeugten Aerosolteilchen ungefähr 10% der natürlich in die Atmosphäre eingebrachten Teilchen (Monin, 1986). Die höheren Teilchenflüsse über der Nordhemisphäre sind überwiegend anthropogen bedingt; 90% der anthropogenen Teilchen werden im Bereich 30° bis 60° N emittiert. Für den Unterschied zwischen den Teilchenflüssen im Januar und Juli über der Nordhemisphäre ist die effektive Gas-Teilchen-Umwandlung in der Troposphäre des Nordwinters ausschlaggebend. In Äquatornähe werden auch Teilchen größerer Radien durch hochreichende Cumulonimben in höhere atmosphärische Schichten transportiert. Der besonders für mittelgroße Teilchen intensive Senkenprozeß des 'rainout' in der Troposphäre (Rehkopf, 1984) zwischen 25° S und 35° S im Januar bewirkt die größere Abnahme der Flüsse der Teilchenklasse 2 gegenüber der Klasse 1 in dieser Zone. Da der Fluß von SO_2 aus dem Ergebnis des troposphärischen Modells bestimmt wurde, der COS -Fluß im Unterschied dazu jedoch aus einer einheitlichen troposphärischen Verteilung errechnet wird, ergibt sich die auffällige Abweichung in den gasförmigen Flüssen im Bereich 35° S bis 45° S im Januar bzw. um 30° N im Juli.

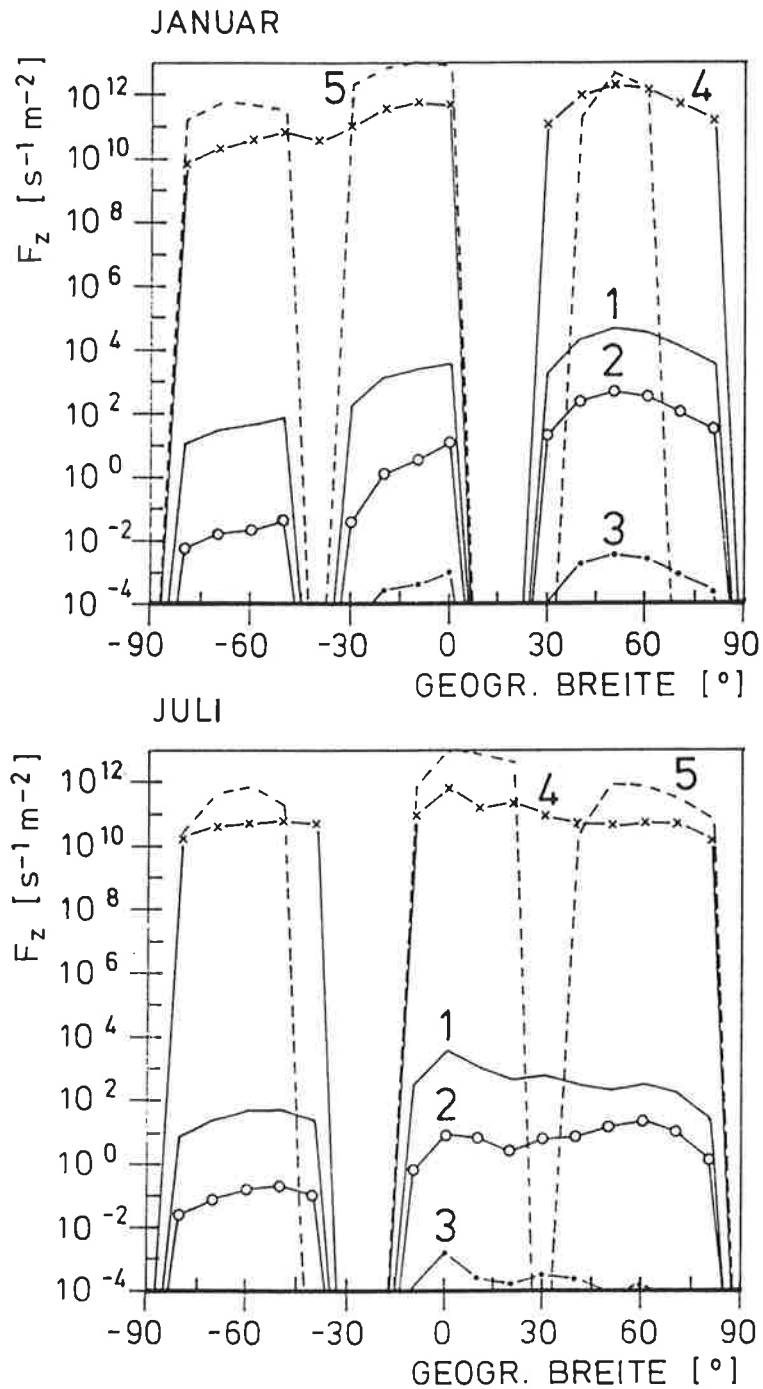


Abbildung 3.3: Zonale Mittel der Beimengungsflüsse F_z [$s^{-1}m^{-2}$] am unteren Rand des *stratosphärischen* Modells (10 km Höhe) unter vulkanisch ungestörten Bedingungen für Januar (oben) und Juli (unten) in Abhängigkeit von der geographischen Breite.

(1) Teilchenklasse 1, (2) Teilchenklasse 2, (3) Teilchenklasse 3, (4) SO_2 und (5) COS .

4 Chemische Kinetik der Aerosolbildung

In diesem Kapitel werden die chemischen Reaktionen der schwefelgebundenen Spurengase beschrieben und ihr Beitrag zur Bildung stratosphärischer Aerosolteilchen abgeschätzt. Die gasförmigen Schwefelkomponenten gelangen durch vertikale Transporte von der Troposphäre in die Stratosphäre oder über Vulkaneruptionen direkt in die Stratosphäre. Chemische und photochemische Prozesse führen zur Bildung von Schwefelsäure. Durch die Gas-Teilchen-Umwandlung entstehen Kerne, die durch weitere mikrophysikalische Prozesse zu Aerosolteilchen anwachsen.

In der Tabelle 4.1 (Seite 18) sind die im Transportmodell berücksichtigten Reaktionsgleichungen mit den dazugehörigen kinetischen Daten zusammengefaßt.

4.1 Schwefelkomponenten in der Stratosphäre

4.1.1 Schwefeldioxid SO_2

Etwa die Hälfte des globalen SO_2 -Kreislaufs (Junge, 1987) ist anthropogen durch den Verbrauch fossiler Brennstoffe bedingt; der nordhemisphärische Anteil beträgt 93% (Ockelmann et al., 1989). Durch Vulkaneruptionen wird SO_2 natürlichen Ursprungs direkt in die Atmosphäre - bei großen Ausbrüchen bis in die Stratosphäre - gebracht (Cronin, 1971). Eine weitere natürliche, aber indirekte Quelle bildet die Oxidation biogen erzeugter Schwefelgase.

Die SO_2 -Verteilungen in der unteren Troposphäre sind auf Grund zahlreicher Messungen relativ gut bekannt (Georgii, 1989). Die Konzentration von SO_2 in der unteren Troposphäre nimmt mit der Höhe infolge effektiver Auswaschprozesse in Wolken und Niederschlag und homogener Reaktionsmechanismen durch OH -Radikale stark ab. Je nach den chemischen und klimatischen Bedingungen betragen die Aufenthaltszeiten in der Troposphäre bis zu einer Woche.

Kontinuierliche Untersuchungen der SO_2 -Verteilung in der Stratosphäre liegen bis-

her nicht vor. Einzelne Messungen im Tropopausenniveau von Jaeschke (1976) und Meixner (1982) ergaben SO_2 -Konzentrationen von 10 bis 50 pptv.

4.1.2 Carbonylsulfid COS

Die stratosphärische Sulfatschicht kann in Zeiten geringer Vulkanaktivität nur durch Carbonylsulfid aufrechterhalten werden (Crutzen, 1976). Messungen des troposphärischen COS von Sandalls et al. (1977) liefern Volumenmischungsverhältnisse von 2 bis $5 \cdot 10^{-10}$. Da das Gas in der Troposphäre relativ inert mit Lebenszeiten von einem Jahr ist, kann es durch die Tropopause in die Stratosphäre diffundieren. Globale Konzentrationsunterschiede sind bisher nicht bekannt.

Als mögliche Quellen für COS gelten biologische Prozesse, Vulkaneruptionen und die industrielle Produktion. Insgesamt werden global 1 bis 6 Tg (Teragramm) pro Jahr emittiert, wobei der Anteil anthropogen erzeugten COS etwa 50% beträgt (Turco et al., 1980). Zusätzlich entsteht COS in der unteren Stratosphäre durch die Oxidation von Carbondisulfid mit dem Hydroxyl-Radikal. Dagegen scheint die Photodissoziation des Carbondisulfids für die COS -Entstehung vernachlässigbar (Sze et al., 1979). Die Hauptsenke von COS liegt in der Stratosphäre; der Abbau erfolgt dort durch die Photodissoziation mit nachfolgender Oxidation zu SO_2 . Durch Auswaschprozesse wird das COS -Mischungsverhältnis bedingt durch die geringe COS -Wasserlöslichkeit kaum beeinflusst.

4.1.3 Carbondisulfid CS_2

Carbondsulfid wird aus biogenen, vulkanischen und anthropogenen Quellen emittiert. Die vertikale Konzentration des Carbondsulfids nimmt von 30 bis 50 pptv in der freien Troposphäre auf Werte um 1 pptv oberhalb der Tropopause ab (Inn et al., 1981). Durch die Oxidation des CS_2 kann COS gebildet werden (Sze et al., 1979); jedoch ist dieser Beitrag zum stratosphärischen COS auf Grund der niedrigen CS_2 -Konzentration nicht signifikant (Turco et al., 1982). Eine stratosphärische Quelle wird deshalb für COS im Transportmodell vernachlässigt.

4.1.4 Schwefelwasserstoff H_2S

Als dominierende Komponente der biogen erzeugten Schwefelverbindungen gilt Schwefelwasserstoff (Georgii, 1989). Schwefelwasserstoff ist unter troposphärischen Bedingungen mit Lebenszeiten von maximal einem Tag (McKeen et al., 1984) sehr reaktionsfähig und die Oxidation des H_2S führt zur Bildung von SO_2 . In der Stratosphäre sind die Reaktionen von H_2S zur Sulfatbildung vernachlässigbar, da die fast vollständige Umwandlung in SO_2 bereits in der Troposphäre erfolgt (Whitten et al., 1980).

**Reaktionsgleichungen und -raten der im Transportmodell berücksichtigten
gasförmigen Schwefelkomponenten**

Nr.	Reaktion	Reaktionsraten Photodissoziationsraten Washoutraten	k [cm ³ / s / molec] phot [1/s] wash [1/s]	Referenz
(1)	$\text{COS} + h\nu \rightarrow \text{S} + \text{CO}$	phot = $f(z, \phi)$; $z = 20$ km: phot = $1.4 \cdot 10^{-9}$	Turco (1979)	
(2)	$\text{COS} + \text{OH} \rightarrow \text{SH} + \text{CO}_2$	$k = 8.4 \cdot 10^{-12} \exp(-2050/T)$	Ravishankara (1980) Turco (1982)	
(3)	$\text{COS} + \text{O}(3P) \rightarrow \text{SO} + \text{CO} \rightarrow \dots \rightarrow \text{SO}_2$	$k = 3.0 \cdot 10^{-11} \exp(-2270/T)$	Turco (1979) Whitten (1982)	
(4)	$\text{COS} + \text{O}(1P) \rightarrow \text{SO} + \text{CO} \rightarrow \dots \rightarrow \text{SO}_2$	$k = 2.0 \cdot 10^{-10}$	Crutzen (1976)	
(5)	$\text{SO}_2 + h\nu \rightarrow \text{SO} + \text{O}$	phot = $f(z, \phi)$; $z = 20$ km: phot = $2.3 \cdot 10^{-10}$	Turco (1979)	
(6)	$\text{SO}_2 + \text{OH} + [\text{M}] \rightarrow \text{H}_2\text{SO}_4 + [\text{M}]$	$k = \frac{2 \cdot 10^{-12} \cdot A}{1 + A} \cdot 0.6^{(1 + (0.6A)^2)^{-1}}$ $A = 1.5 \cdot 10^{-19} \left(\frac{300}{T} \right)^{2.9}$ [N] [N] Gesamtdichte [molec/cm ³]	NASA (1981) Meixner (1982)	
(7)	$\text{H}_2\text{SO}_4 + h\nu \rightarrow \text{SO}_2 + \text{Produkte}$	phot = $f(z, \phi)$; $z = 20$ km: phot = $1.3 \cdot 10^{-10}$	Turco (1979)	
(8)	$\text{SO}_2 \rightarrow \text{Washout}$	wash = $3.8 \cdot 10^{-6} \left(\frac{h_T - z}{h_T} \right)$ h_T Tropopausehöhe; $h_T = f(\phi)$	Turco (1979)	
(9)	$\text{H}_2\text{SO}_4 \rightarrow \text{Washout}$	wash = $2.3 \cdot 10^{-5} \left(\frac{h_T - z}{h_T} \right)$ h_T Tropopausehöhe; $h_T = f(\phi)$	Turco (1979)	

Tabelle 4.1: Reaktionsgleichungen und -raten der im Transportmodell berücksichtigten gasförmigen Schwefelkomponenten.

4.2 Photochemische Prozesse

Die schwefelgebundenen Gase können in der Stratosphäre durch die Absorption ultravioletter Strahlung photochemisch dissoziiert werden



Durch die Photodissoziation der gasförmigen Schwefelkomponenten in der Stratosphäre werden in situ Quellen von SO_2 gebildet. Der in obigen Gleichungen entstehende Schwefel reagiert sofort mit molekularem Sauerstoff zur Bildung von Schwefelmonoxid SO und weitere Oxidation führt dann zu SO_2 .

Die Umwandlungsraten sind direkt proportional der Quantenausbeute, den Strahlungsintensitäten und Absorptionsquerschnitten (z.B. Beilke, 1978). Alle drei Parameter sind wellenlängenabhängig. Globale mittlere Photodissoziationsraten werden zur Quantifizierung der obigen drei Reaktionen von Turco et al. (1979) höhenabhängig vorgegeben. Dabei wird die Dissoziationsrate für H_2SO_4 gleich der HCl -Rate angenommen (Turco et al., 1979), da die Rate für H_2SO_4 nahezu unbestimmt ist. Um die meridionale und jahreszeitliche Abhängigkeit der Raten zu berücksichtigen, werden die mittleren globalen Raten mit einem Faktor bestehend aus dem Verhältnis der entsprechenden breiten- und zeitabhängigen Strahlungsflußdichten zur mittleren globalen Strahlungsflußdichte gewichtet.

Für die im Transportmodell berücksichtigte photochemische Reaktion des Stoffes $[X]$ (SO_2 , COS bzw. H_2SO_4) gilt

$$-\frac{d[X]}{dt} = phot_X(\phi, z, t)[X] \quad . \quad (4.4)$$

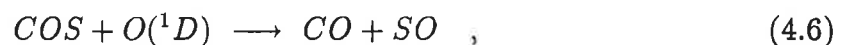
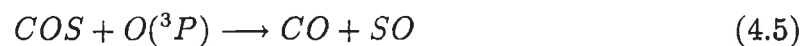
Die Photodissoziationsrate $phot_x$ ist in Tabelle 4.1 (Seite 18) für eine charakteristische Höhe aufgeführt.

Mit den angegebenen Dissoziationsraten ergeben sich mittlere Abbauraten in z.B. 35 km Höhe für SO_2 von 2%/h, für COS von 0.5%/h und von 0.05%/h für H_2SO_4 . Unterhalb von 20 km Höhe ist die Photodissoziation vernachlässigbar.

4.3 Homogene Gasphasenreaktionen

4.3.1 Oxidation von COS

Die stratosphärische Quelle von SO_2 ist im wesentlichen durch den chemischen Abbau des Carbonylsulfids gegeben. Neben der für die Stratosphäre bedeutenden photochemischen Dissoziation des COS tragen zusätzlich die folgenden Reaktionsgleichungen mit atomarem Sauerstoff zum COS -Haushalt und zur SO_2 -Entstehung bei (Crutzen, 1976)



wobei $O(^3P)$ den atomaren Sauerstoff im Grundzustand (Triplet-P oder 3P) und $O(^1D)$ Sauerstoff-Atome im angeregten Zustand (Singulett-D oder 1D) bezeichnet.

Das gebildete Schwefelmonoxid SO oxidiert rasch weiter zu Schwefeldioxid (McKeen et al., 1984; Turco et al., 1979)



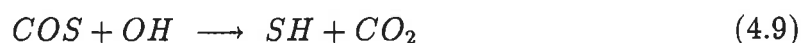
Die zeitliche Änderung der COS -Konzentration bedingt durch die reaktiven Gase in den Reaktionsgleichungen (4.5) und (4.6) wird mit einer Reaktionsrate beschrieben (z.B. Finlayson-Pitts et al., 1986)

$$Rate = -\frac{d[COS]}{dt} = k [COS][X] \quad (4.8)$$

Für $[X]$ wird entsprechend der betrachteten Reaktion $O(^3P)$ oder $O(^1D)$ eingesetzt.

Da die Rate dem Produkt der Konzentrationen zweier beteiligter Substanzen proportional ist, sind die obigen Reaktionen von 2. Ordnung. Der Proportionalitätsfaktor in dem rechten Ausdruck der Gleichung (4.8) ist die Reaktionskonstante k , die entsprechend diesem Reaktionstyps die Dimension $[\text{cm}^3\text{molec}^{-1}\text{s}^{-1}]$ hat. In Gleichung (4.5) wird eine Reaktionskonstante $k = 3 \cdot 10^{-11} \exp(-2270/T)$ (Turco et al., 1979) und in Gleichung (4.6) $k = 2 \cdot 10^{-10}$ (Crutzen, 1976) gewählt. Für die benötigten Vertikalprofile des atomaren Sauerstoffs im Grundzustand $O(^3P)$ bzw. angeregten Zustand $O(^1D)$ werden die Daten von Whitten et al. (1973) bzw. Crutzen et al. (1983) zugrundegelegt.

Die Signifikanz der Oxidation von COS mit dem Hydroxyl-Radikal für die COS -Konzentration in der Stratosphäre



wird in Abhängigkeit von zu wählender Reaktionskonstante in der Literatur unterschiedlich bewertet. Wird die bei einer Temperatur von 298 K bestimmte Reaktionskonstante nach Kurylo (1978) benutzt, so resultieren für die Stratosphäre maximale Abbauraten von 0.6%/h. Dagegen ergeben sich bei Anwendung der Reaktionskonstanten nach Ravishankara et al. (1980) oder NASA (1985), die eine exponentielle Abhängigkeit von der Temperatur beinhalten, keine signifikanten Umwandlungsraten (maximal 0.03%/h) für die Stratosphäre durch die Reaktionsgleichung (4.9).

Der in den Reaktionskonstanten auftretende Term zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeit liefert allein für die Temperaturunterschiede im betrachteten Höhenbereich der Stratosphäre Variationen der Reaktionskonstanten um den Faktor 10 bis 15 und damit Variationen der Abbauraten um viele Größenordnungen.

Im stratosphärischen Transportmodell werden - wie auch in Tabelle 4.1 (Seite 23) aufgeführt - zwar die drei diskutierten Reaktionsgleichungen des COS (Gleichung (4.5), (4.6) und (4.9)) mit den angegebenen Reaktionskonstanten und als konstant

<i>COS</i> - Abbauraten [%/h]				
Reaktion	Höhe [km]			
	10	20	30	40
Photodissoziation	0.54(-8)	0.50(-3)	0.10(0)	0.18(+1)
Oxidation mit $O(^3P)$	0.13(-3)	0.32(-3)	0.44(-1)	0.99(0)
Oxidation mit $O(^1D)$	0.14(-9)	0.20(-8)	0.15(-6)	0.28(-5)
Oxidation mit OH	0.39(-3)	0.23(-3)	0.39(-2)	0.25(-1)

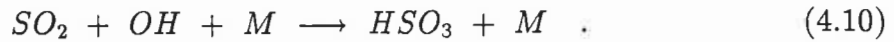
(wobei z.B. $0.54(-8) \equiv 0.54 \cdot 10^{-8}$)

Tabelle 4.2: Globale Mittel der Abbauraten von *COS* [%/h] unter Januarbedingungen für unterschiedliche Höhen auf Grund der im Transportmodell berücksichtigten Reaktionsgleichungen.

angenommenen Profilen des Sauerstoffs und Hydroxyl-Radikals berücksichtigt, aber die Bedeutung der Mechanismen für den *COS*-Abbau ist recht unterschiedlich. Aus Tab. 4.2 sind die berechneten Abbauraten im Vergleich zu den Raten der photochemischen Dissoziation für verschiedene Höhen ersichtlich. Reaktion (4.6) liefert damit keinen signifikanten Beitrag zum stratosphärischen *COS*-Abbau. Die anderen Abbauraten sind in 20 km Höhe von gleicher Größenordnung. In der oberen Stratosphäre gewinnen die Photodissoziation und die Reaktion (4.5) zunehmend an Bedeutung.

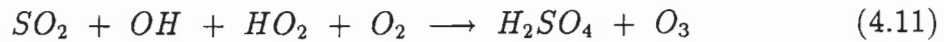
4.3.2 Oxidation von SO_2

Der wesentliche Abbaumechanismus des stratosphärischen SO_2 ist die durch die Reaktion mit dem OH -Radikal initiierte Oxidation (z.B. Turco et al., 1982), wobei für den ersten Schritt zur Bildung von Schwefelsäure H_2SO_4 folgende Reaktion angenommen wird (Crutzen et al., 1983)



M ist ein freies, nichtreaktives Spurengas, das einen Teil der bei der Reaktion freierwerdenden Energie übernimmt, die sonst zum Zerfall des Produktes führen würde.

Obwohl die Reaktionsfolge von SO_2 zu H_2SO_4 infolge der Komplexität von Zahl und Art der möglichen Reaktionspartner bisher nicht eindeutig geklärt ist, läßt sich nach (Crutzen et al., 1983) die Gesamtreaktion



mit einer möglichen Bildung von Ozon angeben. Die Radikalreaktion von HSO_3 zu H_2SO_4 läuft sehr schnell ab, so daß der geschwindigkeitsbestimmende Schritt der H_2SO_4 -Bildung durch die Reaktion (4.10) gegeben ist (Turco et al., 1979; Ockelmann, 1989). Deshalb kann der SO_2 -Abbau mit einer Reaktion 2. Ordnung dem Ratengesetz (4.8) entsprechend

$$\frac{d[SO_2]}{dt} = -k [OH] [SO_2] \quad (4.12)$$

beschrieben werden. Da die OH -Konzentration durch diese Reaktion kaum geändert wird (Fabian, 1987), wird in dem Transportmodell die Bildung des Reaktionsproduktes H_2SO_4 mit einer Reaktion 1. Ordnung berechnet (z.B. Rodhe et al., 1981)

$$[H_2SO_4] = [SO_2]_{t=t_2} - [SO_2]_{t=t_1} = [SO_2]_{t=t_1} (1 - e^{k[OH]\Delta t}) \quad (4.13)$$

Unter stratosphärischen Bedingungen hat die gebildete gasförmige Schwefelsäure einen niedrigen Dampfdruck, so daß durch die Gas-Teilchen-Umwandlung (siehe Kapitel 5) neue Teilchen entstehen können.

Die quantitative Bestimmung des SO_2 -Abbaus erfordert die Kenntnis der stratosphärischen OH -Verteilung. Da bis zum gegenwärtigen Zeitpunkt nur wenige direkte Messungen des OH -Radikals vorliegen (Armerding et al., 1987), werden die vom photochemischen Modell berechneten OH -Verteilungen benutzt (siehe Kapitel 7.4). Die OH -Konzentration bestimmt auf Grund ihrer großen Reaktionsfreudigkeit mit vielen atmosphärischen Spurenstoffen deren chemische Lebensdauer. Wird in den chemischen Modellen die Zahl der Reaktionsgleichungen bzw. -partner sowie Reaktionskonstanten auf Grund neuer Erkenntnisse geändert, so ergeben sich Veränderungen in der simulierten OH -Konzentration, die auch zu Veränderungen der Oxidationsfähigkeit beitragen.

Die Reaktionskonstante k (Gleichung (4.13)) ist abhängig von den atmosphärischen Bedingungen wie Temperatur und Druck sowie der Konzentration der Reaktionspartner. Zur Abschätzung des Einflusses der Reaktionskonstanten auf den SO_2 -Abbau durch die Oxidation mit dem Hydroxyl-Radikal bilden wir SO_2 -Umwandlungsraten U_{SO_2} [%/h]

$$U_{SO_2} = 100 (1 - e^{-k[OH]\Delta t}) \quad (4.14)$$

und verwenden für k die in der neueren Literatur für die Stratosphäre empfohlenen Reaktionskonstanten (k_1 bis k_3):

1. Moortgart et al. (1977) stellen in ihrer Arbeit die zur Bestimmung von k durchgeführten Experimente detailliert zusammen und empfehlen die folgende Bestimmungsgleichung

$$k_1 = 8.2 \cdot 10^{-13} \cdot [N] / (7.9 \cdot 10^{17} + [N]) \quad (4.15)$$

$[N]$ ist die Anzahldichte der Luftmoleküle und repräsentiert die Druckabhängigkeit von k_1 .

2. Die Beziehung

$$k_2 = \frac{2 \cdot 10^{-12} \cdot A}{1 + A} 0.6^{(1+(\lg A)^2)^{-1}} \quad (4.16)$$

mit

$$A = 1.5 \cdot 10^{-19} \left(\frac{300}{T}\right)^{2.9} [N]$$

berücksichtigt neben der Druckabhängigkeit auch die Temperaturabhängigkeit (NASA, 1981; Meixner, 1982).

3. Turco et al. (1982) gebraucht in seinem Modell die Reaktionskonstante

$$k_3 = 3 \cdot 10^{-31} \left(\frac{300}{T}\right)^{2.9} [N] \quad (4.17)$$

Mit diesen Konstanten ergeben sich die in Abb. 4.1 (Seite 27) für den Nordwinter dargestellten Umwandlungsraten, die im globalen Mittel besonders in der oberen Stratosphäre beträchtlich voneinander abweichen. Bereits durch die Wahl der entsprechenden Reaktionskonstanten kann der SO_2 -Abbau durch die Reaktion (4.11) um bis zu 50% verändert werden. Der Fehler im vorgegebenen OH -Profil bleibt dabei noch unberücksichtigt. Für die weiteren Rechnungen wird die Konstante k_2 gewählt, da diese sowohl die Druck- als auch die Temperaturabhängigkeit beinhaltet.

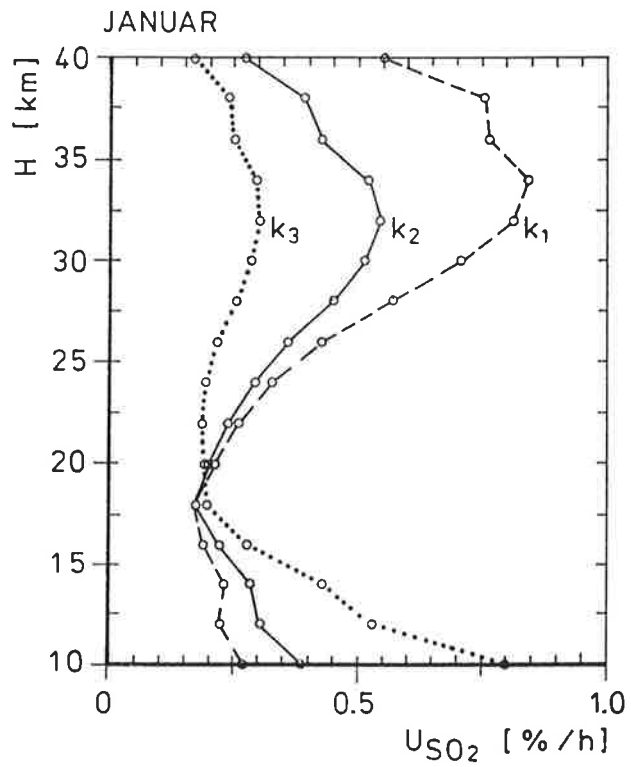


Abbildung 4.1: Globale Mittel der SO_2 -Umwandlungsraten $U_{SO_2}[\%/h]$ unter Januarbedingungen berechnet mit unterschiedlichen Reaktionskonstanten.

k_1 : Moortgart et al. (1977); k_2 : NASA (1981); k_3 : Turco et al. (1982).

4.4 Rainout und Washout

Die Entfernung der wasserlöslichen Gase durch Niederschlagsselemente unterhalb der Wolkenbasis (washout) und durch Anlagerung gelöster Schwefelkomponenten innerhalb von Wolken in Wolkentröpfchen (rainout) werden beide insgesamt im Transportmodell bis zum Tropopausenniveau folgendermaßen berücksichtigt

$$-\frac{d[X]}{dt} = wash_x[X] \quad , \quad (4.18)$$

wobei $[X]$ für die Konzentration von SO_2 bzw. H_2SO_4 steht. Die Auswaschraten $wash_x$ sind empirische Parameter. Unter der Annahme einer dreitägigen Lebenszeit von SO_2 und einer 12-stündigen von H_2SO_4 an der Erdoberfläche und einer linearen Abnahme der Rate mit der Höhe z auf den Wert Null im Tropopausenniveau h_T folgt (Turco et al., 1979)

$$wash_{SO_2} = 3.8 \cdot 10^{-6} \left(\frac{h_T - z}{h_T} \right) \quad (4.19)$$

$$wash_{H_2SO_4} = 2.3 \cdot 10^{-5} \left(\frac{h_T - z}{h_T} \right) \quad . \quad (4.20)$$

Das Tropopausenniveau wird breiten- und jahreszeitabhängig vorgegeben.

Da COS nur eine geringe Wasserlöslichkeit besitzt (Turco et al., 1980), wird das Auswaschen von COS im Modell vernachlässigt.

5 Mikrophysikalische Prozesse

In diesem Abschnitt werden die Grundlagen und Parameterisierungen der mikrophysikalischen Prozesse behandelt, die zur Bildung der stratosphärischen Aerosolschicht beitragen. Im Transportmodell werden neben den advektiven und diffusiven Transporten die Gas-Teilchen-Umwandlung, Koagulation und Sedimentation berücksichtigt.

Der alleinige Transport von Teilchen aus der Troposphäre ist nur geringfügig an der Aufrechterhaltung der Sulfatschicht beteiligt; vielmehr erfolgt die Bildung der Aerosolteilchen aus Schwefelsäure über die Gas-Teilchen-Umwandlung (Kap. 5.1). Ein grundlegender Parameter der Aerosolteilchen ist ihre Größenverteilung, die für die Untersuchung der Klimarelevanz vulkanogener und anthropogener Teilchen von wesentlicher Bedeutung ist. Die in dieser Arbeit gewählte Verteilung (ZOL-Verteilung; siehe dazu Kap. 5.2) ermöglicht die Beschreibung verschiedener stratosphärischer Bedingungen mit nur einem Ansatz bei Variation lediglich eines Parameters.

Die beiden weiteren Kapitel dienen der Beschreibung von Sedimentation und Koagulation.

5.1 Gas-Teilchen-Umwandlung

Stratosphärische Aerosolteilchen werden aus den Oxidationsprodukten des Schwefeldioxids durch eine Gas-Teilchen-Umwandlung gebildet. Da die reaktionskinetischen Schritte der Bildung von Kernen aus dem übersättigten Dampf im Detail bisher nicht verfügbar sind (Whitten, 1982), wurde die Kernbildungsrate mit den Annahmen der Gleichgewichtsthermodynamik bestimmt (Flood, 1934; Reiss, 1950; Kiang et al., 1973).

In der Stratosphäre dominiert die heteromolekulare Kernbildung, bei der aus der Kombination von zwei oder mehreren Gasen Kerne gebildet werden; dagegen spielt die homomolekulare Kernbildung eine untergeordnete Rolle (Hamill et al., 1977). Die

Bildung von Kernen durch Ionen-Kluster scheint ebenfalls unwesentlich, da die Kürze der Ionenlebenszeit (μs -Bereich) die Ionensammelzeit stark begrenzt (Mohnen et al., 1969; Turco et al., 1982).

Die Bildungsrate J stabiler Kerne pro Volumen und Zeit aus Wasserdampf (Index a) und gasförmiger Schwefelsäure (Index b) durch die heteromolekulare Kernbildung bei einer gegebenen absoluten Temperatur T ist nach der klassischen Theorie (z.B. Twomey, 1977) gegeben durch

$$J = 4\pi r^{*2} \beta_b N_a \exp\left(\frac{-\Delta G^*}{\tilde{k}T}\right) \quad (5.1)$$

wobei r^* der kritische Radius des gebildeten Kerns, bei dem die freie Enthalpie ΔG ein Maximum ΔG^* hat und die Zahl der H_2O -Moleküle N_a pro Volumen die Zahl der H_2SO_4 -Moleküle N_b übertrifft. \tilde{k} ist die Boltzmann-Konstante und β_b die Kollisionsrate der H_2SO_4 -Moleküle auf die Kernoberfläche.

$$\beta_b = N_b \left(\frac{\tilde{k}T}{2\pi m_b}\right)^{1/2} \quad (5.2)$$

mit der Masse m_b eines H_2SO_4 -Moleküls.

Die notwendige freie Enthalpie zur Bildung eines Lösungstropfens aus zwei unterschiedlichen Gaskomponenten ist durch

$$\Delta G = n_a(\mu_a^f - \mu_a^g) + n_b(\mu_b^f - \mu_b^g) + 4\pi r^2 \sigma^* \quad (5.3)$$

gegeben mit n_i der Zahl der Mole der beteiligten Gase i . μ_i^f und μ_i^g sind die chemischen Potentiale bei flüssiger und gasförmiger Phase und σ^* ist die Oberflächenspannung des Tropfens, die von der Konzentration abhängig ist (Hamill et al., 1977). Die Differenz der chemischen Potentiale der Gasphase und der flüssigen Phase ist für jede Komponente i eines idealen Gases

$$(\mu_i^f - \mu_i^g) = -RT \ln\left(\frac{P_i}{P_i^{l\ddot{o}s}}\right) \quad (5.4)$$

P_i ist der aktuelle Dampfdruck der Komponente i und $P_i^{l\ddot{o}s}$ ist der Gleichgewichtsdampfdruck der Komponente i über der Lösungsoberfläche.

Mit den Definitionen der relativen Feuchte bzw. relativen Saure $S_i = P_i/P_i^o$ und der Aktivitat $A_i = P_i^{l\ddot{o}s}/P_i^o$, wobei P_i^o der Gleichgewichtsdampfdruck der Komponente i uber einer ebenen Oberflache der reinen Substanz i ist, last sich Gleichung (5.3) schreiben

$$\Delta G(n_a, n_b) = -n_a RT \ln\left(\frac{S_a}{A_a}\right) - n_b RT \ln\left(\frac{S_b}{A_b}\right) + 4\pi r^2 \sigma^* \quad (5.5)$$

Der Tropfenradius r wird abhangig von n_i , dem Molekulargewicht M_i und der Dichte der Losung ρ dargestellt (Hamill et al., 1977)

$$r = \left[\frac{3(n_a M_a + n_b M_b)}{4\pi \rho} \right]^{1/3} \quad (5.6)$$

Unter den Bedingungen des chemischen Gleichgewichts gilt:

$$\left(\frac{\partial \Delta G}{\partial n_a}\right)_{n_b} = 0 \quad \text{und} \quad \left(\frac{\partial \Delta G}{\partial n_b}\right)_{n_a} = 0 \quad (5.7)$$

Substituieren wir Gleichung (5.5) in (5.7) so ergeben sich zwei Gleichungen fur den Teilchenradius r und die Tropfenzusammensetzung X' (Yue, 1979)

$$\ln \frac{S_a}{A_a} = \frac{2}{RT} \frac{M_a \sigma^*}{\rho r} \left(1 + \frac{X'}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial X'} - \frac{2 X'}{3 \sigma^*} \frac{\partial \sigma^*}{\partial X'}\right) \quad (5.8)$$

$$\ln \frac{S_b}{A_b} = \frac{2}{RT} \frac{M_b \sigma^*}{\rho r} \left(1 - \frac{(1 - X')}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial X'} + \frac{2(1 - X')}{3 \sigma^*} \frac{\partial \sigma^*}{\partial X'}\right) \quad (5.9)$$

wobei $X' = (n_b M_b)/(n_a M_a + n_b M_b)$. Die Volumenkontraktion des Losungstropfens

gegenüber den Volumen der Ausgangssubstanzen wird durch die Ableitung $\frac{\partial \rho}{\partial X'}$ und die von der Zusammensetzung abhängige Oberflächenspannung durch den Term $\frac{\partial \sigma^*}{\partial X'}$ berücksichtigt.

Im Gleichgewichtszustand wird die freie Enthalpie maximal (Yue et al., 1979)

$$\Delta G^* = \frac{4}{3}\pi\sigma^*r^{*2} \quad (5.10)$$

und der Tropfen erreicht einen kritischen Radius r^*

$$r^* = \frac{2\sigma^*v}{\tilde{k}T\ln S^*} \quad (5.11)$$

v ist das molare Volumen des Tropfens und

$$S^* = \left(\frac{P_a}{P_a^{\text{lös}}}\right)^{1-X} \left(\frac{P_b}{P_b^{\text{lös}}}\right)^X, \quad (5.12)$$

die kritische Übersättigung, die zur Bildung neuer Tropfen notwendig ist, mit dem Molenbruch X

$$X = \frac{n_b}{n_a + n_b} \quad (5.13)$$

Das Gleichungssystem (5.8) und (5.9) ist für X' und r bei gegebenen Umgebungsbedingungen nur mit Hilfe von Iterationsverfahren numerisch lösbar, da A_a , A_b , ρ und σ^* implizite Funktionen von X' sind. Die für die weitere Berechnung der Kernbildungsraten J notwendigen Parameter σ^* , v und $P_i^{\text{lös}}$ werden in Abhängigkeit von X'^* und T einer entsprechenden Datenzusammenstellung von Hamill et al. (1977) entnommen.

Eine praktikable Möglichkeit zur Bestimmung der Zusammensetzung der Schwefelsäuretröpfchen X'^* im kritischen Gleichgewichtszustand bietet die graphische Methode nach Yue (1979). In einer doppeltlogarithmischen Darstellung von S_b über

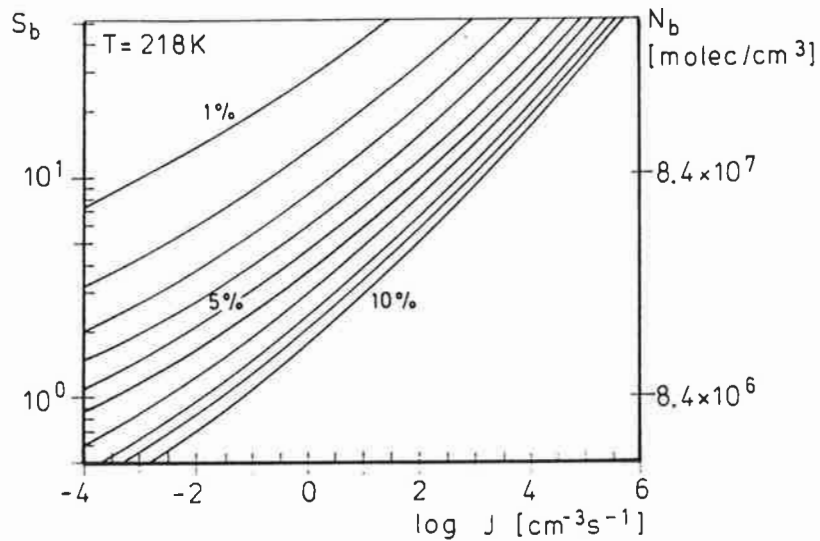


Abbildung 5.1: Kernbildungsraten $J [\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}]$ in Abhängigkeit von der relativen Säure S_b bei einer Temperatur von 218 K. Scharparameter ist die relative Feuchte (1 bis 10%).

S_a bei einer gegebenen Temperatur wird jedes X'^* durch eine Gerade beschrieben, so daß bei bekannter relativer Feuchte und berechneter relativer Säure, die sich aus dem Transportmodell unter Berücksichtigung der Sättigungsdampfdrucke von Schwefelsäure nach Gmitro et al. (1964) ergibt, daraus X'^* bestimmbar ist. Der Temperatureinfluß bei der Bestimmung von X'^* wird vernachlässigt, da der absolute Fehler für den vorgegebenen stratosphärischen Temperaturbereich und die geringen relativen Feuchten maximal 0.02 beträgt. Dieser Wert liegt innerhalb der Genauigkeit der Methode nach Yue.

Die Abb. 5.1 und 5.2 zeigen die berechneten Kernbildungsraten J und die kritischen Radien r^* in Abhängigkeit von der relativen Säure S_b und unterschiedlichen relativen Feuchten S_a (1% bis 10%) bei einer charakteristischen stratosphärischen Temperatur von 218 K. Ein Anstieg von S_a bzw. S_b bewirkt eine Verringerung von r^* und erleichtert die heteromolekulare Kernbildung. Die Kernbildungsraten sind von den Umgebungsbedingungen empfindlich abhängig. So bewirkt beispielsweise eine Änderung von S_b um eine Größenordnung (z.B. von 1 auf 10) bei einer relativen Feuchte von 5% einen Anstieg von J von 10^{-4} auf $60 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$. Eine Feuchteänderung von 3 auf 4% bei $S_b=10$ ergibt ein ΔJ von $16 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$. Diese Änderungen der Kern-

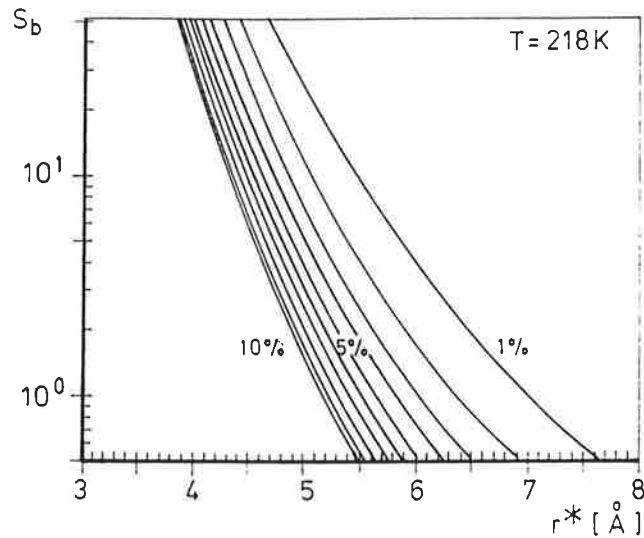


Abbildung 5.2: Kritischer Radius r^* [Å] in Abhängigkeit von der relativen Säure S_b unter stratosphärischen Bedingungen für unterschiedliche relative Feuchten (1 bis 10%) bei einer Temperatur von 218 K.

bildungsrate auf Grund offenbar geringer Änderungen der Umgebungsparameter sind bereits signifikant, denn schon relativ kleine Kernbildungsraten von etwa $J = 0.001 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ reichen aus, um die Aerosolschicht der ungestörten Stratosphäre kontinuierlich aufzufüllen (Hamill et al., 1982).

Zur Abschätzung der Höhenabhängigkeit der Kernbildungsrate J in der Stratosphäre wird nun der Einfluß der Temperatur auf J betrachtet. Die Darstellung in Abb. 5.3 zeigt im Bereich signifikanter J größere Werte bei einer höheren Temperatur. Mit zunehmender Temperatur und damit auch mit zunehmender Höhe steigt jedoch der Sättigungsdampfdruck der Schwefelsäure P_b^o ($T=218 \text{ K}$: $P_b^o=0.19 \cdot 10^{-9} \text{ mm Hg}$; $T=240 \text{ K}$: $P_b^o=0.92 \cdot 10^{-8} \text{ mm Hg}$), so daß wesentlich höhere Werte des Schwefelsäuredampfdrucks in der oberen Stratosphäre notwendig sind, um gleiche relative Säuren zu erreichen. Dieser Effekt wird durch die Zunahme des aktuellen Schwefelsäuredampfdrucks mit der Höhe - wie auch die folgenden Rechnungen zeigen - begünstigt.

Die berechneten kritischen Radien stimmen mit denen von Hamill et al. (1977) für

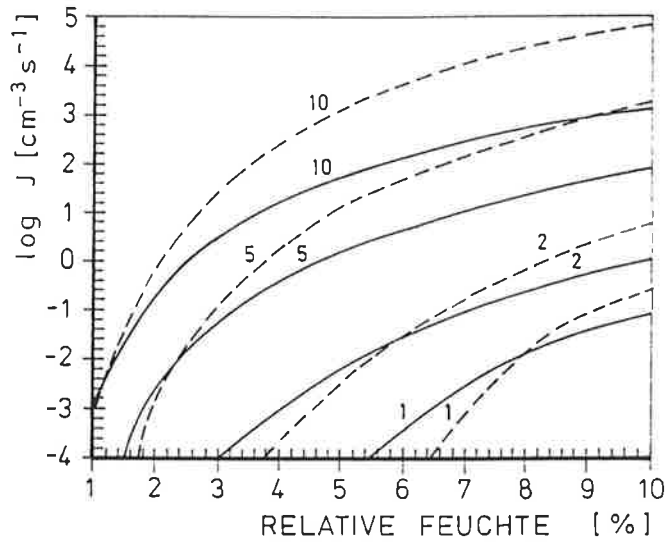


Abbildung 5.3: Kernbildungsraten J [$\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$] in Abhängigkeit von der relativen Feuchte und relativen Säure (1,2,5,10) bei einer Temperatur von 218 K (durchgezogene Linien) und 240 K (unterbrochene Linien).

die angegebenen relativen Feuchten und Säuren überein. Die Kernbildungsraten J unterscheiden sich maximal um einen Faktor 10, da die Bestimmung des kritischen Mischungsverhältnisses nach der einfachen graphischen Methode nach Yue erfolgt und dabei Abweichungen bis zu 5% zu den Werten von Hamill et al. (1977) auftreten können.

Das weitere Wachsen der Kerne zu Aerosolteilchen erfolgt vorwiegend durch Anlagerung von Molekülen aus der Gasphase an die Kerne (Kondensation). Brownsche Koagulation wird erst im Radienbereich $r=3\cdot 10^{-3}\mu\text{m}$ bis $10^{-2}\mu\text{m}$ wirksam (Walter, 1972).

5.2 Größenverteilung

Zur Berechnung der Koagulationsfunktion und zur Bestimmung der Strahlungseigenschaften von Aerosolteilchen ist die Größenverteilung der Teilchen ein entscheidender Parameter. Gemessene Größenverteilungen sind in der Stratosphäre nur vereinzelt für unterschiedliche Höhen und geographischen Breiten verfügbar (z.B. Hofmann et al., 1983; Turco et al., 1982).

Zur Beschreibung der Größenverteilung der Aerosolteilchen wird eine empirische Verteilungsfunktion $n(r)$ benötigt, die den gesamten Größenbereich der Teilchen abdecken sollte. Für stratosphärische Teilchen unter sowohl ungestörten als auch unterschiedlich vulkanisch gestörten Bedingungen bietet sich die von Espenscheid et al. (1964) vorgeschlagene ZOL (Zero-Order-Logarithmic)-Größenverteilung $n(r)$ an (z.B. Lenoble et al., 1984).

$$n(r) = C \exp\left(-\frac{\ln^2(r/r_m)}{2 \ln^2 \sigma}\right) \quad (5.14)$$

mit den Momenten

$$M_K = \int_0^\infty r^K n(r) dr = C \sqrt{2\pi} \ln \sigma r_m^{K+1} \exp\left(\frac{(K+1)^2}{2} \ln^2 \sigma\right) . \quad (5.15)$$

Der häufigste Radius r_m folgt aus der Bedingung

$$\frac{dn(r)}{dr} = 0 \quad \text{bei} \quad r = r_m . \quad (5.16)$$

Zur Berechnung der Konstanten C in (5.15) wird das nullte Moment auf Eins normiert. Das erste Moment M_1 liefert den mittleren Radius \bar{r} . Der dimensionslose Parameter σ charakterisiert die Breite der Verteilungskurve und ist mit dem effektiven Radius r_{eff}

$$r_{eff} = \frac{M_3}{M_2} = r_m \exp\left(\frac{7}{2} \ln^2 \sigma\right) \quad (5.17)$$

und der effektiven Varianz v_{eff}

$$v_{eff} = \frac{M_4}{r_{eff}^2 M_2} - 1 = \exp(\ln^2 \sigma) - 1 \quad , \quad (5.18)$$

die durch das Quadrat von r_{eff} dimensionslos wird, verknüpft (Hansen et al., 1974).

In Abb. 5.4 sind ZOL-Verteilungsfunktionen für verschiedene stratosphärische Zustände dargestellt.

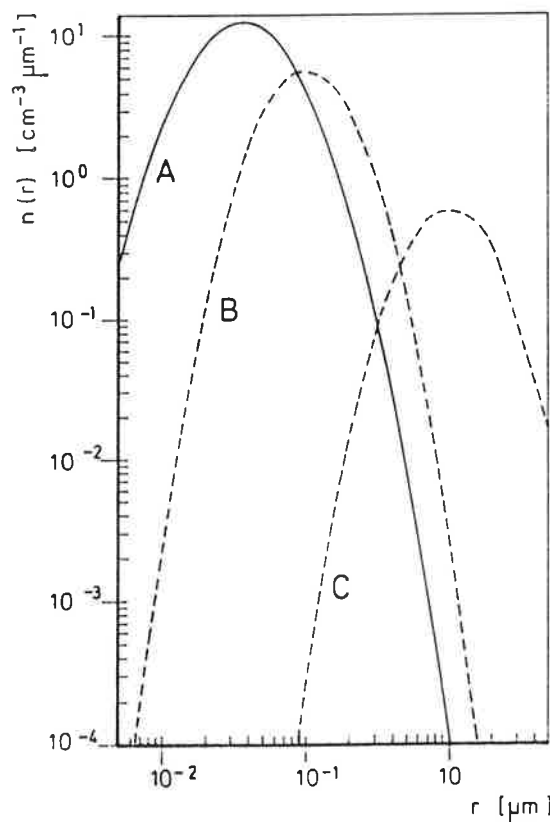


Abbildung 5.4: Beispiele für ZOL-Größenverteilungen für die ungestörte (A) und gestörte (B,C) Stratosphäre.

A) $r_m=0.035\mu\text{m}$; B) $r_m=0.1\mu\text{m}$; C) $r_m=1.0\mu\text{m}$.

Die Gebrauch der ZOL-Verteilung bietet den Vorteil, daß eine Veränderung von r_m keine Formveränderung der Verteilungsfunktion bewirkt. Zur Berücksichtigung der

zeitlichen Änderung der Größenverteilung nach einer Eruption wird lediglich r_m variiert; der Parameter σ wird für verschiedene stratosphärische Teilchenverteilungen und Zustände 1.8 gesetzt (Toon et al., 1976). Whitten (1982) belegt, daß Messungen der Größenverteilung vor und nach der Eruption des Mt. Agung eine sehr gute Übereinstimmung mit dieser gewählten ZOL-Verteilung zeigen.

Zur Bestimmung des Strahlungsfeldes wird die Größenverteilung für jeden Punkt des Modellgitters benötigt. Aus Gründen der Rechenzeiterparnis wird jedoch unter stratosphärisch ungestörten Bedingungen für alle Gitterpunkte nur eine charakteristische Verteilung mit $r_m = 0.035 \mu\text{m}$ (Kurve (A) in Abb. 5.4) gewählt. Für vulkanisch gestörte Bedingungen wird nach der Eruption ein zeitabhängiges r_m zur Berechnung der Größenverteilung benutzt.

5.3 Sedimentation

Die Geschwindigkeit eines Aerosolteilchens, bei der sich die Wirkung von Schwerkraft und Widerstandskraft aufheben, wird als Sedimentationsgeschwindigkeit w_s bezeichnet. Unter der Annahme kugelförmiger Teilchen erfolgt die Berechnung der Sedimentationsgeschwindigkeit nach der Stokes-Cunningham-Gleichung:

$$w_s = \frac{2 (\rho_T - \rho_L) r^2 g}{9\eta} \left[1 + \frac{\lambda}{r} \left(A + B \exp\left(-\frac{C r}{\lambda}\right) \right) \right] \quad (5.19)$$

mit

ρ_T	Dichte der Aerosolteilchen
ρ_L	Luftdichte
r	Teilchenradius
η	Viskosität
g	Schwerebeschleunigung (abhängig von geographischer Breite und Höhe)
λ	Mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle
A, B, C	Konstanten.

Das Korrektionsglied in der Gleichung (5.19) beinhaltet die Knudsenzahl Kn , das Verhältnis der mittleren freien Weglänge λ zum Teilchenradius r . Bei $Kn \gg 1$ gehorcht die Bewegung der Teilchen den Gesetzen der kinetischen Gastheorie, bei $Kn \ll 1$ den Gesetzen der Brownschen Molekularbewegung. Besonders für Teilchen mit Radien $r \leq \lambda$ ist der Korrektionsterm signifikant. Die in der Gleichung auftretenden Konstanten wurden entsprechend Kasten (1968) $A=1.249$, $B=0.42$ und $C=0.87$ gesetzt. Die mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle wird der US-Standardatmosphäre (1962) entnommen.

Die Abb. 5.5 zeigt die berechneten Sedimentationsgeschwindigkeiten für Sulfataerosolteilchen unterschiedlicher Radien der Dichte $\rho_T=1.8 \text{ g/cm}^3$. Die sinkenden Teilchen erreichen in der Stratosphäre schnell ihre Endgeschwindigkeit. Jedoch ist die Sedimentationsgeschwindigkeit im Gegensatz zu der in der Troposphäre insbesondere bei Teilchen kleiner und mittlerer Größe stark höhenabhängig. Mit ansteigender Höhe

wächst sie bedingt durch die zunehmende mittlere freie Weglänge λ an.

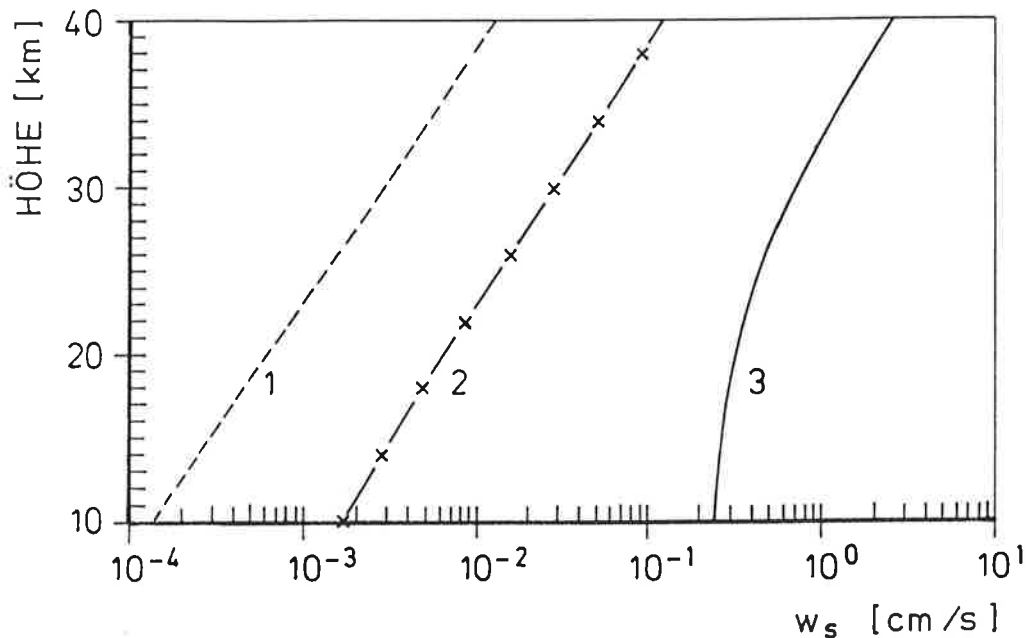


Abbildung 5.5: Vertikalprofile der berechneten Sedimentationsgeschwindigkeit w_s [cm/s] für Sulfataerosolteilchen unterschiedlicher Radien.

- (1) $r = 0.015 \mu\text{m}$
- (2) $r = 0.15 \mu\text{m}$
- (3) $r = 2.85 \mu\text{m}$.

Mit den berechneten Sedimentationsgeschwindigkeiten können Absinkzeiten abgeschätzt werden: Rund 6 Wochen sind erforderlich, damit ein Teilchen mittlerer Größe ($r = 0.15 \mu\text{m}$) aus 30 km Höhe einen Kilometer fällt; in geringeren Höhen ist die Zeit auf Grund der geringeren Sedimentationsgeschwindigkeit wesentlich länger (in 20 km Höhe beträgt die Zeit ungefähr ein halbes Jahr).

5.4 Koagulation

Die Koagulation zwischen Aerosolteilchen stellt eine Senke für bestimmte Größenbereiche, aber auch eine Teilchenquelle für andere Größenbereiche dar. Die Kollision der Teilchen infolge der Brownschen Molekularbewegung und die anschließende Koaleszenz wird als Brownsche Koagulation bezeichnet. Koagulationsprozesse bedingt durch unterschiedliche Sedimentationsgeschwindigkeiten verschieden großer Teilchen werden in der Stratosphäre gegenüber der Brownschen Koagulation vernachlässigt (Turco et al., 1979).

Die Koagulation wird von dem Stoßquerschnitt der Aerosolteilchen, ihrer Beweglichkeit und der Stoßwirksamkeit beeinflusst. Theorien der Koagulation basieren gewöhnlich auf der Annahme kugelförmiger Teilchen. Unter der Voraussetzung, daß jeder Zusammenstoß von Aerosolteilchen auf Grund der Brownschen Bewegung auch zu deren Koaleszenz führt, läßt sich nach Fuchs (1964) die Gleichung für die zeitliche Veränderung von N monodispersen Aerosolteilchen durch Koagulation angeben

$$\frac{dN}{dt} = -K_0 N^2 \quad , \quad (5.20)$$

wobei K_0 die Koagulationskonstante ist. Mit der Einführung eines radienabhängigen Produktionsterms α , der die Zunahme der Teilchenanzahl im betrachteten Größenbereich durch Koaleszenz von Teilchen aus anderen Größenintervallen beinhaltet, und einer gemittelten Koagulationsfunktion \bar{K} lautet die Koagulationsgleichung für polydisperses Aerosol (Walter, 1972):

$$\frac{dN}{dt} = \alpha - \bar{K} N^2 \quad (5.21)$$

mit

$$\bar{K} = \frac{\int_0^\infty \int_0^\infty K(r_1, r_2) n(r_1, t) n(r_2, t) dr_1 dr_2}{(\int_0^\infty n(r, t) dr)^2} \quad (5.22)$$

\bar{K} setzt die Bestimmung der Koagulationskonstanten $K(r_1, r_2)$ und die Kenntnis

einer Größenverteilung n voraus. Um die Koagulationsereignisse nicht doppelt zu zählen, wurde der Faktor $1/2$ nach der Fuchsschen Vereinbarung bereits in K_0 und $K(r_1, r_2)$ berücksichtigt. Die Koagulationskonstante $K(r_1, r_2)$ ist eine Funktion der Teilchenradien r_1 und r_2 und der Diffusionskoeffizienten D_1 und D_2 der Teilchen auf Grund der Brownschen Bewegung

$$K(r_1, r_2) = 8\pi \frac{r_1 + r_2}{2} \frac{D_1 + D_2}{2} / \beta \quad (5.23)$$

mit

$$\beta = \left(\frac{r_1 + r_2}{(r_1 + r_2) + \frac{1}{2}\sqrt{\delta_1^2 + \delta_2^2}} + \frac{4(D_1 + D_2)}{(r_1 + r_2)\sqrt{V_1^2 + V_2^2}} \right) \quad (5.24)$$

β und $\delta_{1,2}$ sind Korrekturfaktoren nach Fuchs (1964) und $V_{1,2}$ die mittlere Geschwindigkeit eines Teilchens auf Grund der Brownschen Bewegung. $D_{1,2}$ wird nach der Einsteinschen Beziehung mit der Beweglichkeit $B_{1,2}$ der Aerosolteilchen verknüpft

$$D_{1,2} = \tilde{k} T B_{1,2} \quad , \quad (5.25)$$

wobei \tilde{k} die Boltzmann-Konstante und T die Lufttemperatur ist. Die Beweglichkeit ist für kugelförmige Teilchen experimentell in Abhängigkeit von der Viskosität η bestimmt worden (Walter, 1972)

$$B_{1,2} = C \frac{1}{6\pi\eta r_{1,2}} \quad (5.26)$$

Der Faktor C ist mit dem Cunningham-Korrektionsterm in Gleichung (5.19) identisch.

Abb. 5.6 zeigt die Koagulationskonstante $K(r_1, r_2)$ von Sulfataerosolteilchen mit ausgewählten Radien r_1 in Abhängigkeit von r_2 für eine Höhe von 20 km. Unter stratosphärischen Bedingungen ist die Koagulationskonstante größer als in der Troposphäre, da die Viskosität der Luft mit der Höhe abnimmt und damit die Beweglichkeit der Teilchen ansteigt.

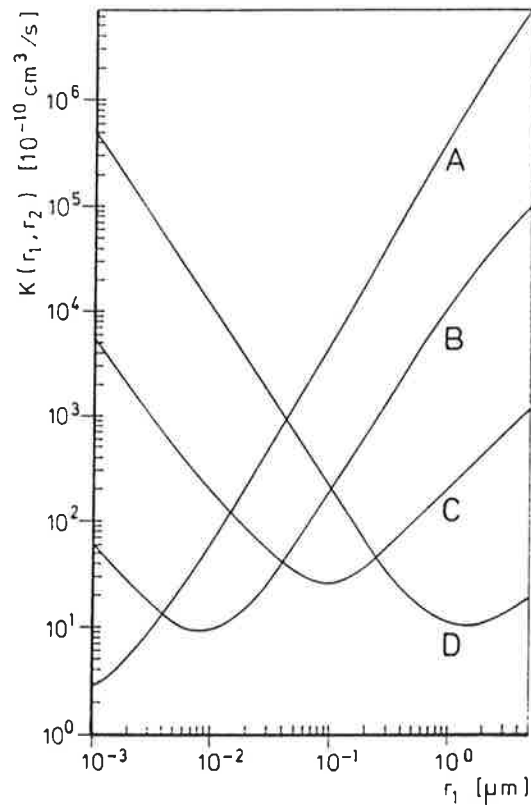


Abbildung 5.6: Koagulationskonstante $K(r_1, r_2)$ [$10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$] für Sulfataerosolteilchen in Abhängigkeit vom Radius r_1 für verschiedene Radien r_2 unter stratosphärischen Bedingungen (Höhe: 20 km)
 (A) $r_2 = 0.001 \mu\text{m}$ (B) $r_2 = 0.01 \mu\text{m}$ (C) $r_2 = 0.1 \mu\text{m}$ (D) $r_2 = 1.0 \mu\text{m}$.

Unter Verwendung der Koagulationskonstanten $K(r_1, r_2)$ und der vorgegebenen ZOL-Größenverteilung (Kapitel 5.2) kann \bar{K} für alle im Modell verwendeten Größenklassen höhen- und breitenabhängig für alle Jahreszeiten berechnet werden. Es wird unterschieden zwischen modaler Koagulation, bei der die beteiligten Teilchen einer Größenklasse entstammen, und intermodaler Koagulation, bei der unterschiedlich große Teilchen an dem Prozeß beteiligt sind. Die im Modell verwendeten \bar{K} sind in der Tab. 5.1 für eine stratosphärische Höhe im globalen Mittel und Jahresmittel zusammengestellt. Wesentliche Beiträge zur Änderung der Teilchenzahldichte durch Koagulation liefern die modale Koagulation innerhalb der Größenklasse 1 und 2 und die intermodale Koagulation. Die Koagulation weist in der Stratosphäre eine signi-

fikante Höhenabhängigkeit auf. Der Wert der Koagulationsfunktion nimmt in dem betrachteten Höhenbereich um einen Faktor 2 bis 3 von der unteren zur oberen Stratosphäre zu, wobei sich der größere Wert auf die modale Koagulation innerhalb der Klasse 2 bezieht.

$\bar{K} \cdot 10^{10} [cm^3/s]$		
	Ungestörte Bedingungen ($r_m = 0.035\mu m$)	Gestörte Bedingungen ($r_m = 0.5\mu m$)
Modale Koagulation		
Klasse 1	27.5	24.6
Klasse 2	26.9	20.2
Klasse 3	10.1	9.8
Intermodale Koagulation		
Klasse 1 - 2	35.3	20.6
Klasse 2 - 3	25.8	21.4

Tabelle 5.1: Verwendete modale und intermodale Koagulationsparameter \bar{K} für zwei verschiedene stratosphärische Zustände. Angegeben ist das globale Mittel in einer Höhe von 20 km. r_m ist der charakteristische Parameter der ZOL-Größenverteilung.

Koagulieren zwei Teilchen einer Größenklasse, kann das neu entstehende Teilchen die für diese Klasse festgelegte obere Radiusgrenze überschreiten. Aus dem Volumen kugelförmiger Teilchen kann die kritische Radiusgrenze jeder Klasse angegeben werden, an der das Koagulationsprodukt in die nächsthöhere Klasse wandert. Die Koagulationsfunktion wird für diesen Radiusbereich, der den Bereich vom berechneten kritischen Radius zur oberen Radiusgrenze einer Klasse einschließt, gesondert berechnet und die koagulierten Teilchen werden als Teilchenquelle in der nächsthöheren Klasse berücksichtigt. Für die ZOL-Verteilung der vulkanisch ungestörten Stratosphäre befinden sich in der Klasse 1 in diesem kritischen Radiusbereich 11% der Teilchen; in der

Klasse 2 ist auf Grund des sehr breit gewählten Größenbereichs (0.1 bis 1.0 μm) der Prozentsatz ($\ll 0.1\%$) vernachlässigbar. Der Übergang von neu entstehenden Teilchen in eine höhere Klasse durch die Koagulation von Teilchen mit einem Radius, der innerhalb des kritischen Bereichs dieser Klasse liegt, mit wesentlich kleineren Teilchen wird nicht berücksichtigt (Rehkopf, 1984).

6 Das Strahlungsmodell

6.1 Einführung

In diesem Kapitel wird der Einfluß der Aerosolteilchen auf den Strahlungshaushalt untersucht und ihre Klimarelevanz abgeschätzt. Aerosolteilchen streuen und absorbieren die einfallende solare Strahlung und emittieren langwellige Strahlung.

Zur Charakterisierung der Strahlungseigenschaften von Aerosolteilchen müssen für unser vereinfachtes Strahlungstransportmodell folgende Größen bekannt sein:

- Extinktionskoeffizient der stratosphärischen Aerosolteilchen
- Albedo für die Einfachstreuung als Maß ihrer Absorption
- Asymmetriefaktor als Maß für die Vorwärts- und Rückwärtsstreuung.

Diese Eigenschaften lassen sich bei Kenntnis der chemischen und physikalischen Aerosolcharakteristika (Größenverteilung, chemische Zusammensetzung, komplexer Brechungsindex) unter Voraussetzung homogener, kugelförmiger Teilchen nach der MIE-Theorie berechnen. Benötigt werden diese optischen Parameter der Teilchen als Funktion der Wellenlänge und wegen der starken raumzeitlichen Variabilität der Teilchenzahlen als Funktion von Raum und Zeit.

Die Wirkung der Extinktions- und Emissionsprozesse (Senken und Quellen) auf die Strahldichten wird durch die Strahlungsübertragungsgleichung beschrieben. Da die Strahlungsübertragungsgleichung in ihrer allgemeinen Form als Integrodifferentialgleichung nur numerisch integrierbar ist, sind zur Einsparung von Rechenzeit Vereinfachungen erforderlich. Mit der Annahme einer planparallel geschichteten Atmosphäre wird die Berechnung des Strahlungstransportes auf eine Dimension reduziert. Das gebrauchte Strahlungsübertragungsmodell (Bakan, 1982; Newiger, 1985) beruht auf der Delta-Eddington-Approximation. Für die Anwendung in der Stratosphäre müssen neben der Wasserdampf-, Kohlendioxid- und Aerosolabsorption und -streuung die Ozonabsorption beachtet werden.

6.2 Die Strahlungsübertragungsgleichung

Die Strahlungsübertragungsgleichung beinhaltet die Änderungen der spektralen Strahldichte $L_\lambda(r; \mu, \phi)$ im Raumpunkt r in Richtung (μ, ϕ) mit $\mu = \cos \vartheta$ ($\vartheta =$ Zenitwinkel, $\phi =$ Azimut), die durch Extinktions- und Emissionsprozesse hervorgerufen werden. Der Index λ bezeichnet spektrale Größen. Mit der Einführung einer optischen Dicke δ , die proportional dem Extinktionskoeffizienten σ_e ist, als vertikale Koordinate

$$d\delta_\lambda = -\sigma_{e\lambda} dz \quad (6.1)$$

lautet die monochromatische Strahlungsübertragungsgleichung für horizontal homogene Atmosphärenschichten (z.B. Bakan und Hinzpeter 1988)

$$\mu \frac{dL_\lambda(\delta_\lambda; \mu, \phi)}{d\delta_\lambda} = L_\lambda(\delta_\lambda; \mu, \phi) - J_\lambda(\delta_\lambda; \mu, \phi) \quad (6.2)$$

mit dem Quellenterm

$$J_\lambda(\delta_\lambda; \mu, \phi) = \frac{\tilde{\omega}_\lambda}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^{+1} P_\lambda(\delta_\lambda; \mu', \phi'; \mu, \phi) L_\lambda(\delta_\lambda; \mu', \phi') d\mu' d\phi' + \frac{\tilde{\omega}_\lambda}{4\pi} (\pi F_{0\lambda}) P_\lambda(\delta_\lambda; \mu_0, \phi_0; \mu, \phi) e^{-\left(\frac{\delta_\lambda}{\mu_0}\right)} + (1 - \tilde{\omega}_\lambda) B_\lambda(T(\delta_\lambda)) \quad (6.3)$$

$F_{0\lambda}$ bezeichnet den monochromatischen solaren Strahlungsfluß und der Faktor $\tilde{\omega}_\lambda$ ist das spektrale Reflexionsvermögen bei Einfachstreuung, welches durch das Verhältnis zwischen Streu- und Extinktionskoeffizienten

$$\tilde{\omega}_\lambda = \frac{\sigma_{s\lambda}}{\sigma_{e\lambda}} \quad (6.4)$$

gegeben ist. Der Extinktionskoeffizient der Teilchen ist die Summe aus Absorptionskoeffizient σ_a und Streukoeffizient σ_s . Die Quellfunktion (Gleichung (6.3)) umfaßt mit dem ersten Term die diffuse, bereits gestreute Strahlung, die entsprechend der

Phasenfunktion P_λ aus der Richtung (μ', ϕ') in Richtung (μ, ϕ) gestreut wird und mit dem 2. Term den aus der Richtung der direkten solaren Strahlung (μ_0, ϕ_0) in Richtung (μ, ϕ) gestreuten Anteil von F_0 . Die Richtungsabhängigkeit der Streustrahlung wird durch die Phasenfunktion P_λ bestimmt, die im allgemeinen auf Eins normiert wird. Der 3. Term in Gleichung (6.3) repräsentiert eine Emission in Richtung (μ, ϕ) , die unter der Voraussetzung lokalen thermodynamischen Gleichgewichts durch die Plancksche Funktion B_λ in Abhängigkeit von der Temperatur isotrop, aber durch das vertikale Temperaturprofil höhenabhängig gegeben ist.

6.3 Bestimmung der optischen Parameter

Die Strahlungseigenschaften kugelförmiger Teilchen mit dem Radius r und dem spektralen komplexen Brechungsindex m^* werden in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ aus der MIE-Theorie abgeleitet.

Unter Verwendung eines Unterprogrammes von Dave (1968) werden die Wirkungsquerschnitte der Extinktion und der Streuung für ein Teilchen berechnet

$$Q_{e,s} = \sigma_{e,s} / S \quad (6.5)$$

wobei S der geometrische Schattenquerschnitt - für kugelförmige Teilchen $S = \pi r^2$ - ist.

Für N Teilchen mit der Größenverteilung $n(r)$ gelten die folgenden Beziehungen (z.B. Lenoble et al., 1984):

Extinktions- bzw. Streukoeffizient

$$\sigma_{e,s}(\lambda) = N \int_0^\infty \pi r^2 Q_{e,s}(\lambda, r, m^*) n(r) dr \quad (6.6)$$

Phasenfunktion

$$P(\lambda, \Theta) = \frac{N}{\sigma_s(\lambda)} \int_0^\infty \pi r^2 P(\lambda, r, m^*; \Theta) Q_s(\lambda, r, m^*) n(r) dr \quad (6.7)$$

Der Cosinus des Streuwinkels Θ , dem Winkel zwischen der Richtung der einfallenden und gestreuten Strahlung, ist gegeben durch

$$\cos \Theta = \mu\mu' + \sqrt{(1 - \mu^2)(1 - \mu'^2)} \cos(\phi - \phi') \quad (6.8)$$

Die Integration über die ZOL-Verteilung (siehe dazu Kapitel 5.2) erfolgen durch Summationen über endliche Radiendifferenzen von $0.01 \mu\text{m}$ im Intervall $0 < r \leq 3 \mu\text{m}$.

Die optischen Parameter der Aerosolteilchen, die für die weiteren Berechnungen der Erwärmungsraten von Bedeutung sind, reagieren auf Veränderungen des komplexen Brechungsindex oder der Größenverteilung empfindlich. Im komplexen Brechungsindex $m^* = n - ik$ bestimmt der Imaginärteil das Absorptionsvermögen, und Real- und Imaginärteil bestimmen das Streuverhalten der Aerosolteilchen. Die in der Literatur angegebenen Brechungsindizes für Aerosolteilchen unterscheiden sich gerade im Imaginärteil erheblich, weil über das Absorptionsvermögen der Teilchen wenig bekannt ist (Toon et al., 1976; Graßl 1978; Lenoble et al., 1984; Monin, 1986). Übereinstimmend wird jedoch die Bedeutung der Wellenlängenabhängigkeit des komplexen Brechungsindex auf die Extinktion durch Aerosolteilchen festgestellt (z.B. Bergstrom, 1973).

Auf Grund der komplexen chemischen Zusammensetzung und der Unsicherheiten des physikalischen Zustandes stratosphärischer Teilchen wird für den entsprechenden komplexen Brechungsindex angenommen, daß stratosphärische Aerosolteilchen hauptsächlich aus Schwefelsäuretröpfchen einer 75% Lösung von H_2SO_4 in H_2O bestehen (Bigg, 1975; Turco et al., 1982). Messungen im Höhenbereich der Aerosolschicht bestätigen diese Annahme (Rosen, 1971), mit der dann m^* nach Palmer und Williams (1975) wellenlängenabhängig angegeben werden kann. Real- und Ima-

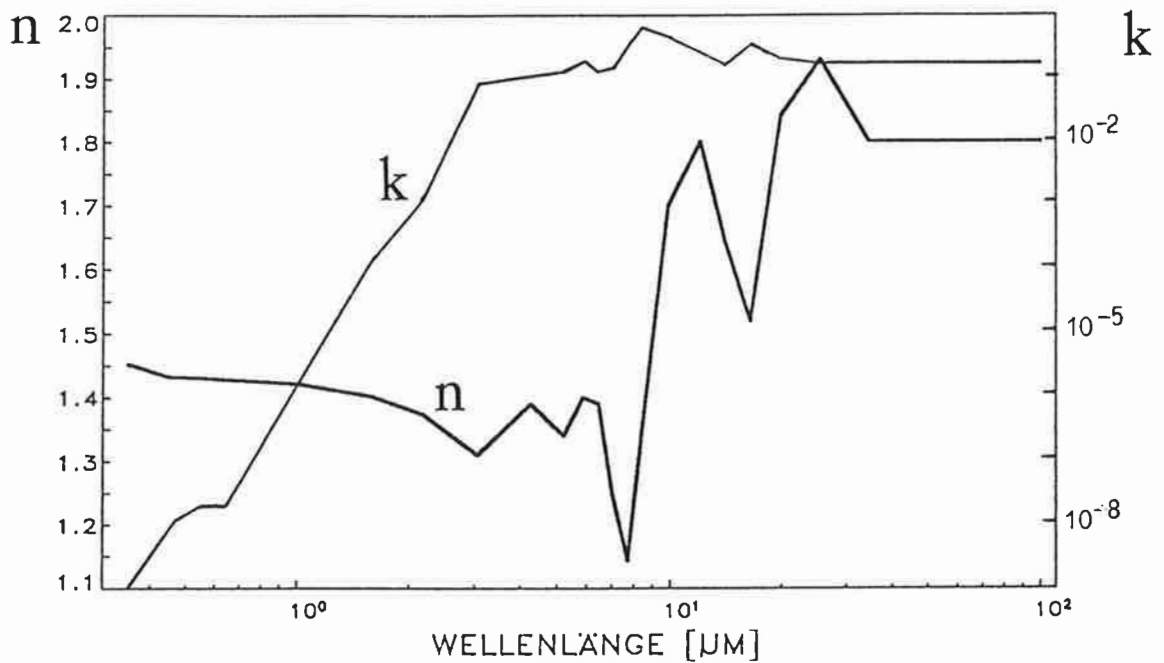


Abbildung 6.1: Wellenlängenabhängigkeit des Realteils n und Imaginärteils k des komplexen Brechungsindex einer 75% wässrigen Schwefelsäurelösung nach Palmer et al. (1975).

ginärteil des in den Rechnungen benutzten m^* sind in Abb. 6.1 wellenlängenabhängig dargestellt. Besonders auffällig ist, daß der Imaginärteil im kurzwelligen Spektralbereich über mehrere Größenordnungen stark ansteigt. Im Langwelligen bleibt k mit relativ hohen Werten um 0.2 nahezu konstant, da für die einzelnen Wellenlängenbereiche ein mittleres k bestimmt wurde.

Mit zunehmendem Mischungsverhältnis von H_2SO_4 ($\geq 75\%$) sind die Veränderungen im Real- und Imaginärteil im kurzwelligen Spektralbereich gemäß der Untersuchung von Palmer et al. (1975) vernachlässigbar. Dagegen treten im infraroten Bereich bei unterschiedlichen Mischungsverhältnissen deutliche Änderungen der spektralen Struktur des Real- und Imaginärteils auf. Die Brechungsindizes von kristallinen Hydraten der H_2SO_4 - deren Auftreten bei den niedrigen Temperaturen in der Stratosphäre bei bestimmten H_2SO_4 -Mischungsverhältnissen entsprechend der Schmelzpunktcurve durchaus möglich ist - oder von Sulfat stimmen im spektralem Verhalten mit dem für H_2SO_4 angegebenen m^* überein (Palmer et al., 1975).

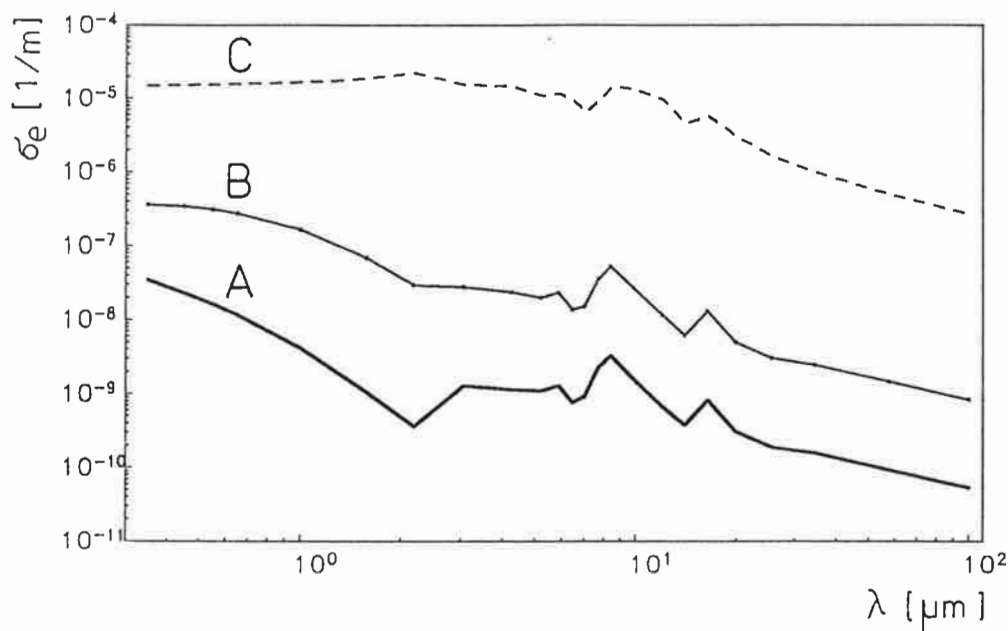


Abbildung 6.2: Extinktionskoeffizienten [m^{-1}] in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ unter Annahme einer ZOL-Größenverteilung für die vulkanisch ungestörte (A) und gestörte (B,C) Stratosphäre. Der charakteristische Parameter der ZOL-Verteilung ist für den Fall (A) $r_m = 0.035 \mu\text{m}$, (B) $r_m = 0.1 \mu\text{m}$ und (C) $r_m = 1.0 \mu\text{m}$. Der komplexe Brechungsindex wurde wellenlängenabhängig angenommen.

Da Aerosolteilchen in der Atmosphäre selten in einer chemisch einheitlichen Zusammensetzung auftreten, wird sich das Absorptionsvermögen in Abhängigkeit von eingelagerten Verunreinigungen bzw. Stoffen verändern. In der Literatur sind für diesen Fall nur vereinzelte Abschätzungen und im wesentlichen wellenlängenunabhängige Daten von m^* zu finden. Für Ammoniumsulfatteilchen leiten Toon et al. (1976) aus eigenen Messungen und Angaben aus der Literatur wellenlängenabhängige Brechungsindizes ab. Im Wellenlängenbereich von 1 bis 3 μm gibt es einige schwache Banden; der Imaginärteil variiert über mehrere Größenordnungen und ist gegenüber dem zuvor gewählten Imaginärteil ungefähr um den Faktor zwei größer. Im infraroten Spektralbereich ist das Absorptionsvermögen kleiner und der Imaginärteil unterscheidet sich von dem der 75%igen Schwefelsäurelösung bis zu einer Größenordnung. Jedoch wird der Fehler des ermittelten Brechungsindex mit bis zu 30% angegeben

(Toon et al., 1976).

Für drei verschiedene stratosphärische ZOL-Größenverteilungen ergeben sich unter Berücksichtigung des oben eingeführten m^* (Abb. 6.1) die in Abb. 6.2 in Abhängigkeit von den charakteristischen Radien r_m abgebildeten wellenlängenabhängigen Extinktionskoeffizienten. Mit zunehmender Wellenlänge nimmt die Aerosolextinktion ab. Die Sprünge in den Funktionsläufen sind nicht reell, sondern durch die für die einzelnen Wellenlängenbereiche gegebenen konstanten, mittleren m^* hervorgerufen.

6.4 Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung

Die Strahlungsübertragungsgleichung wird für eine planparallele Atmosphäre durch die, bei Bakan (1982) und Newiger (1985) ausführlich behandelte Delta-Eddington-Approximation gelöst. An dieser Stelle werden deshalb nur die wesentlichen Merkmale dieser Näherungslösung dargelegt.

Die Lösung kann unter der einfachen Annahme azimutal unabhängigen Strahlungstransportes erfolgen, da für die Untersuchungen nur integrale Größen wie Nettostrahlungsflüsse interessieren. In der Eddington-Näherung wird die azimutal gemittelte Strahldichte in zwei Terme aufgespalten

$$L(\delta, \mu) = L_0(\delta) + \mu L_1(\delta) . \quad (6.9)$$

Die exakte Streufunktion P wird durch eine Näherung, bestehend aus einer Kombination einer winkelabhängigen Funktion und einer δ -Funktion für die Vorwärtsstreuung (Delta-Approximation), ersetzt

$$P(\Theta) = 2f\delta(1 - \cos \Theta) + (1 - f)(1 + 3g' \cos \Theta) . \quad (6.10)$$

f ist der Anteil der Streustrahlung in Vorwärtsrichtung und $g' = g/(1+g)$ bestimmt die Form der Streufunktion. Der Asymmetriefaktor g der tatsächlichen Streufunktion

$$g = \int_{-1}^{+1} P(\Theta) \cos \Theta d(\cos \Theta) \quad (6.11)$$

gibt das Verhältnis von Vorwärts- zu Rückwärtsstreuung.

Das Programm der Strahlungsübertragungsrechnung für die Troposphäre von Bakan (1982), das die Wasserdampf- und CO_2 -Absorption berücksichtigt, wurde für den Einfluß der Aerosolteilchen auf die Strahlungsbilanz und für die Ozonabsorption (siehe dazu auch Kapitel 6.5) erweitert. Die optischen Parameter der Teilchen werden, wie im vorhergehenden Abschnitt näher erläutert, in Abhängigkeit von der Größenverteilung und dem komplexen Brechungsindex nach der MIE-Theorie ermittelt.

Die Wellenlängenintegration erfolgt über 8 Intervalle im solaren Spektralbereich und 16 Intervalle im terrestrischen Bereich. Für jeden dieser Spektralbereiche wird die Transmissionsfunktion des bedeutendsten Absorbergases in eine Summe von e -Reihen, analog zu Yamamoto et al. (1970), entwickelt. Für jeden dieser e -Reihen-Terme wird dann die monochromatische Strahlungsübertragungsgleichung gelöst, und die resultierenden Strahlungsflußdivergenzen werden anschließend summiert. Die Berechnungen werden im Höhenbereich zwischen 60 km und der Erdoberfläche mit einer Höhenauflösung von 2 km durchgeführt. Dazu werden die für die Rechnungen notwendigen Bodenalbeden entsprechend Baumgartner et al. (1976) breitenabhängig und zonal gemittelt vorgegeben. Der Tagesgang der solaren Einstrahlung wird als Funktion der geographischen Breite berücksichtigt. Unter der Annahme, daß die dem Strahlungsfeld zugeführte oder entzogene Energie nur zu einer Änderung der Temperatur führt, ergibt sich die Temperaturänderung aus der Divergenz des mittleren, über den Tag in Stundenschritten integrierten Nettostrahlungsflusses F_{Net}

$$\frac{dT}{dt} = - \frac{1}{\rho c_p} \text{div } F_{Net} \quad , \quad (6.12)$$

wobei ρ die Luftdichte und c_p die spezifische Wärme feuchter Luft bei konstantem Druck p ist.

6.5 Bestimmung der Ozonabsorption

Der Hauptanteil des Ozons (etwa 90%) befindet sich in einer Schicht von ungefähr 20 km Dicke in der unteren und mittleren Stratosphäre (Enquete-Kommission, 1988). In den Strahlungstransportrechnungen ist die stratosphärische Ozonschicht von besonderer Bedeutung, da im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich mehrere Absorptionsbanden des Ozons liegen, die in der Stratosphäre zur Erwärmung beitragen. Deshalb ist die Berücksichtigung der Ozonabsorption durch eine einfache Reduktion der extraterrestrischen Sonnenstrahlung in bestimmten Wellenlängenbereichen, wie sie zur Berechnung der Strahlungsflüsse in der Troposphäre mit Erfolg Anwendung findet, nicht brauchbar.

Bedingt durch die unterschiedliche globale Wirkung photochemischer und dynamischer Prozesse variiert die meridionale und jahreszeitliche Verteilung des Spurengases Ozon stark. Veränderungen in der Masse und vertikalen Verteilung des Ozons wirken sich auf die Temperaturstruktur und Dynamik der Stratosphäre aus. Die für unsere Rechnungen benötigten globalen Felder der Ozonverteilung werden nach einer empirischen Formel (Green, 1964) bestimmt, für die die Ozonschichtdicke und die Höhe des maximalen Ozonmischungsverhältnisses nach vorliegenden Messungen vorgegeben werden.

6.5.1 Globale Ozonverteilung

Die standardisierte vertikale Ozon-Verteilung $[O_3(z)]$ in mittleren Höhen z nach Green (1964) gibt:

$$[O_3(z)] = \frac{O_{3G}}{z_A} \frac{\exp\left(\frac{z-z_{max}}{z_A}\right)}{\left(1 + \exp\left(\frac{z-z_{max}}{z_A}\right)\right)^2} + \frac{O_{3B}}{z_B} \exp\left(\frac{-z}{z_B}\right) \quad (6.13)$$

mit $z_A = 4.68$ km, $z_B = 5.78$ km und $O_{3B} = 0.0127$ cm·atm. Die Ozonschichtdicke O_{3G} [cm·atm·STP] und die Höhe des maximalen Ozonmischungsverhältnisses z_{max}

werden entsprechend vorliegender Messungen aus den Arbeiten von Dütsch (1971, 1978) und Fabian (1987) meridional und jahreszeitlich abhängig in Gleichung (6.13) eingegeben, so daß zwar die prinzipielle Form des Vertikalprofils erhalten, aber jahreszeitliche und meridionale Unterschiede in der globalen Ozonverteilung berücksichtigt werden. Die Abb. 6.3 gibt die zur Berechnung der Ozonverteilung notwendigen Werte der meridional abhängigen O_{3G} .

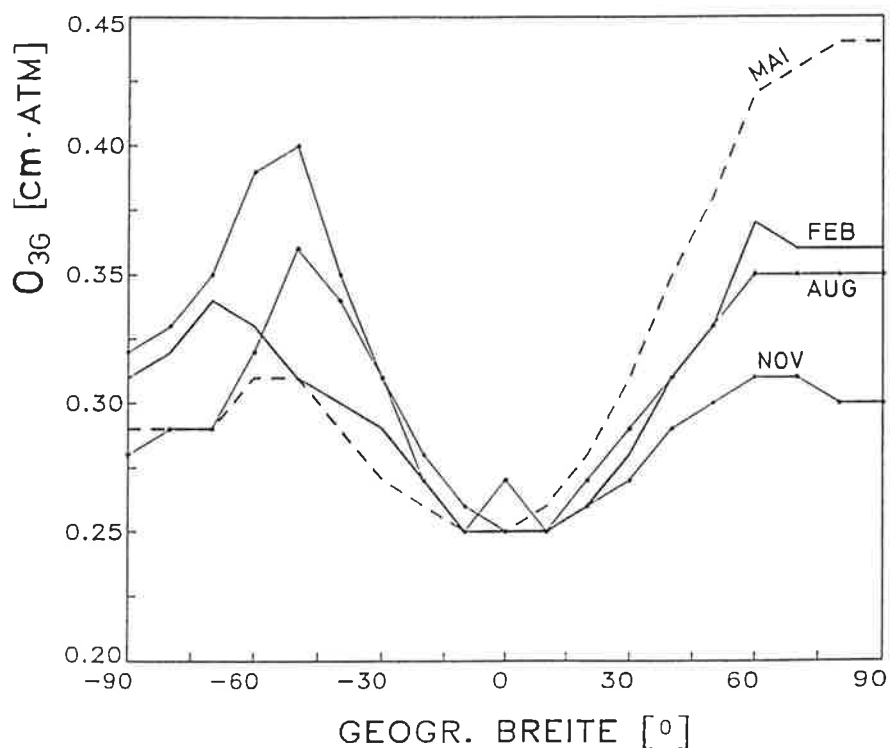


Abbildung 6.3: Meridionale Abhängigkeit der Ozonschichtdicke O_{3G} [cm·atm·STP] für die vier Jahreszeiten (entnommen den Arbeiten von Dütsch (1971, 1978) und Fabian (1987)).

Im tropischen Bereich der oberen Stratosphäre befindet sich das Hauptquellgebiet von Ozon. Mit der allgemeinen Zirkulation wird Ozon polwärts und in niedrigere Höhen gebracht. In den Tropen ist die Ozonschichtdicke nahezu konstant im ganzen Jahr und beträgt 0.25 cm·atm·STP. Mit wachsender Breite nimmt der Gesamtozonbetrag auf der Nordhemisphäre vom Äquator bis zum Pol auf 0.30 bis 0.45 cm·atm·STP je nach Jahreszeit zu, wobei der meridionale Gradient im Spätwinter bis Frühjahr am

größten ist. Auf der südlichen Hemisphäre nimmt die Ozonschichtdicke bis zu einem Maximum von ca. 0.40 cm·atm·STP bei 50° bis 60° S zu und von da bis zum Südpol wieder ab. Diese Asymmetrie zwischen beiden Hemisphären ist dynamisch bedingt.

Seit Mitte der 70er Jahre nimmt das Ozonmischungsverhältnis in der Stratosphäre merklich ab, wobei die Veränderungen des Ozons am stärksten in den Polarregionen ausgeprägt sind. Das sogenannte Ozonloch bezeichnet die deutliche Reduzierung des Minimums der Ozonschichtdicke in polaren südlichen Breiten während des südlichen Frühjahrs. Anhand längerer Meßreihen konnte gezeigt werden, daß über der Antarktis die Oktober-Mittel der Ozonschichtdicke von etwa 320 DU (Dobson- Einheit; 100 DU = 1 mm Ozonschichtdicke reduziert auf Normalbedingungen) im Jahr 1960 auf unter 200 DU 1984 abgenommen hat (Fabian, 1988). Die Ozonschichtdicke der Nordhemisphäre ist im Bereich 30° bis 64°N zwischen 1969 und 1988 um 1.7 bis 3% abgefallen; in der oberen Stratosphäre (bei etwa 40 km Höhe) hat seit 1979 die Ozonkonzentration global um 3 bis 9% abgenommen (Enquete-Kommission, 1988).

Die meridionale Abhängigkeit von z_{max} variiert zwischen 17 km über polaren Breiten und 26 km über dem Äquatorgebiet (Dütsch, 1978).

6.5.2 Ozonabsorption

Ozon absorbiert hauptsächlich zwischen 0.22 und 0.32 μm (Hartley-Bande), 0.30 bis 0.34 μm (Huggins-Bande) und im Sichtbaren zwischen 0.4 und 0.75 μm (Chappius-Banden). Im langwelligen Spektralbereich sind die im atmosphärischen Fenster liegenden Rotations-Schwingungsbanden zwischen 9.2 und 10 μm für die Strahlungstransportprozesse wichtig.

In dem vorliegenden Strahlungsübertragungsmodell wird die Ozonabsorption im ultravioletten Bereich nach Lacis und Hansen (1974) parameterisiert. Danach beträgt die Ozonabsorption α_{O_3} in Abhängigkeit von der Absorbermenge $[O_3]$ (in cm·atm bei STP)

$$\alpha_{O_3} = \frac{1.082[O_3]}{(1 + 138.6[O_3])^{0.805}} + \frac{0.0658[O_3]}{1 + (103.6[O_3])^3} \quad (6.14)$$

Im sichtbaren und langwelligen Spektralbereich wird die Ozonabsorption über die optische Dicke mit den entsprechenden wellenlängenabhängigen Absorptionskoeffizienten berechnet. Für die Ozonbanden im Langwelligen gibt Kondratyev (1969) einen mittleren Absorptionskoeffizienten σ_a von 0.5 cm^{-1} bei STP. Die Druck- und Temperaturabhängigkeit des Koeffizienten wird durch

$$\sigma_a = \sigma_a(p_0, T_0) \left(\frac{p}{p_0}\right)^{0.4} \left(\frac{T_0}{T}\right)^{0.2} \quad (6.15)$$

beschrieben (Bakan et al., 1988).

7 Verwendete Eingabeparameter

Die meteorologischen Parameter in der Stratosphäre werden durch die Wechselwirkung zwischen Strahlungstransporten, dynamischen und chemischen Prozessen beeinflusst. Der im Modell verwendete Datensatz für die vier Jahreszeiten wurde von Crutzen (1975, 1985) übernommen.

Die meteorologischen Daten liegen in Breitenabständen von 10° vor. In der Vertikalen stehen für die Stratosphäre 18 Schichten bis 41 km Höhe zur Verfügung. Die Anpassung der Daten an die Modellgitterpunkte erfolgt in ϕ - und z -Richtung durch lineare Interpolation.

Die benutzten Eingabeparameter werden im Anhang dargestellt. Dabei bezeichnet Februar den Zeitraum des Nordwinters von November bis Februar, April den Zeitraum März-April, August die Zeitspanne des Nordsummers von Mai bis August und Oktober den Zeitraum September-Oktober.

7.1 Diffusionskoeffizienten

Die von Crutzen vorgegebenen Diffusionskoeffizienten sind so gewählt, daß eine gute zeitliche und räumliche Übereinstimmung zwischen beobachteten und mit Ausbreitungsmodellen berechneten Verteilungen von Ozon, CO_2 , Wasserdampf und radioaktiven Substanzen besteht.

Die horizontale Komponente des Diffusionstensors K_{yy} (im Anhang Abb. I) hat ihr Maximum jeweils in der Winterhemisphäre. Im Nordwinter liegt das Maximum der K_{yy} -Werte ($26 \cdot 10^5 \text{ m}^2/\text{s} > K_{yy} > 16 \cdot 10^5 \text{ m}^2/\text{s}$) bei 40° N ; im Südwinter ($20 \cdot 10^5 \text{ m}^2/\text{s} > K_{yy} > 14 \cdot 10^5 \text{ m}^2/\text{s}$) bei 45° S , wobei die größeren Werte unterhalb der Tropopause zu finden sind. Oberhalb der Tropopause sind die Werte höhenkonstant.

Die vertikale Komponente K_{zz} (Anhang II) zeigt maximale Werte ($\simeq 10 \text{ m}^2/\text{s}$) für den

Zeitraum Dezember-Februar zwischen 30° S und 5° N im unteren Modellgebiet. Im Juni-August verlagert sich die Zone starken vertikalen Austauschs in geographische Breiten von 10° S bis 30° N. In der Verteilung von K_{zz} ist die Höhe der Tropopause sichtbar, die über dem Äquator in ungefähr 17 km Höhe liegt und deren Höhe zu den Polen auf 7 bis 9 km Höhe abnimmt.

Die nichtdiagonalen Terme des Diffusionstensors K_{yz} und K_{zy} sind berücksichtigt, aber von geringerer Bedeutung für den Aerosoltransport und daher im Anhang nicht aufgeführt.

7.2 Windkomponenten

Die meridionalen und vertikalen Windkomponenten zeigen die Zellenstruktur des mittleren Bewegungsfeldes. Die horizontale Komponente der Advektion v ist positiv in Richtung Norden und die Vertikalkomponente w positiv nach oben definiert.

Das Maximum der Horizontaladvektion ($|v| \simeq 2$ m/s) im unteren Modellgebiet (Anhang III) finden wir in der winterlichen Subtropenregion. Für Dezember-Februar liegt das maximale nach Norden gerichtete v bei 5° bis 20° N; für Juni-August mit entgegengesetztem Vorzeichen bei 0° bis 10° S. Die maximalen Werte in der oberen Stratosphäre sind durch den Strahlstrom in ca. 65 km Höhe bedingt.

Der aufsteigende Ast der Vertikalbewegung w fällt mit der innertropischen Konvergenzzone zusammen (Anhang IV). In der oberen Stratosphäre treten maximale $|w|$ von $1.2 \cdot 10^{-4}$ m/s auf.

7.3 Temperatur und Feuchte

Für die Berechnung der Parameter für die Gas-Teilchen-Umwandlung und der Strahlungsflüsse werden das Temperatur- und Feuchtefeld benötigt (Anhang V und VI).

Das Temperaturminimum ($\simeq 200$ K) im Äquatorgebiet liegt in Tropopausenhöhe. Mit zunehmender Höhe steigt die Temperatur bis $\simeq 270$ K im oberen Modellgebiet an. In der mittleren Stratosphäre treten über dem winterlichen Südpol um 10 bis 20 K geringere Temperaturen als im Winter über dem Nordpol auf.

Stratosphärische Feuchtemessungen sind auf Grund der niedrigen Werte im Bereich der Meßgenauigkeit schwierig. In der Literatur werden Massenmischungsverhältnisse von Wasserdampf im Bereich zwischen $2 \cdot 10^{-6}$ bis $6 \cdot 10^{-6}$ g/g mit einem Minimum einige Kilometer oberhalb der Tropopause angegeben (WMO, 1981). Der Anstieg des Massenmischungsverhältnisses in der oberen Stratosphäre ist durch die Methanoxidation bedingt, durch die Wasserdampf als Endprodukt produziert wird.

7.4 Konzentration der *OH*-Radikale

Die Berechnung der Oxidationsprozesse der schwefelgebundenen Gase zu Sulfat setzt die Konzentration der Hydroxyl-Radikale (*OH*) voraus. Da kaum Messungen des *OH*-Radikals vorliegen, werden globale *OH*-Verteilungen mit Hilfe von photochemischen Transportmodellen berechnet (z.B. Fabian, 1987). In dieser Arbeit wurden die berechneten Daten von Crutzen (1975, 1985) für die einzelnen Jahreszeiten übernommen und auf das Modellgitter interpoliert. Die *OH*-Dichteverteilung [molec/m^3] für die vier Jahreszeiten ist im Anhang VII zu finden.

8 Ergebnisse des Transportmodells

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse des zweidimensionalen Transportmodells für Aerosolteilchen und Schwefelkomponenten (CO_2 , SO_2 und H_2SO_4) vorgestellt.

Da klimatologische Mittel für die vier Jahreszeiten (Kap.7) vorliegen, werden die Berechnungen im Jahreslauf November-Februar (Nordwinter), März-April (Nordfrühjahr), Mai-August (Nordsommer) und September-Oktober (Nordherbst) durchgeführt. Die Umstellung auf die stratosphärischen Winter- bzw. Sommerbedingungen erfolgt in einer Übergangsphase von zwei Monaten. Für alle Rechnungen wird ein Zeitschritt von einer Stunde verwendet, wobei die meteorologischen Eingangsparameter zeitlich interpoliert werden.

Die Ausgabe der Ergebnisse erfolgt jeweils am Ende der Jahreszeit (die Bezeichnung Januar steht für den Nordwinter; April - Nordfrühjahr; Juli - Nordsommer; Oktober - Nordherbst).

Nach der Beschreibung der Ergebnisse für die vulkanisch ungestörte Stratosphäre in Kapitel 8.1 wird im Kapitel 8.2 die Wirksamkeit der im Modell berücksichtigten Quell- und Senkenprozesse näher untersucht. Kapitel 8.3 beschäftigt sich im weiteren mit dem Einfluß von Vulkanaktivitäten auf die Teilchenzahldichten der Stratosphäre.

8.1 Vulkanisch ungestörte Bedingungen

In diesem Abschnitt werden die Teilchenzahldichten (cm^{-3}) für Sulfataerosole sowie die Mischungsverhältnisse von SO_2 in ppbv (Volumenmischungsverhältnis), CO_2 (ppbv) und H_2SO_4 (ppbv) in Abhängigkeit von der Höhe und geographischen Breite in Zeiten ohne Vulkanaktivitäten diskutiert. Die Ergebnisse der Simulationen der einzelnen Komponenten werden für die vier Jahreszeiten im Anschluß an den Textteil dieses Kapitels dargestellt. Grundlage dieser Berechnungen bilden die Teilchen- und Massenflüsse natürlicher und anthropogener Quellen, wie sie aus den Ergebnis-

sen des troposphärischen Modells resultieren und im Kapitel 3.3 wiedergegeben werden. In dem Transportmodell werden sämtliche, in dem Übersichtsschema Abb. 2.2 aufgeführten und im Theorieteil quantitativ beschriebenen Prozesse berücksichtigt. Nähere Bemerkungen erfolgen zu den entsprechenden Untersuchungen.

Die folgenden Ergebnisse der vulkanisch ungestörten Stratosphäre beziehen sich auf den nach 6 Jahren Integrationszeit erreichten quasistationären Zustand. Danach sind die Änderungen der Konzentrationen aller betrachteten Komponenten von Jahr zu Jahr in gleichen Jahreszeiten kleiner als 1%.

8.1.1 Globale Verteilung der Teilchenzahldichten

Die Abb. 8.1 bis 8.3 (Seite 72 bis 74) zeigen die Teilchenzahldichten als Funktion der geographischen Breite und der Höhe für die Teilchen der Klasse 1 (mittlerer Radius $\bar{r} = 0.015 \mu\text{m}$), der Klasse 2 ($\bar{r} = 0.15 \mu\text{m}$) und der Klasse 3 ($\bar{r} = 2.85 \mu\text{m}$) in den vier Jahreszeiten. Dabei werden unterschiedliche Einheiten gebraucht, die in den Legenden jeweils angegeben sind.

Größenklasse 1

Die Teilchenzahldichte Klasse 1 ist im Modellgebiet während des Nordwinters und -frühjahres deutlich höher (6 bis 11 cm^{-3}) als in Zeiten des Nordsummers und -herbstes (2 bis 5 cm^{-3}). Diese Tatsache wird im wesentlichen durch den erhöhten winterlichen Eintrag über der Nordhemisphäre aus der Troposphäre (vergl. auch Abb. 3.3) bedingt, worauf auch das Maximum zwischen 30° N und dem Nordpol vom unteren Gitterrand bis zur Tropopausenhöhe hindeutet.

In allen Jahreszeiten nimmt die Teilchenzahldichte in der mittleren und oberen Stratosphäre mit der Höhe von 3 bis 4 cm^{-3} auf 5 bis 6 cm^{-3} zu. Zurückzuführen ist dies auf den Einfluß der Gas-Teilchen-Umwandlung, die mit der Zunahme des H_2SO_4 -Mischungsverhältnisses mit der Höhe (siehe Abb. 8.6) eine hohe Teilchenbildungsrate

erreicht. Eine Vernachlässigung der Gas-Teilchen-Umwandlung hätte beispielsweise im globalen Mittel in 35 km Höhe im Nordwinter eine Teilchenzahlreduktion um 52 % zur Folge.

Ein Vergleich der Modellaussagen mit den Ergebnissen einzelner Messungen kann grundsätzlich immer nur mit großen Vorbehalten durchgeführt werden, da die Modelle stets mittlere Verhältnisse der Atmosphäre beschreiben. Die tatsächlich während einer Messung angetroffenen Einflußgrößen wie *OH*-Konzentration, Wolken und Niederschlagsprozesse, vor allem aber die atmosphärischen Transportvorgänge können im Einzelfall sehr stark von den Modellannahmen abweichen. Der Vergleich wird oft zusätzlich erschwert, da die Aerosolmessungen bedingt durch unterschiedliche Meßmethoden in verschiedenen Größeneinteilungen vorliegen, die häufig von der hier gewählten Klasseneinteilung abweichen.

Nach den Messungen von Junge und Mitarbeitern (1961) lieferten in den 70er Jahren global verteilte Ballon- und Flugzeugsondierungen einen Einblick in meridionale und jahreszeitliche Konzentrationsverteilungen der Aerosolteilchen (z.B. Hamill et al., 1977; Rosen et al., 1975; Käselau et al., 1974, Bigg, 1976; Farlow et al., 1979; Hofmann et al., 1975). Aus den Daten ist erkennbar, daß die Teilchenzahldichten kleiner Teilchen ($r < 0.1 \mu\text{m}$) in Höhen von ungefähr 9 km bis etwa 15 km rasch auf Grund effektiver Koagulation während des Transportes abnehmen. Die hier berechneten Teilchenzahldichten der Klasse 1 sind im Vergleich zu den Einzelmessungen nicht unrealistisch, wenn man bedenkt, daß die Einzelmessungen eine weite Streubreite durch die Raum- und Zeitabhängigkeit der Aerosolteilchen aufweisen. In einer Höhe von 25 km beispielsweise liegen die Messungen im Bereich von 10 bis 1000 Teilchen/mg Luft. Das Modell simuliert globale Mittelwerte jahreszeitabhängig zwischen 120 bis 160 Teilchen/mg Luft in dieser Höhe.

Fast alle Messungen, die meist nur bis zu einem Höhenbereich zwischen 20 bis 25 km vorliegen, zeigen übereinstimmend eine deutlich Abnahme der Aerosolteilchen mit der Höhe. Nur Einzelmessungen von Käselau et al. (1974), Rosen et al. (1980) und Hofmann et al. (1983), die auch größere Höhen erreichen, zeigen eine Tendenz der

Teilchenzunahme oberhalb von 20 bis 25 km Höhe entsprechend unseren Ergebnissen.

Messungen der Aitkenkerne ($r < 0.1 \mu\text{m}$) von Rosen et al. (1978), die in den Jahren 1976 und 1977 mit schwacher Vulkanaktivitäten erfolgten, geben einen guten Überblick über die geographische Abhängigkeit der Teilchenzahlen. Die modellierten Werte in mittleren und hohen Breiten im Höhenbereich zwischen 15 bis 25 km stimmen damit nahezu überein. Allerdings weichen die Modellergebnisse vom unteren Gitterrand bis zum Tropopausenniveau insbesondere im äquatorialen Bereich deutlich (im globalen Mittel um Faktor 10) von den zahlreichen Einzelmessungen ab. Vermutliche Gründe dafür sind einerseits die Vernachlässigung von Wolken im Modell, insbesondere der hochreichenden Cumulonimben in äquatorialen Breiten, die Teilchen bis in große Höhen befördern. Andererseits beeinflussen auch nur geringe Vulkanaktivitäten im troposphärischen Bereich die gemessenen Teilchenzahlen, so daß keine wirklich ungestörte Atmosphäre vorliegt. Die bisher vorgestellten Simulationen wurden jedoch ohne jegliche vulkanische Quellen vorgenommen.

Gänzlich unberücksichtigt bleibt bisher im Modell die anthropogene Teilchenquelle durch die Kraftstoffverbrennung der Flugzeuge. Unter der Annahme von Monin (1986), daß der Treibstoff 0.1% Schwefel enthält und global Stratosphärenflüge mit $1.5 \cdot 10^6$ Flugstunden im Jahr (Bezugsjahr ist 1990) stattfinden, wird der dadurch in die Stratosphäre eingebrachte SO_2 -Anteil auf eine jährliche Menge von $1 \cdot 10^5$ t/Jahr geschätzt. Diese Quelle beeinflusst die Teilchenzahldichte besonders bis zum Höhenbereich der Tropopause - ein weiterer möglicher Grund für die Abweichung der Modellergebnisse von den Messungen.

Größenklasse 2

Die Verteilung der Teilchenzahldichte der Teilchenklasse 2 (Abb. 8.2 auf Seite 73) in der Stratosphäre ist geprägt von einer Schicht höherer Dichte (0.15 bis 0.19 Teilchen/cm³) mit dem Maximum zwischen 18 km Höhe über hohen Breiten und 22 km über dem Äquatorgebiet. Diese Teilchenschicht, nach ihrem Entdecker auch *Junge-Schicht* genannt, bleibt räumlich und zeitlich relativ stabil; geringfügig höhere

Werte der Teilchenzahldichten der Klasse 2 im Nordwinter und -frühjahr werden durch den in diesem Zeitraum höheren troposphärischen Eintrag verursacht.

Mit zunehmender Höhe nimmt die Teilchenzahldichte rasch bis zu einem Wert von 0.01 cm^{-3} am oberen Gitterrand ab. In diesem Teilchengrößenbereich dominiert als Teilchensenke die Sedimentation, deren Bedeutung mit größeren Höhen bedingt durch die ansteigende Sedimentationsgeschwindigkeit zunimmt. Im globalen Mittel werden in zum Beispiel 35 km Höhe 25 % weniger Teilchen/ cm^3 unter Berücksichtigung der Sedimentation als gegenüber der Vernachlässigung dieses Senkenprozesses erzielt. Unterhalb von 20 km verliert die Sedimentation an Einfluß.

Im Vergleich mit lokalen Messungen von Teilchen im Radienbereich 0.1 bis $1.0 \mu\text{m}$ geben die Simulationen zwar die vertikale Struktur insbesondere auch die Höhe des Maximums übereinstimmend wieder, jedoch sind die berechneten Konzentrationen um einen Faktor 2 bis 5 geringer als die gemessenen (z.B. Rosen et al., 1975; Hofmann et al., 1975). Auch hier ist allerdings wieder zu berücksichtigen, daß diese Berechnungen völlig ungestörte Bedingungen voraussetzen und ein Vergleich mit lokalen Meßwerten ohnehin nur einschränkt möglich ist. Eine bessere Übereinstimmung hingegen besteht mit den früheren Messungen von Junge et al. (1961), die in eine Periode geringer Vulkanaktivität fielen. Ein Vergleich der von Hofmann et al. in den Jahren 1978 bis 1980 durchgeführten Aerosolmessungen (Hofmann et al., 1980) mit denen von Junge et al. (1961) zeigt, daß die stratosphärische Aerosolkonzentration ($r \geq 0.15 \mu\text{m}$) während der letzten 20 Jahre mit einer geschätzten Rate von 9% pro Jahr, hauptsächlich durch den erhöhten anthropogenen Eintrag hervorgerufen, zugenommen hat.

Größenklasse 3

Zur Vervollständigung der Ergebnisse werden der Teilchenzahldichten der Klasse 3 in Abb. 8.3 (Seite 74) dargestellt. Sie haben jedoch für die ungestörte Stratosphäre eine untergeordnete Bedeutung, da sie auf Grund hoher Sedimentationsgeschwindigkeiten schnell aus dem betrachteten Bereich entfernt werden. Lediglich im unteren

Modellgebiet treten höhere Dichten von November bis April durch den erhöhten troposphärischen Eintrag über der Nordhemisphäre und im Zeitraum Mai bis Oktober über äquatorialen Breiten auf Grund stärkerer vertikaler Transporte auf.

8.1.2 Globale Verteilung der Schwefelkomponenten

Carbonylsulfid

Als dominante, für die Entstehung der stratosphärischen Sulfatschicht in ungestörten Zeiten wichtige gasförmige Schwefelverbindung gilt in der Stratosphäre *COS* (Abb. 8.4, Seite 75) (Crutzen, 1976; Turco et al., 1980). Mit maximalen Werten von 400 bis 600 pptv zwischen 18 und 26 km Höhe bildet *COS* durch die chemische und photochemische Umwandlung eine wesentliche Quelle von SO_2 in der Stratosphäre. Bedingt durch die starke Höhenzunahme des atomaren Sauerstoffs bzw. der Zahl der *OH*-Radikale (Crutzen et al., 1983) gewinnt der *COS*-Abbau entsprechend der Reaktion (4.5) bzw. (4.9) mit der Höhe an Bedeutung und führt zu einer raschen Abnahme des *COS*-Mischungsverhältnisses im oberen Modellgebiet. Meridionale Unterschiede im Mischungsverhältnis treten kaum auf; nur in der oberen Stratosphäre wird der jahreszeitabhängige Einfluß der Photodissoziation sichtbar. Gleiche Mischungsverhältnisse treten in höheren sommerlichen Breiten in geringeren Höhen als in höheren winterlichen Breiten auf, da die Dissoziationsraten bedingt durch die größere sommerliche Einstrahlung höher sind.

COS-Messungen von Inn (1979) und Inn et al. (1981) über der Nordhemisphäre ergeben zwar mit unseren Rechnungen durchaus vergleichbare maximale Werte von 400 bis 550 pptv, jedoch liegt die Höhen des Maximum bei 20 bis 23 km weitaus niedriger. Oberhalb dieser Höhe nimmt das Mischungsverhältnis mit der Höhe stark ab, so daß in 30 km in guter Übereinstimmung mit den Rechnungen nur noch 10 bis 20 pptv gemessen werden. Auch Turco et al. (1979) findet mit seinem eindimensionalen Modell maximale Werte des *COS*-Mischungsverhältnisses etwas oberhalb der Tropopause. Der Grund für die markante Abweichung in der *COS*-Vertikalstruktur wird in der Vernachlässigung des stratosphärischen Entstehungsprozesses von *COS*

im Transportmodell vermutet. Durch Oxidations- und Photooxidationsprozesse des Carbondisulfids (CS_2) wird in der Troposphäre bis wenige Kilometer oberhalb der Tropopause COS gebildet, so daß in diesem Höhenbereich höhere COS -Mischungsverhältnisse zu erwarten sind.

Schwefeldioxid

Die mit dem Transportmodell berechneten Verteilungen der SO_2 -Mischungsverhältnisse sind für die vulkanisch ungestörte Stratosphäre in Abb. 8.5 (Seite 76) dargestellt. Oberhalb der Sulfatschicht bildet sich zwischen 24 und 30 km Höhe eine Schicht maximalen SO_2 -Mischungsverhältnisses mit Werten von 8 bis 20 pptv aus, wobei die insgesamt höheren Werte von November bis April zu finden sind. Da SO_2 in der Troposphäre mit der Höhe durch effektive homogene und heterogene Abbauprozesse rasch abnimmt, kann die deutliche Zunahme des Mischungsverhältnisses oberhalb der Tropopause, nur mit dem Auftreten lokaler stratosphärischer Quellen erklärt werden. Diese Zunahme steht in Übereinstimmung mit den Messungen von Meixner (1984). Den wesentlichen Beitrag zum stratosphärischen SO_2 -Inhalt liefert, wie bereits zuvor beschrieben, die Oxidation des COS .

Die meridionale Verteilung der SO_2 -Schicht weist jahreszeitliche Unterschiede auf. Innerhalb der Schicht treten über äquatorialen Breiten relativ geringe SO_2 -Werte auf; die Maxima liegen über mittleren bis hohen Breiten. Wir finden die höchsten Mischungsverhältnisse während des Jahres im April über südlichen polaren Breiten bedingt durch niedrige OH -Dichten, die die Reaktionsfähigkeit des SO_2 eingeschränken und damit nur verhältnismäßig wenig zu Schwefelsäure oxidieren. Im Januar wird über der Südhemisphäre SO_2 besonders effektiv photochemisch abgebaut.

In der winterlichen Nordhemisphäre steigt das Mischungsverhältnis auf bis zu 30 pptv in mittleren Breiten im unteren Modellgebiet durch die Diffusion aus der Troposphäre an. Das so eingebrachte, vorwiegend anthropogen erzeugte SO_2 wird durch Transportprozesse auch in höhere Schichten verfrachtet (siehe Abb. 8.5, Januar) und trägt zusätzlich zur SO_2 -Schicht bei. Messungen von Meixner et al. (1981) über der Nor-

hemisphäre zeigen in Tropopausenhöhe ähnliche Werte (10 bis 50 pptv).

In den Abbildungen von Juli und Oktober wird ein weiteres Maximum über dem Äquatorgebiet auf Grund hoher vertikaler Austauschprozesse mit der Troposphäre sichtbar. Oberhalb von 30 km nimmt das SO_2 -Mischungsverhältnis rapide ab, da SO_2 infolge der Zunahme der Temperatur und des OH -Mischungsverhältnisses mit der Höhe effektiv abgebaut wird. Eine weitere Senke in der oberen Stratosphäre ist die SO_2 -Photodissoziation, die zum Teil durch den SO_2 -Gewinn aus den photochemischen Reaktionen von COS und H_2SO_4 (Reaktionsgleichungen (4.2) und (4.3)) ausgeglichen wird.

Schwefelsäure

Die Verteilungen der H_2SO_4 -Mischungsverhältnisse, die für die Entstehung der Sulfatschicht von besonderem Interesse sind, werden in Abb. 8.6 (Seite 77) wiedergegeben. Da die Reaktionsschritte zur Bildung von H_2SO_4 noch nicht vollständig bekannt sind, wird im Transportmodell lediglich die Oxidation des SO_2 durch Hydroxyl-Radikale (Reaktion (4.11)) als eine in situ Quelle von H_2SO_4 berücksichtigt. Diffusive Transporte von H_2SO_4 aus der Troposphäre bleiben auf Grund geringer H_2SO_4 -Lebenszeit ($\simeq 12$ Stunden) unberücksichtigt.

Oberhalb von 25 bis 28 km Höhe und damit oberhalb der Schicht maximalen SO_2 -Mischungsverhältnisses nimmt das H_2SO_4 -Mischungsverhältnis deutlich bis zu einem Maximum von 120 bis 200 pptv in einer Höhe von 30 bis 35 km zu. In diesem Höhenbereich werden wegen der ansteigenden Zahl der OH -Radikale und der mit der Höhe zunehmenden Temperatur relativ hohe SO_2 -Abbauraten (wie bereits auch in Abb. 4.1 gezeigt) erzielt. Mit abnehmender Höhe und damit unter geringeren OH -Werten reagiert SO_2 nicht so stark; das Modell liefert geringere H_2SO_4 -Mischungsverhältnisse in der unteren Region des Modellgitters. Außerdem wird H_2SO_4 besonders in diesem Höhenbereich durch die Gas-Teilchen-Umwandlung abgebaut. Bis zur Tropopause wird H_2SO_4 des weiteren effektiv durch die Senkewirkung des 'washout' entfernt. Die großen Gradienten im Mischungsverhältnis am

oberen Modellrand über den winterlichen Polgebieten werden durch den minimalen photochemischen Abbau hervorgerufen.

Messungen der H_2SO_4 -Konzentration wurden bisher nur vereinzelt durchgeführt, da H_2SO_4 durch heterogene Prozesse beeinflusst wird, was die Meßmethodik erschwert. Grundsätzlich zeigt sich in den gemessenen Profilen (Arnold et al., 1980; Viggiano et al., 1981) ein deutlicher H_2SO_4 -Anstieg zwischen 27 und 34 km Höhe mit Größenordnungen von 10^5 auf 10^7 Moleküle H_2SO_4/cm^3 , welche durchaus gut mit unseren Modellergebnissen übereinstimmen. Dieser drastische Anstieg der Konzentration von H_2SO_4 oberhalb von 27 km verläuft parallel mit dem auf Grund ansteigender Temperatur ebenfalls ansteigenden Sättigungsdampfdruck der H_2SO_4 . Somit können mit starken Temperaturschwankungen, wie sie bei stratosphärischen Erwärmungen in mittleren Breiten zu finden sind, auch die H_2SO_4 -Konzentrationen stark variieren (Arnold et al., 1983).

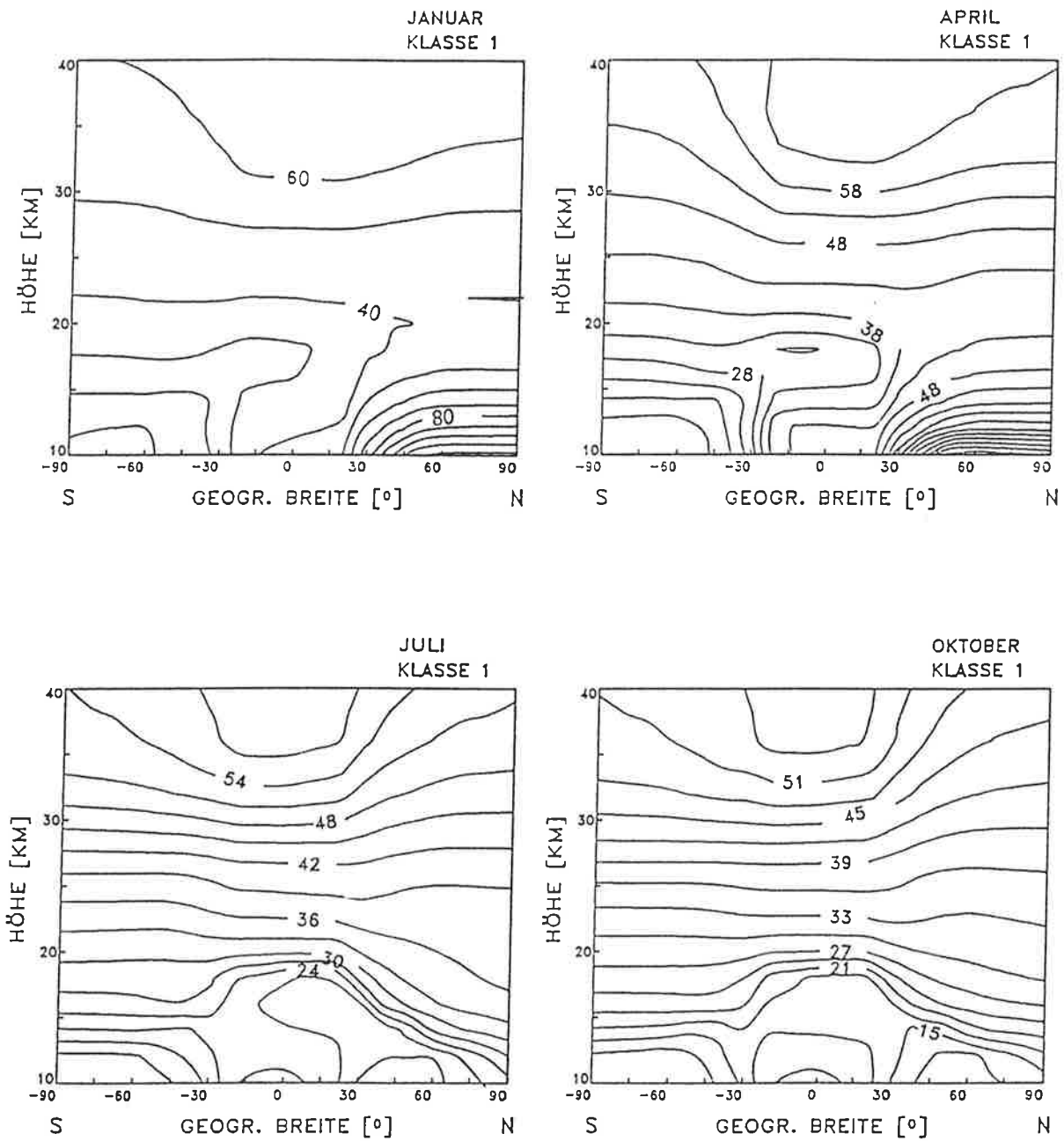


Abbildung 8.1: Teilchenzahldichte [10^{-1}cm^{-3}] für Teilchen der Klasse 1 ($\bar{r} = 0.015 \mu\text{m}$) für die vier Jahreszeiten unter vulkanisch ungestörten Bedingungen.

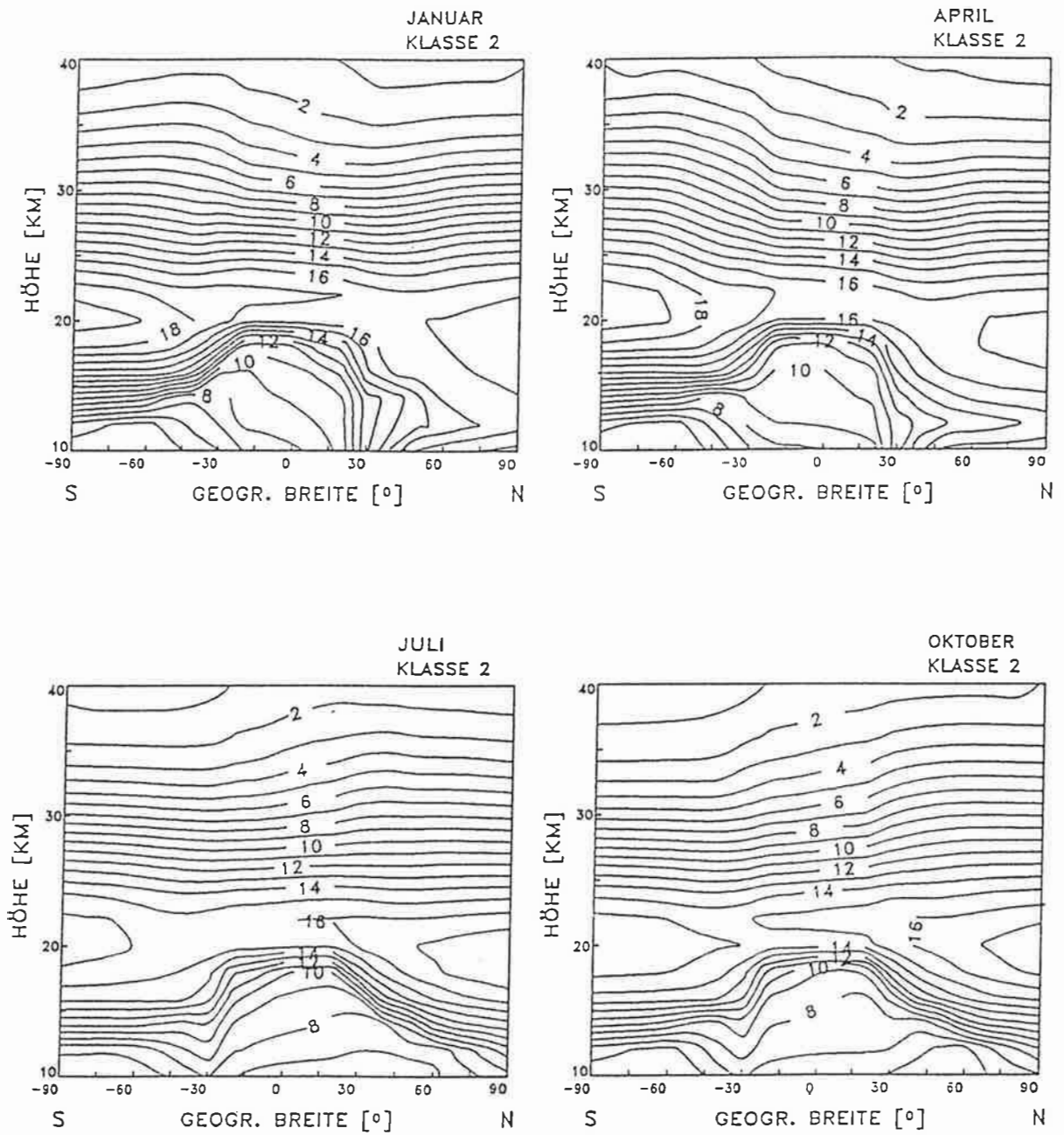


Abbildung 8.2: Teilchenzahldichte [10^{-2}cm^{-3}] für Teilchen der Klasse 2 ($\bar{r} = 0.15 \mu\text{m}$) für die vier Jahreszeiten unter vulkanisch ungestörten Bedingungen.

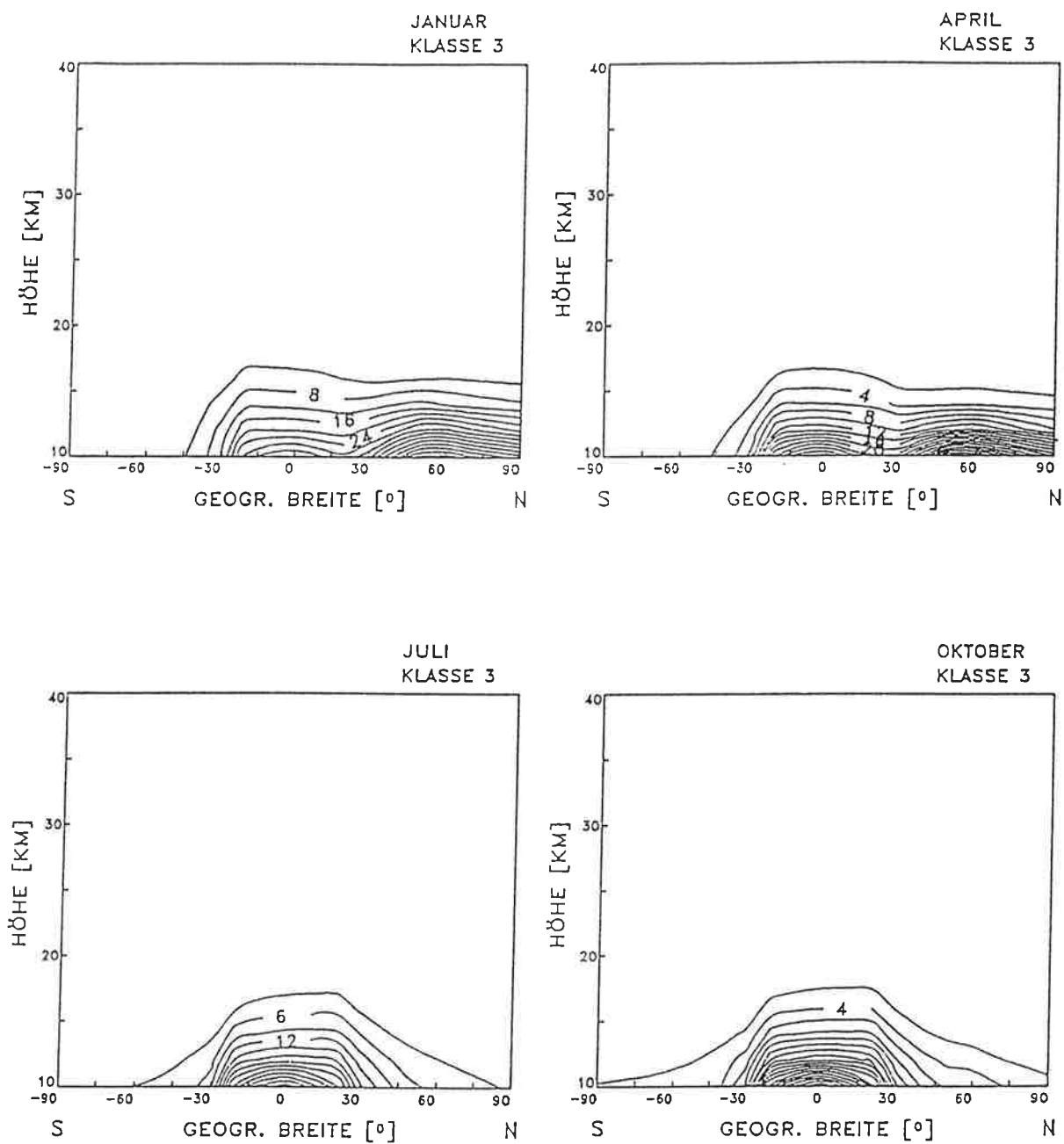


Abbildung 8.3: Teilchenzahldichte [10^{-8}cm^{-3}] für Teilchen der Klasse 3 ($\bar{r} = 2.85 \mu\text{m}$) für die vier Jahreszeiten unter vulkanisch ungestörten Bedingungen.

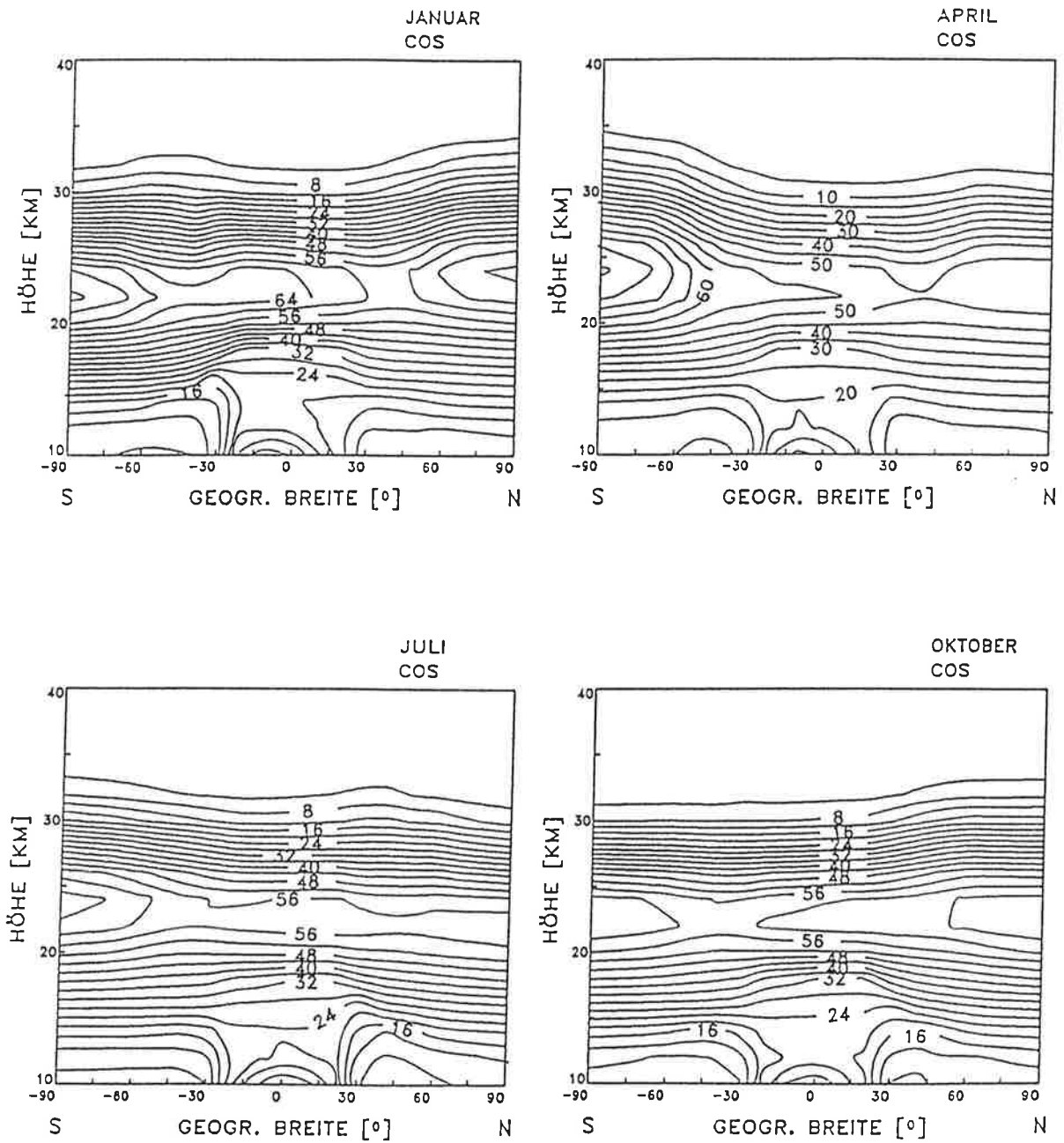


Abbildung 8.4: Mischungsverhältnis [10^{-2} ppbv] für *COS* für die vier Jahreszeiten unter vulkanisch ungestörten Bedingungen.

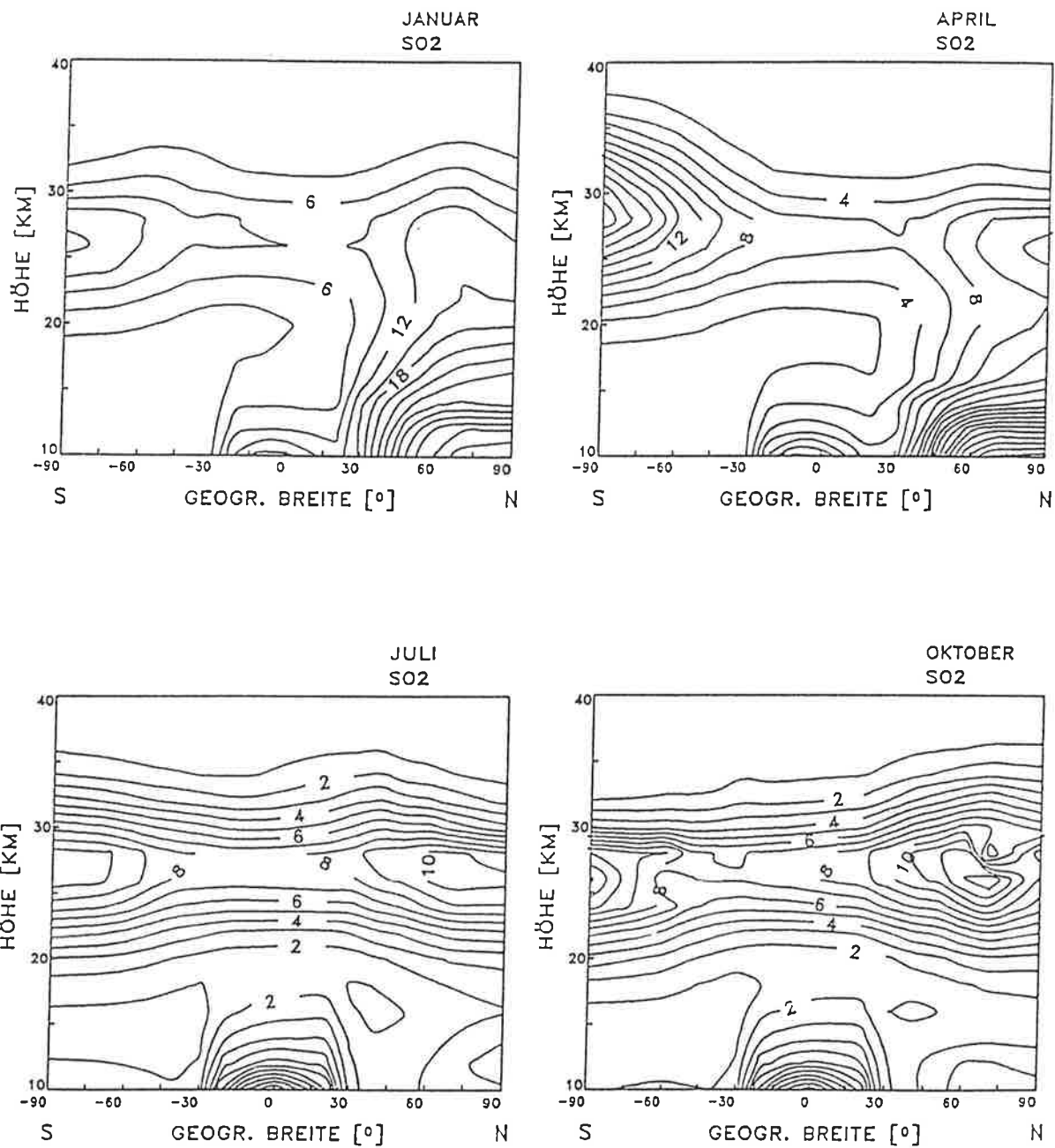


Abbildung 8.5: Mischungsverhältnis [pptv] für SO_2 für die vier Jahreszeiten unter vulkanisch ungestörten Bedingungen.

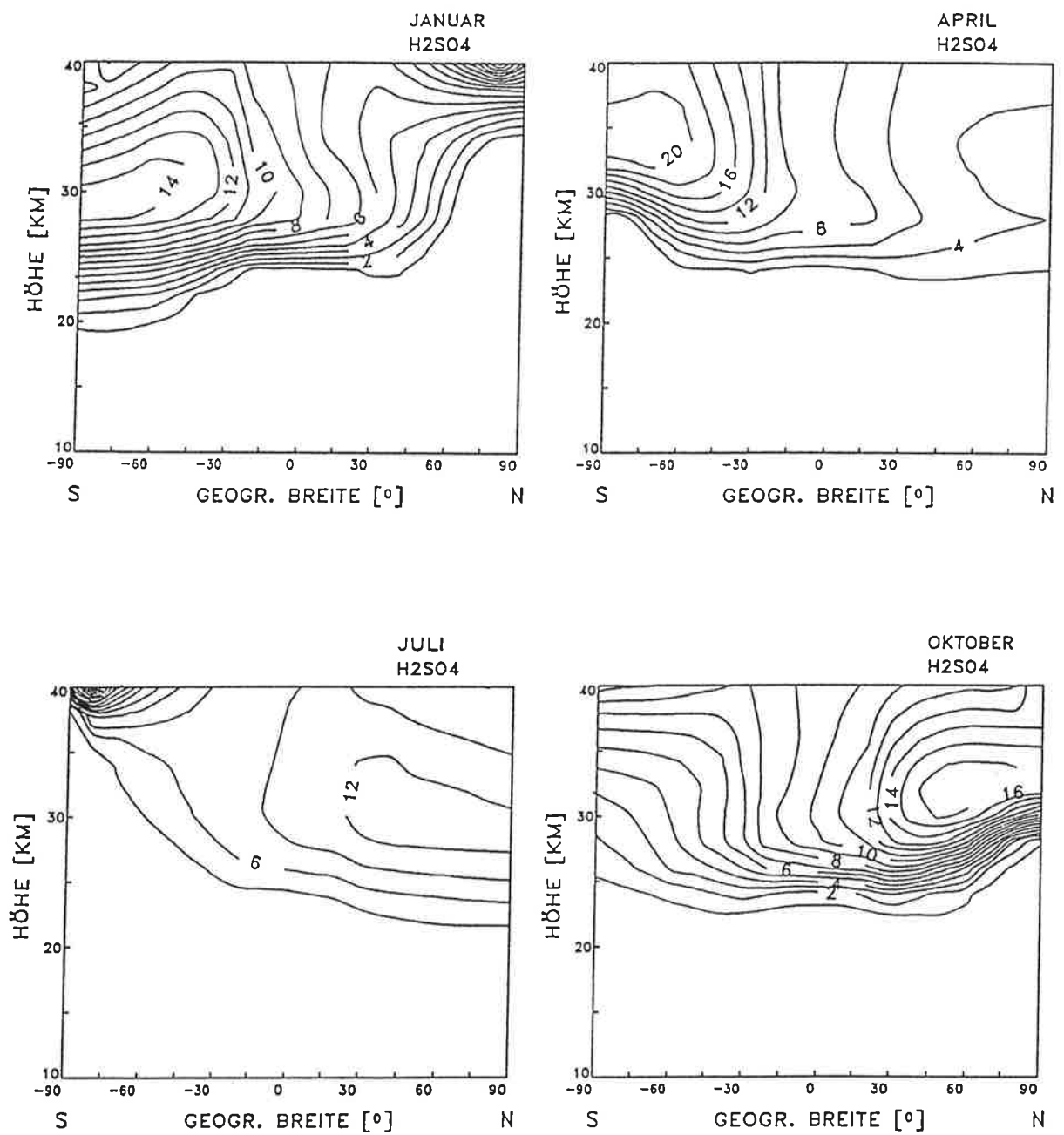


Abbildung 8.6: Mischungsverhältnis [10^{-2} ppbv] für H_2SO_4 für die vier Jahreszeiten unter vulkanisch ungestörten Bedingungen.

8.2 Wirkung der berücksichtigten Prozesse auf die Vertikalstruktur

Zur Verdeutlichung des Einflusses unterschiedlicher Prozesse und Reaktionsbedingungen auf die Teilchen- und SO_2 -Verteilungen werden aus Gründen der Übersichtlichkeit lediglich globale Vertikalprofile für den Nordwinter verglichen. Als Kontrolllauf der vulkanisch ungestörten Stratosphäre dient für die weiteren durchgeführten Modellexperimente das im vorigem Abschnitt (Kap. 8.1) behandelte Simulationsergebnis.

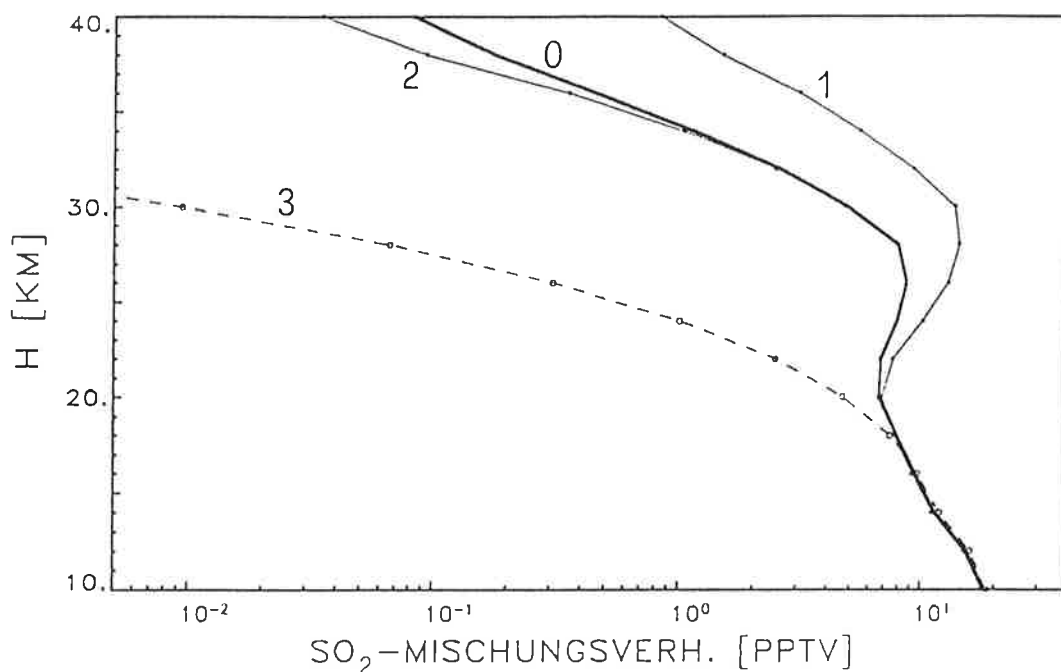


Abbildung 8.7: Vertikale Profile der Volumenmischungsverhältnisse von SO_2 [pptv] für den Nordwinter bei vulkanisch ungestörten Bedingungen unter Betrachtung unterschiedlicher Prozesse im Transportmodell.

- 0 - Kontrolllauf (siehe Kap. 8.1);
- 1 - ohne Berücksichtigung der SO_2 -Photodissoziation;
- 2 - ohne den SO_2 -Eintrag aus der H_2SO_4 -Photodissoziation;
- 3 - ohne Berücksichtigung von COS .

In Abb. 8.7 sind die globalen mittleren Vertikalprofile des SO_2 -Mischungsverhältnisses in vulkanisch ungestörten Zeiten unter Berücksichtigung verschiedener Pro-

zesse im Transportmodell dargestellt. Die vertikale Verteilung des SO_2 zeigt in der Troposphäre eine deutliche Abnahme des Mischungsverhältnisses, die im wesentlichen auf den effektiven Abbau durch washout und homogener Gasphasenreaktionen beruht. Im Bereich der Tropopause setzt sich die SO_2 -Abnahme fort, jedoch wird der Gradient des Mischungsverhältnisses immer geringer. Oberhalb von 20 km ergibt sich im Kontrolllauf (Vertikalprofil 0 in Abb. 8.7), wie bereits erwähnt, eine markante SO_2 -Zunahme mit maximalen Werten im globalen Mittel von 9 pptv in 27 km Höhe. Die Ausbildung der SO_2 -Schicht erfolgt durch die in situ Produktion von SO_2 aus COS . Bei Vernachlässigung von COS im Transportmodell (Kurve 3 der Abb. 8.7), entsprechend dem Fehlen zusätzlicher stratosphärischer Quellen von SO_2 , nimmt das SO_2 -Mischungsverhältnis mit der Höhe stark ab. Da aus den Oxidationsprodukten des SO_2 durch die Gas-Teilchen-Umwandlung Aerosolteilchen entstehen, macht dieser Vergleich nochmals deutlich, daß die Sulfatschicht der ungestörten Stratosphäre im wesentlichen durch die Oxidationsprozesse des COS aufrechterhalten wird. Durch den photochemischen Abbau von SO_2 wird insbesondere die Verteilung in der oberen Stratosphäre beeinflusst, wie der Vergleich der Vertikalprofile Kurve 1 mit dem des Kontrolllaufs zeigt. Ohne SO_2 -Photodissoziation steigt das Mischungsverhältnis in der Stratosphäre bis auf 16 pptv an, die Abnahme in der oberen Modellregion ist geringer. Der Einfluß der photochemischen Dissoziation von H_2SO_4 , bei der wieder SO_2 entsteht, ist nur in größeren Höhen geringfügig merkbar (Vertikalprofil 2).

Die Oxidationsraten von SO_2 sind, abgesehen von den reaktionskinetischen Parametern (Kapitel 4.3), empfindlich von der OH -Radikalenverteilung abhängig. Die OH -Konzentration wird mittels photochemischer Modelle berechnet und infolgedessen von den darin berücksichtigten Reaktionsgleichungen und -konstanten bestimmt. Da in der Literatur unterschiedliche OH -Profile verwendet werden (z.B. Turco et al., 1979), wird der Einfluß des OH -Mischungsverhältnisses anhand der vertikalen SO_2 -Verteilung in der Abb. 8.8 (Seite 80) mit dem Profil 1 verdeutlicht. Bei Verfünffachung der im Kontrolllauf verwendeten Zahl der OH -Radikale beträgt der globale SO_2 -Inhalt nur noch 36% im Vergleich zum Kontrolllauf. Eine Verdoppelung des troposphärischen SO_2 -Flusses am unteren Gitterrand (Vertikalprofil 2) wirkt sich hauptsächlich im unteren Modellgebiet aus; bis etwa 18 km Höhe ist das SO_2 -Mischungsverhältnis gegenüber dem Kontrolllauf doppelt so hoch.

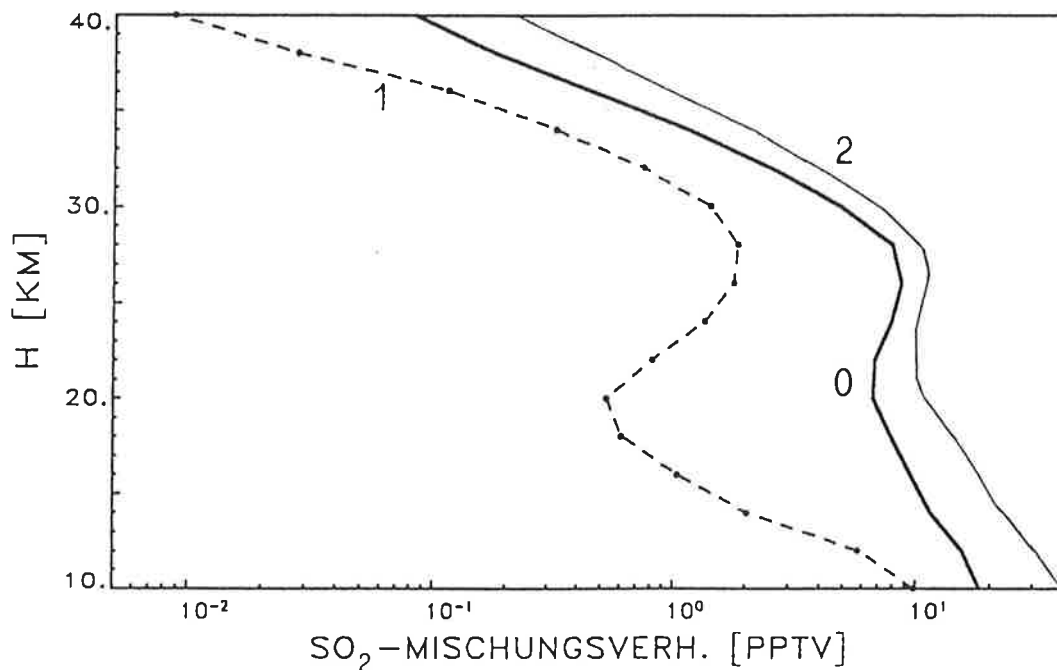


Abbildung 8.8: Vertikalprofile des Volumenmischungsverhältnisses von SO_2 [pptv] für den Nordwinter unter vulkanisch ungestörten Bedingungen bei unterschiedlichen Reaktionsvoraussetzungen.

0 - Kontrolllauf (siehe Kap. 8.1);

1 - Verfünffachung der Zahl der OH -Radikale;

2 - Verdoppelung des SO_2 -Flusses am unteren Gitterrand.

Abschließend wird der deutliche Einfluß der gasförmigen Schwefelkomponenten auf die Teilchenzahldichteverteilung anhand der vertikalen Teilchenstruktur (Klasse 2) in Abb. 8.9 gezeigt. Allein mit dem troposphärischen Teilcheneintrag ist die beobachtete Teilchenverteilung der vulkanisch ungestörten Stratosphäre nicht zu erklären: Die merkliche Zunahme der Teilchenzahldichte oberhalb der Tropopause wird insbesondere auch durch die Berücksichtigung der Reaktionen der gasförmigen Schwefelsubstanzen und des Prozesses der Gas-Teilchen-Umwandlung der Oxidationsprodukte des SO_2 bewirkt. Das betrachtete Modellgebiet enthält in der Klasse der mittelgroßen Teilchen unter diesen Bedingungen insgesamt 28% mehr Aerosolteilchen als ohne Gasphasenchemie.

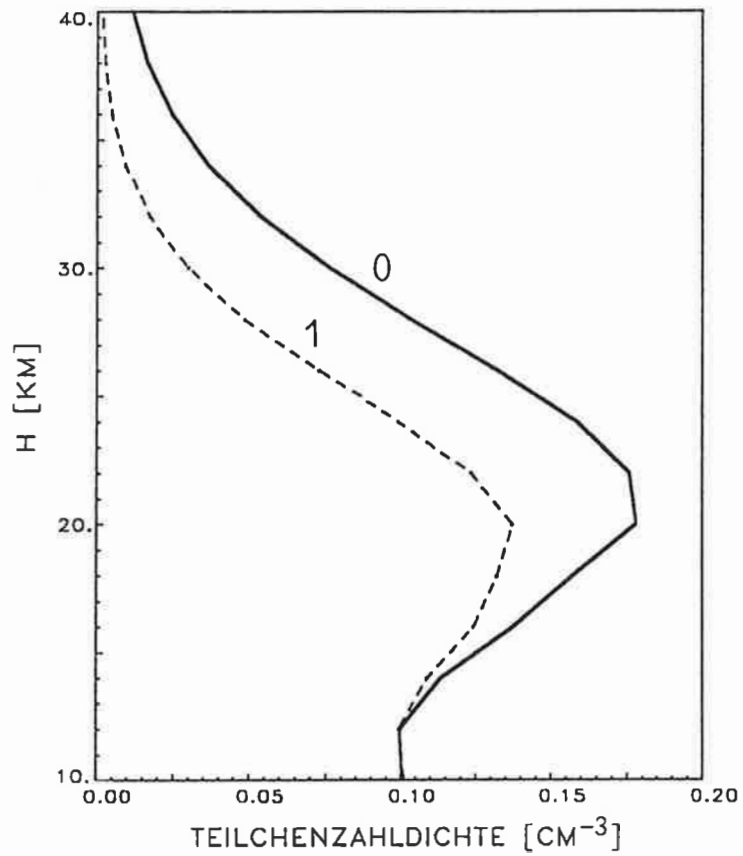


Abbildung 8.9: Vertikalprofile der globalen mittleren Teilchenzahldichte der Klasse 2 [cm⁻³] für den Nordwinter unter vulkanisch ungestörten Bedingungen mit (Profil 0) und ohne (Profil 1) Gasphasenchemie.

8.3 Teilchenkonzentrationen nach Vulkaneruptionen

8.3.1 Der Vulkan *El Chichón*

In diesem Jahrhundert war eine Reihe großer Vulkane tätig, die beträchtliche Mengen an Aerosolteilchen und schwefelgebundenen Gasen in die Stratosphäre einbrachten: 1912 *Mt. Katmai* in Alaska, 1963 *Mt. Agung* in Indonesien, 1974 *Mt. Fuego* in Guatemala und im letzten Jahrzehnt 1980 *Mt. St. Helens* in den USA und 1982 *El Chichón* in Mexiko. Für eine Modellierung bietet sich besonders die Eruption des *El Chichón* an, da bei dieser schwefelhaltige Gase in große Höhen gelangten, eine rasche Umwandlung in Schwefelsäure einsetzte und Sulfatteilchen gebildet wurden (Hofmann et al., 1983). Dagegen wurden von dem Vulkan *Mt. St. Helens* hauptsächlich Ascheteilchen in die Atmosphäre emittiert. Obwohl der Vulkanausbruch des *El Chichón* hinsichtlich der eingebrachten Staub- und Ascheteilchen relativ schwach war, erzeugte er aber durch die schwefelreichen Gase eine der dichtesten Stratosphärenwolken seit der Eruption des *Krakatau* in Indonesien im Jahre 1883 (Rampino et al., 1984).

Der Vulkan *El Chichón* liegt im tropischen Gebiet im Südosten Mexikos (17.3°N, 93.2°W). Am 28. März 1982 begann die Vulkaneruption mit starken Explosionen und setzte sich am 3. und 4. April in den Haupteruptionen fort. Während und nach den Ausbrüchen des Vulkans wurden zahlreiche Messungen durchgeführt. Die vulkanischen Aerosolwolken erreichten anfangs Höhen von 16 km, später weitaus höhere Bereiche bis 30 km (Oberbeck et al., 1983). Die Höhe des Konzentrationsmaximums der Teilchen über den tropischen Breiten nahm von 27 km im Juni 1982 auf 21 km Ende 1982 durch die Sedimentation ab (DeLuisi et al., 1983). Aus Ballon- und Flugzeugmessungen wurde die injizierte stratosphärische Sulfatmasse zwischen 20 bis 30 km Höhe von Mroz et al. (1983) mit $4.5 \pm 1.5 \cdot 10^{12}$ g geschätzt. Messungen von Knollenberg et al. (1983) ergaben Teilchengrößen im Bereich 0.1 bis 2 μm und eine Aerosoldichte von $1.8 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$.

Mit den stratosphärischen Winden breiteten sich die Aerosolwolken in den Subtropen rasch nach Nordwesten aus und zirkulierten innerhalb von drei Wochen um die gesamte Erde (Pollack et al., 1983). 6 bis 8 Wochen nach der Eruption zeigten

Beobachtungen der Teilchenzahldichte zwischen 20° und 40°N im Bereich 110° und 120°W in 20 km Höhe für Teilchen mit Radien 0.1 bis 3 μm Werte von 10 bis 100 Teilchen/ cm^3 (vorher unter ungestörten Verhältnissen 1 bis 2 Teilchen/ cm^3) (Wilson et al., 1983). Werden noch kleinere Teilchen mit einbezogen ($0.01 \mu\text{m} \leq r \leq 3 \mu\text{m}$), so liegen die Teilchenzahldichten bei 200 bis 600 cm^{-3} .

Zur Beurteilung der meridionalen Ausbreitung wurden verschiedene Lidar-Messungen vorgenommen. Der Hauptanteil der vulkanischen Aerosolmasse blieb nach McCormick et al.(1983) bis zu einem halben Jahr nach dem Vulkanausbruch zwischen 7°S und 35°N begrenzt. Lidar-Beobachtungen von Reiter (1983) in Garmisch-Partenkirchen ($\simeq 50^\circ\text{N}$) belegten eine nördlichere Ausdehnung, hier wurde bereits im Mai der erste Einfluß des Vulkanausbruchs in 15 km Höhe in vertikalen Rückstreuprofilen sichtbar. Eine zweite Schicht erhöhten Aerosolgehalts ließ sich in weiteren Messungen von Reiter (1983) im Juni nach dem Vulkanausbruch in 25 km Höhe erkennen. Ab September 1982 bildet sich eine ausgeprägte Aerosolschicht im gesamten Höhenbereich zwischen 15 bis 25 km aus. Auch Beobachtungen von Mroz et al.(1983) im Juli und August 1982 zeigten die fast über die gesamte Nordhemisphäre verteilten vulkanogenen Sulfatteilchen.

8.3.2 Simulation der vulkanisch gestörten Atmosphäre

Eine realistische Modellierung der Ausbreitung der Aerosolwolken nach einem Vulkanausbruch erfordert die Kenntnis aktueller meteorologischer Daten. In dieser Arbeit werden für die folgenden Simulationen nur klimatologische Mittelwerte gebraucht, die dennoch grundsätzlich die Ausbreitung vulkanogener Teilchen beschreiben können und damit eine Abschätzung des Einflusses dieser Teilchen auf die Sulfatschicht und der dadurch bedingten stratosphärischen Erwärmungs- bzw. Abkühlungsraten ermöglichen. Durch vulkanische Eruptionen gelangen, verglichen mit anderen Quellen, große Mengen schwefelgebundener Gase und Teilchen in die Stratosphäre, die die Hauptstörung der stratosphärischen Sulfatschicht verursachen.

Da die physikalisch-chemischen Reaktionen der Teilchenbildung (gasförmige Schwe-

felkomponenten zu Sulfateilchen) in den rasch aufsteigenden Aerosolwolken durch die hohe Temperatur und den ausreichend vorhandenem Wasserdampf sehr schnell ablaufen (Hamill et al., 1977, 1982; Wilson, 1984, Barth et al., 1983) - die chemische Verweilzeit von vulkanisch eingebrachtem SO_2 beträgt nur wenige Wochen bis zu einem Monat (Krueger, 1983) -, erfolgt der vulkanische Eintrag im Modell sofort in Form von Sulfateilchen. Bei hochreichenden Vulkaneruptionen kann davon ausgegangen werden, daß während des Aufstiegs der Aerosolwolke die Wechselwirkung mit der umgebenden Luft gering ist (Barth et al., 1983) und damit der Eintrag der gesamten vulkanischen Aerosolteilchen in nur wenige Modellgittervolumen gerechtfertigt ist.

Für die Modellierung der Eruption des *El Chichón* werden zur Aufbereitung des vulkanischen Teilcheneintrages in das Modellgitter die folgenden Annahmen getroffen:

1. Der Gesamteintrag von Sulfataerosol zwischen 20 und 30 km Höhe in 7 Tagen beträgt $4.5 \cdot 10^{12} \text{g}$ (Mroz et al., 1983).
2. Vorgabe einer ZOL-Größenverteilung mit $r_m = 0.5 \mu\text{m}$ und $\bar{r} = 0.84 \mu\text{m}$. Daraus ergibt sich die Aufteilung der Teilchen in Größenklassen (Klasse 1: 0.04%, Klasse 2: 72.2% und Klasse 3: 27.7%).
3. Die Aerosoldichte wird 1.8 g/cm^3 gesetzt.
4. Die Hauptmasse des Eruptionsmaterials liegt zwischen 25 und 27 km Höhe (Oberbeck et al., 1983).
5. Die Eingabe der vulkanogenen Teilchen ins Modellgitter erfolgt zwischen 15° und 25°N .
6. Die prozentuale Aufteilung der sich ergebenden Teilchenanzahl auf die fünf vertikalen Gitterelemente zwischen 20 und 30 km wird in Anlehnung an die Arbeit von McKean et al. (1984) mit 10%, 20%, 40%, 20% und 10% für die einzelnen Volumina vorgenommen.

Es ergibt sich ein vulkanogener Gesamtteilchenfluß für die Zeitspanne der Eruption von $2.08 \cdot 10^{20}$ Teilchen/s, die ins Modellgitter eingegeben werden. Ein während der

Eruption zeitlich variierender Fluß in Abhängigkeit von der Eruptionstärke, wie beispielsweise in der Arbeit von Carey et al. (1986) angegeben, hat auf die mit einem zweidimensionalen Transportmodell simulierten Teilchenverteilungen kaum Einfluß und bleibt deshalb unberücksichtigt.

Nach der Emission dieser vulkanogenen Aerosolmenge über sieben Tage von Ende März bis Anfang April ergeben sich mit dem Modell die in den Abbildungen 8.10b bis 8.10f (Seite 88) dargestellten Teilchenzahldichten der Teilchenklasse 2 zu unterschiedlichen Zeiten nach dem Vulkanausbruch. Am Ende des nördlichen Frühlings (ca. vier Wochen nach der Eruption) liegt die maximale Teilchenzahldichte noch bei 170 cm^{-3} . Im Vergleich zur vulkanisch ungestörten Stratosphäre (Abb. 8.10a) bedeutet dies einen etwa 1000-fachen Anstieg der Teilchenzahldichte. Ein viertel Jahr danach (Abb. 8.10c) haben sich die Aerosolteilchen global ausgebreitet und die maximale Teilchenzahldichte beträgt nur noch 60 cm^{-3} . Obwohl die Teilchenzahldichte auch im weiteren Zeitverlauf (Abb. 8.10 d-f) abnimmt, wird der Zustand der ungestörten Stratosphäre, wie er im Kontrolllauf simuliert wurde, auch in den folgenden zwei Jahren noch nicht wieder erreicht.

Abb. 8.11 (Seite 89) stellt die Vertikalstruktur der globalen Mittel der Teilchenzahldichte der Klasse 2 zu unterschiedlichen Zeiten vor und nach der Vulkaneruption dar. Infolge der geringen vertikalen Durchmischung in der Stratosphäre bleiben die vulkanischen Teilchen größtenteils in der Höhe, auf die sie beim Vulkanausbruch befördert wurden. Nur kurz nach der Eruption (Profil 1 und 2) nimmt die Höhe des Maximums, hauptsächlich bedingt durch die Sedimentation der Teilchen, etwas ab. Bereits nach einem halben bis zu einem Jahr nach der vulkanischen Störung ist die Sulfatschicht wieder deutlich im Höhenbereich um 20 km (im globalen Mittel) ausgeprägt. Drei Jahre nach der Vulkaneruption (Profil 5 in Abb. 8.11) hat die Teilchenzahldichte zwar deutlich abgenommen, erreicht aber nicht die geringen Werte des Kontrolllaufes (Profil 0).

Obwohl auch hier die im vorangegangenen Abschnitt bereits erwähnten Vorbehalte bezüglich eines Vergleichs mit Messungen gelten, werden die experimentellen Daten

zur Einschätzung der Modellergebnisse herangezogen. Messungen vier Monate nach dieser Eruption zeigen bei 28°N maximale Teilchenzahldichten ($r \geq 0.15 \mu\text{m}$) von 13 cm^{-3} in 18 bis 20 km Höhe (Hofmann et al., 1987). Die Simulation liefert für den gleichen Zeitraum eine Teilchenzahldichte von 30 cm^{-3} , die nicht unrealistisch ist, da eine etwas abweichende Größeneinteilung ($r \geq 0.1 \mu\text{m}$) gewählt wurde. Auch die über der Antarktis zwei Jahre nach dem Vulkanausbruch gemessenen Aerosolprofile mit maximalen Teilchenzahldichten von 3 bis 4 cm^{-3} in der unteren Stratosphäre (Hofmann et al., 1987) stimmen in der Größenordnung durchaus mit unseren berechneten Werten überein. Allerdings ist ein zweidimensionales Modell nur bedingt zur Simulation der Aerosolwolken von Vulkaneruptionen geeignet, da das emittierte Material sofort in ein Gittervolumen von 10° Breite (siehe Annahme 5) - und damit bereits um den Globus verteilt - gebracht wird.

Der Teilchenabbau nach der Vulkaneruption wird anhand des zeitlichen Verlaufs der Gesamtteilchenzahl im Modellgitter verdeutlicht (Abb. 8.12, Seite 90). Die vulkanisch eingebrachten Teilchen der Klasse 1 wachsen durch Koagulationsprozesse rasch an und wandern somit in die nächsthöhere Teilchenklasse. Bereits nach gut einem Jahr wird der nahezu prävulkanische Zustand erreicht. In der Gesamtteilchenzahl wird der Jahresgang bedingt durch den höheren Eintrag am unteren Modellrand im Nordwinter sichtbar. Der Abbau der Teilchen der Klasse 2 verglichen mit Klasse 1 erfolgt wesentlich langsamer; noch im vierten Jahr nach dem Ausbruch ist die Gesamtteilchenzahl fast eine Größenordnung höher als im ungestörten Zustand. Auch nimmt die Abbaurate von Jahr zu Jahr ab. So sinkt die Gesamtteilchenzahl im ersten Jahr nach dem Ausbruch auf 8% ihres Wertes bei der Eruption, im zweiten Jahr auf 41% des Vorjahreswertes und im fünften Jahr sogar nur noch auf 68% der Teilchengesamtzahl im Vorjahr.

Abb. 8.13 auf Seite 90 dient der Gegenüberstellung des sich nach der Vulkaneruption einstellenden Quasi-Gleichgewichtszustands und den Ergebnissen des Kontrolllaufes ohne jeglichen vulkanischen Eintrag (Abb. 8.2). Sie zeigt die globale Verteilung der Teilchenzahldichte der Klasse 2 fünf Jahre nach der Vulkaneruption. Das Muster der Isolinien unterscheidet sich von dem in Abb. 8.2 dargestellten kaum, jedoch ist die Teilchenzahldichte in Abb. 8.13 fast eine Größenordnung höher. Der Vergleich mit

Messungen der vulkanisch kaum gestörten Stratosphäre (siehe voriges Kapitel, z.B. Hofmann et al., 1975) zeigt eine wesentlich bessere Übereinstimmung mit der vier bis fünf Jahre nach dem Ausbruch simulierten Verteilung als mit dem Kontrolllauf. Diese Tatsache läßt vermuten, daß die stratosphärische Sulfatschicht neben den Gas- und Teilchenflüssen aus der Troposphäre auch entscheidend durch vulkanogene Komponenten bestimmt wird.

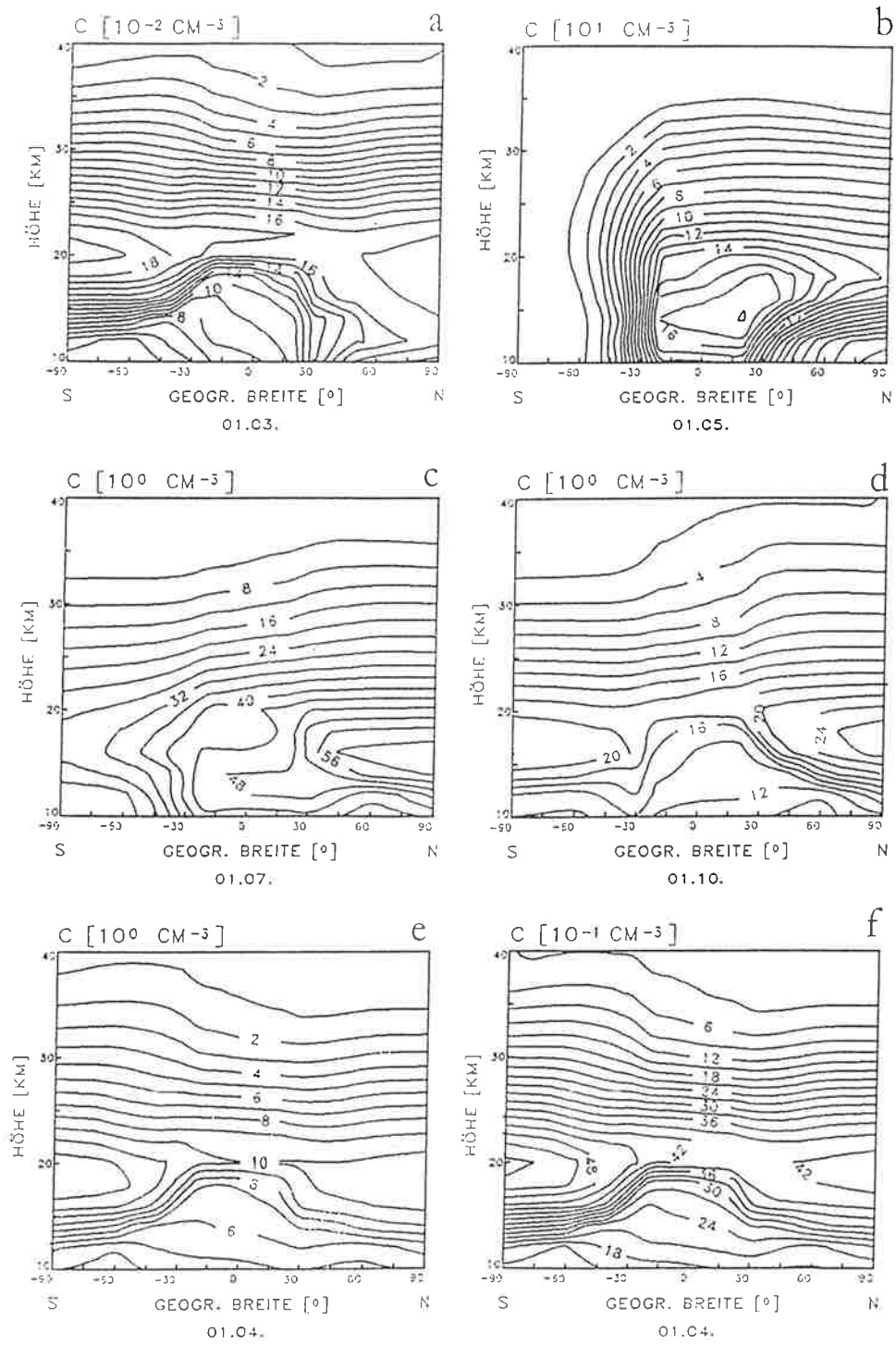


Abbildung 8.10: Teilchenzahldichte für Teilchen der Klasse 2 ($\bar{r} = 0.015 \mu\text{m}$) direkt vor dem Ausbruch des *El Chichón* (a) und zu unterschiedlichen Zeiten danach: (b) 4 Wochen, (c) 3 Monate, (d) ein halbes Jahr, (e) ein Jahr und (f) zwei Jahre (die entsprechende Maßeinheit ist jeweils angegeben).

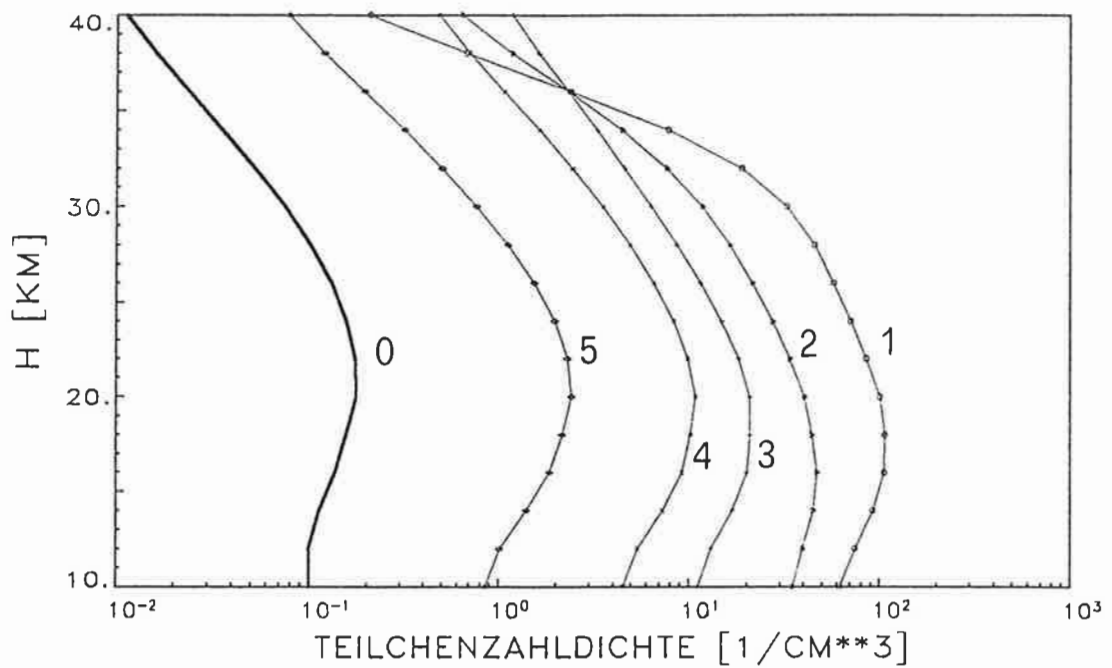


Abbildung 8.11: Vertikalprofile der global mittleren Teilchenzahldichte [cm^{-3}] für Teilchen der Klasse 2 direkt vor dem Ausbruch des *El Chichón* (0) und zu unterschiedlichen Zeiten danach: (1) 4 Wochen, (2) 3 Monate, (3) ein halbes Jahr, (4) ein Jahr und (5) drei Jahre.

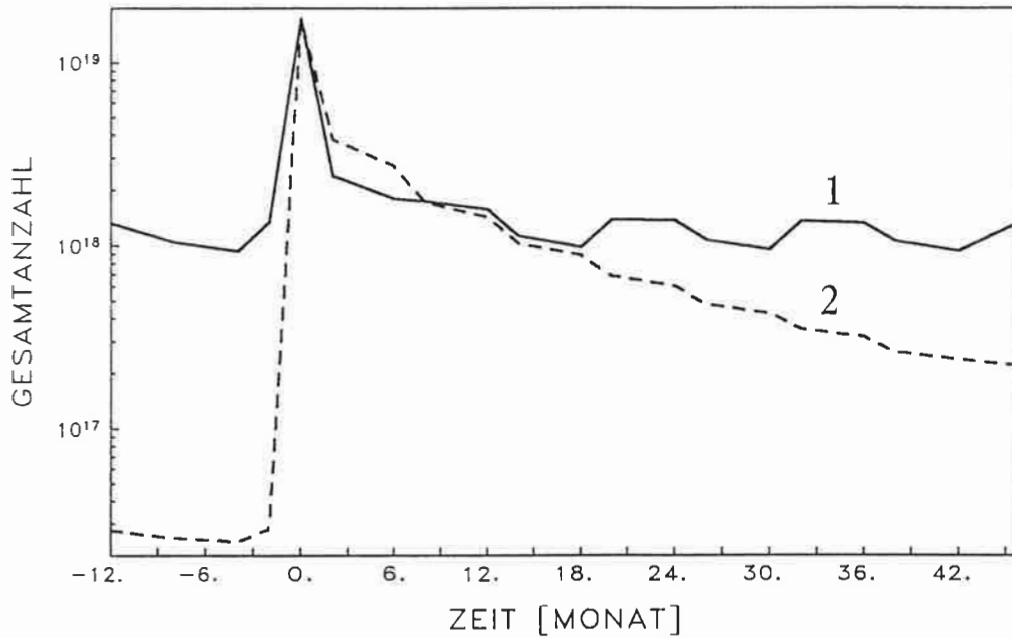


Abbildung 8.12: Zeitlicher Verlauf der Teilchenzahl im gesamten Modellgitter für Teilchen der Klasse 1 (durchgezogene Linie) und der Klasse 2 (unterbrochene Linie) unter Bedingungen der ungestörten Atmosphäre und nach dem Ausbruch des *El Chichón* (Zeitpunkt Null).

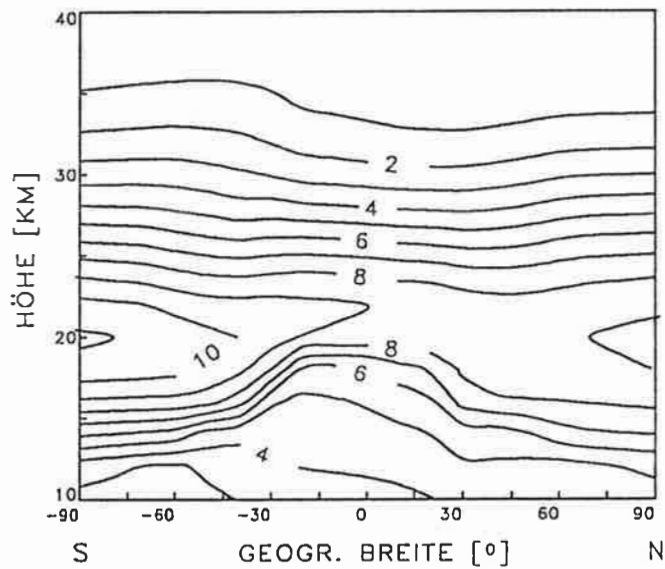


Abbildung 8.13: Teilchenzahldichte [10^{-1} cm^{-3}] für Teilchen der Klasse 2 im fünften Jahr nach dem Vulkanausbruch des *El Chichón* unter Bedingungen des Nordwinters.

9 Strahlungstransportrechnungen

Zur Abschätzung des Zusammenhanges von Vulkanaktivitäten und Klima wurden verschiedene Parameter entwickelt (Newhall et al., 1982; Schönwiese, 1986). Gebräuchliche Parameter sind zum Beispiel der "Dust-Veil-Index" (DVI), bei dem die vulkanogene Teilchentrübung in Beziehung zu beobachteten Klimaschwankungen gesetzt wird, und der Vulkanindex VEI (Volcanic-Explosivity-Index), der alle Vulkanaktivitäten unter Abschätzung des emittierten Volumens und der erreichten Höhe der vulkanischen Aerosolwolken in einer Skala von 0 bis 8 erfaßt. Derartige Parameter dienen jedoch nur einer groben Abschätzung des Vulkaneinflusses auf das Klima. Dies wird beispielsweise dadurch verdeutlicht, daß der Klimaeinfluß des Vulkans *El Chichón* bei Gebrauch des Volcanic-Explosivity-Index mit VEI=4 gegenüber dem *Mt. Helens* (1980) mit VEI=5 weit unterschätzt wird (Schönwiese, 1986; Lamb, 1983).

In diesem Kapitel wird nun der Einfluß der zuvor simulierten Teilchenverteilungen für die ungestörte und vulkanisch gestörte Stratosphäre auf den Strahlungshaushalt diskutiert. Mit Hilfe des eindimensionalen Strahlungstransportmodells (Kapitel 6) werden für jeden Stützpunkt der geographischen Breite höhenabhängige Erwärmungsraten in Grad pro Tag [K/d] bestimmt.

9.1 Aerosolfreie Atmosphäre

Zunächst wird der Einfluß der globalen Ozonverteilung auf die Ergebnisse der Strahlungsübertragungsrechnung für eine aerosolfreie Atmosphäre untersucht. Wird die globale Ozonverteilung unter Vorgabe realistischer breitenabhängiger Ozonschichtdicken (Abb. 6.3) und der Höhe des Ozonmaximums entsprechend Gleichung (6.13) berechnet und im Strahlungsmodell berücksichtigt, so ergibt sich die in Abb. 9.1 dargestellte Verteilung der Nettoerwärmungsraten, hier unter Januarbedingungen. Im betrachteten Höhenbereich wird durch die Ozonabsorption eine maximale Erwärmungsrate von 2 K/d hervorgerufen. Die Zone maximaler Erwärmung liegt über der südlichen Subtropenregion in 36 km Höhe und nimmt zum Südpol hin

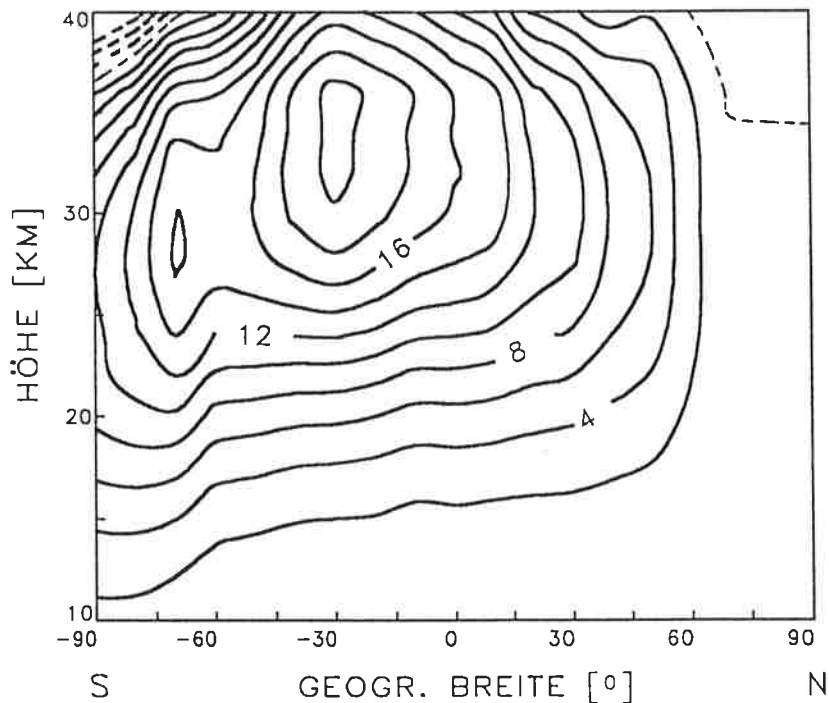


Abbildung 9.1: Nettoerwärmungsraten [10^{-1}K/d] bedingt nur durch die Ozonabsorption im kurz- und langwelligen Spektralbereich als Funktion von geographischer Breite und Höhe unter Januarbedingungen.

auf Höhen unter 30 km ab.

Die Ozonabsorption im Ultravioletten wird in größeren Höhen wirksam. Oberhalb einer Höhe von 35 bis 40 km sind nach Kiehl et al. (1986) die durch die Ozonabsorption ermittelten Erwärmungsraten im Wellenlängenbereich 240 bis 300 nm ungefähr eine Größenordnung höher als alle anderen im solaren Spektralbereich zur Erwärmung beitragenden Komponenten. Die Absorption in den weitaus schwächeren Banden des Ozons im Sichtbaren gewinnt in der unteren Stratosphäre an Bedeutung, da die Energie kürzerer Wellenlängen bereits in der mittleren Stratosphäre absorbiert ist.

Bei einer 10%igen Verringerung der Ozonschichtdicke ergeben Testrechnungen auch eine etwa 10%ige Abnahme der Erwärmungsraten in dem betrachteten Modellgebiet. Bei einer angenommenen größeren Höhe des Ozonmaximums - demzufolge ist die durchstrahlte Absorbermenge in vergleichbaren Höhen auch größer - werden deutlich höhere Erwärmungsraten ermittelt. Wird in der Ozonverteilung das Ozonmaximum im globalen Mittel 3 km höher als bisher angenommen, so vergrößern sich die

Erwärmungsraten bereits um 35% im oberen Modellgebiet gegenüber denen in Abb. 9.1. Diese Rechnungen mit dem Strahlungsmodell zeigen, daß die Ozonverteilung die berechneten Erwärmungsraten in der Stratosphäre empfindlich beeinflusst.

Die durch die Ozonabsorption bewirkten Erwärmungsraten (Abb. 9.1) stimmen mit anderen aus der Literatur bekannten Untersuchungen bis zu einer Höhe von etwa 30 km gut überein (Freeman et al., 1979; Kiehl et al., 1986; WMO, 1985). In Abweichung zu den vorhergehenden Rechnungen zeigen jedoch die Untersuchungen von Kiehl et al. (1986) oberhalb von 30 km Höhe eine deutliche Zunahme der Erwärmungsraten auf maximal 6 K/d. Auch befindet sich das Maximum in den vorliegenden Simulationen 10° bis 15° nördlicher (vgl. Hering et al., 1967; WMO, 1985). Hervorgerufen werden diese Unterschiede einerseits durch die vorgegebene Ozonverteilung. Sie basiert zwar auf realistischen Werten der Höhen des Ozonmaximums und der Ozonschichtdicke, jedoch wird für alle geographische Breiten ihre Form des Vertikalprofils entsprechend Gleichung (6.13) unverändert angenommen. Zum anderen wird die Ozonabsorption im gesamten ultravioletten Spektralbereich durch eine empirische Formel parametrisiert. Für die Strahlungstransportrechnungen im oberen Modellgebiet wäre eine feinere Einteilung der UV-Banden mit entsprechenden Absorptionskoeffizienten angebracht.

Den Einfluß der Ozon-, Wasserdampf- und CO_2 -Absorption auf die Erwärmungsraten zeigt die Abb. 9.2 (Seite 94) jeweils für den solaren, terrestrischen und gesamten Spektralbereich. Für die CO_2 -Konzentration wird im betrachteten Modellgebiet ein höhenkonstanter Wert von 340 ppm verwendet, der für das Jahr 1982 als repräsentativ anzusehen ist (z.B. Schönwiese et al., 1987). Die Annahme der Höhenkonstanz ist gerechtfertigt, da CO_2 auf Grund seiner langen Lebenszeit ($\gg 1$ Jahr) in der Atmosphäre gut durchmischt ist. Durch die steigende Zunahme der Verbrennung fossiler Energieträger beträgt die CO_2 -Steigerungsrate gegenwärtig 0.4% pro Jahr (Enquete-Kommission, 1988). Für die Wasserdampfverteilung werden die Daten entsprechend Kapitel 7 vorgegeben.

Da die stratosphärische Erwärmung durch die Absorption des molekularen Sauer-

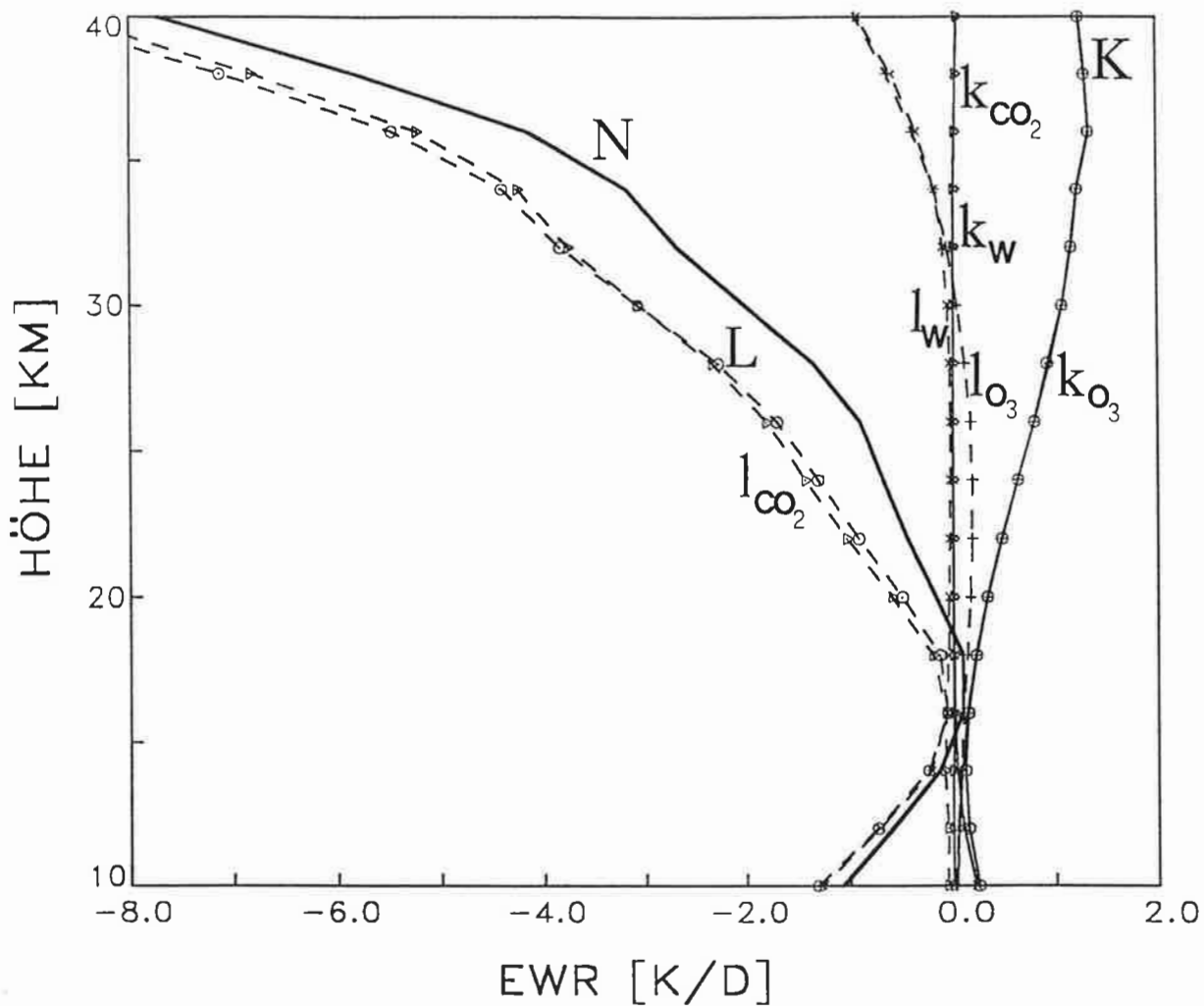


Abbildung 9.2: Vertikalprofile der mittleren globalen Erwärmungsraten [K/d] bedingt durch die Ozonabsorption (+), Kohlendioxidabsorption (Δ) und Wasserdampfabsorption (x) jeweils für den kurzwelligen (Kennzeichnung k) und langwelligen Spektralbereich (Kennzeichnung l) unter Januarbedingungen. Die Nettoerwärmungsraten (K - gesamt kurzwellig; L - gesamt langwellig; N - gesamter Spektralbereich) der aerosolfreien Atmosphäre sind zusätzlich eingezeichnet.

stoffs in den UV-Banden die Strahlungstransportrechnungen innerhalb des betrachteten Höhenbereiches nur wenig zu beeinflussen scheint (Liou, 1980; Kley et al., 1987), wird sie nicht berücksichtigt.

Die mittleren globalen Vertikalprofile zeigen deutlich, daß die Erwärmungsraten im kurzwelligen Spektralbereich durch die Ozonabsorption (Abb. 9.2, Kurve k_{O_3}) und im

langwelligen Bereich im wesentlichen durch die CO_2 -Absorption (Kurve l_{CO_2}), zum geringen Anteil durch die Ozon-Absorption, hervorgerufen werden. Dagegen spielt die Wasserdampfabsorption in der Modellregion auf Grund des geringen Massenmischungsverhältnisses nur eine untergeordnete Rolle. Durch die CO_2 -Absorption in der $15\text{-}\mu\text{m-}CO_2$ -Bande ergeben sich maximale Erwärmungsraten in der Stratosphäre von -6 K/d bis -8 K/d , die auch mit denen in der Literatur gut übereinstimmen (Kiehl et al., 1983; Kiehl et al., 1986; WMO, 1985). Da die stratosphärische Temperatur mit der Höhe stark ansteigt, emittiert CO_2 mit der Höhe zunehmend Strahlungsenergie im infraroten Wellenlängenbereich. In der unteren Stratosphäre werden durch die Ozonabsorption im langwelligen Spektralbereich Erwärmungsraten bis 0.3 K/d bedingt; oberhalb von 32 km Höhe treten Abkühlungsraten bis 1 K/d auf. Hervorgerufen werden diese ozonbedingten Erwärmungsraten durch das in diesem Höhenbereich mit der Höhe zunehmende Mischungsverhältnis von Ozon.

In der aerosolfreien Atmosphäre ergeben sich für den gesamten Spektralbereich unter Berücksichtigung der Absorption der wesentlichen Spurengase somit stark mit der Höhe zunehmende Abkühlungsraten (Abb. 9.2). Die mittleren globalen Nettoraten unter Januarbedingungen betragen zwischen 0 K/d in 18 km Höhe und -6 K/d in 38 km . Bei einer vergleichenden Betrachtung anderer in der Literatur aufgeführten Nettoraten zeigen sich in Abhängigkeit vom benutzten Strahlungsmodell und der berücksichtigten Substanzen beträchtliche Unterschiede. Bei Annahme eines Strahlungsgleichgewichtes in der Stratosphäre sollten im globalen Mittel die Erwärmungsraten von gleicher Größe wie die Abkühlungsraten sein. In den Untersuchungen von Freeman et al. (1979) überwiegen in der Stratosphäre die ermittelten Abkühlungsraten im langwelligen Spektralbereich deutlich gegenüber den solaren Erwärmungsraten; bereits in 30 km Höhe ergeben sich Nettoabkühlungsraten von 4 K/d bis 5 K/d , die weitaus höher als die hier berechneten Ergebnissen sind. Ergebnisse der Strahlungsübertragungsrechnungen von Kiehl et al. (1986) weisen zwar unterhalb von etwa 25 km auf eine nahezu verschwindene mittlere globale Nettorate hin. Im Höhenbereich von 30 bis 40 km übertrifft die Abkühlungsrate im terrestrischen Spektralbereich die solare Erwärmungsrate um ungefähr 1 K/d .

Die hier ermittelten Nettoabkühlungsraten insbesondere im oberen Modellgebiet sind

insofern als obere Grenze für die Nettoabkühlung der aerosolfreien Stratosphäre anzusehen, da die durch die Ozonabsorption bedingten Erwärmungsraten zu geringe Werte auf Grund einfacher Modellparameterisierungen (siehe auch Seite 93) aufweisen und andere ebenfalls zur Erwärmung beitragende Gase (z.B. NO_2) nicht berücksichtigt werden. Da in der vorliegenden Arbeit insbesondere der Einfluß stratosphärischer Aerosolteilchen auf den Strahlungshaushalt untersucht wird, bleiben weitere Überprüfungen des Strahlungsmodells in der aerosolfreien Atmosphäre, einschließlich einer verbesserten Behandlung der Gasextinktion in der oberen Atmosphäre, zukünftigen Szenarien vorbehalten.

9.2 Erwärmungsraten der vulkanisch ungestörten Atmosphäre

Für die Aerosolverteilungen aus Kapitel 8.1 unter ungestörten Bedingungen in den drei Größenklassen liefert das Strahlungsübertragungsmodell bei zusätzlicher Berücksichtigung der Ozon-, Wasserdampf- und CO_2 -Absorption die in Abb. 9.3 (Seite 99) dargestellten Nettoerwärmungsraten für die vier Jahreszeiten. Da das Strahlungsmodell zur Vermeidung numerischer Fehler bis 60 km Höhe ausgedehnt wurde, müssen die mit dem Transportmodell berechneten Teilchenzahldichten über eine Höhe von 40 km hinaus extrapoliert werden.

Für die zur Berechnung der optischen Parameter benötigten wellenlängenabhängigen Brechungsindex der Aerosolteilchen sind Angaben zur chemischen Zusammensetzung und zum physikalischen Zustand notwendig. Mit einer Anzahl unterschiedlicher Aerosolmessungen im Höhenbereich der stratosphärischen Aerosolschicht konnte nachgewiesen werden, daß die stratosphärischen Aerosolteilchen unter vulkanisch ungestörten Bedingungen hauptsächlich aus Tropfen konzentrierter Schwefelsäurelösung mit einem festen Kern aus Ammoniumsulfat, Mineralien oder Staub zusammengesetzt sind (Bigg, 1975; Cadle et al., 1975; Toon et al., 1976). Das Mischungsverhältnis der Schwefelsäurelösung verändert sich in Abhängigkeit von den Umgebungsbedingungen von $\simeq 60\%$ in 18 km Höhe auf $\simeq 80\%$ in der mittleren Stratosphäre (Rosen, 1971; Turco et al., 1982). Bei den vorherrschend niedrigen Temperaturen in der Stratosphäre bestehen die Aerosolteilchen entweder als unterkühlte Lösungstropfen,

liegen im festen Zustand vor oder existieren als kolloide Mischung von kleinsten Partikeln in Flüssigkeiten ("slurry") (Harshvardham, 1976; Turco et al., 1979). Angesichts solcher Unsicherheiten werden in den weiteren Rechnungen, wie bereits auch in Kapitel 6 dargelegt, Aerosolteilchen einer chemischen Zusammensetzung von 75%iger Schwefelsäure in Wasser angenommen; die wellenlängenabhängigen Brechungsindizes werden einer Aufstellung von Palmer et al. (1975) entnommen.

Abb. 9.3 zeigt oberhalb von ungefähr 25 km Höhe eine deutliche Zunahme der Abkühlungsraten bis zu maximalen Werten von 8 bis 10 K/d im oberen Modellgebiet. Im Bereich über der Tropopause bildet sich über eine vertikale Erstreckung von 6 bis 8 km Höhe eine Zone positiver Erwärmungsraten, die im Januar (Nordwinter) vom Südpol bis 30°N und im April (Nordfrühling) etwa von 45°S bis 45°N ausgedehnt ist (entsprechend entgegengesetzt im Südwinter und -frühling). Auf Grund der niedrigen Aerosolteilchendichten unter vulkanisch ungestörten Bedingungen ist der Einfluß der Teilchenabsorption auf die Erwärmungsraten jedoch gering; lediglich oberhalb von 30 km sind die Abkühlungsraten im Vergleich zur aerosolfreien Atmosphäre um maximal 0.5 K/d kleiner. Demzufolge werden die ermittelten Erwärmungsraten im wesentlichen durch die Ozon- und CO_2 -Absorption bestimmt. Der besonders starke Gradient der Abkühlungsrate über südpolaren Gebiet im Nordwinter bzw. über der Nordpolarregion im Nordsommer wird durch die CO_2 -Absorption und -Emission hervorgerufen, welcher durch die ozonbedingten Erwärmungsraten nicht ausgeglichen wird. Das allgemeine Muster der globalen Verteilung der Abkühlungsraten ähnelt hauptsächlich oberhalb von 30 km Höhe dem jahreszeitlich gemittelten Temperaturfeld. Im Frühling und Herbst sind die Verteilungen der Nettoraten nahezu symmetrisch auf beiden Hemisphären.

Anhand der Abb. 9.4 (Seite 100) wird der Einfluß der Teilchengröße auf die globalen Erwärmungsraten sowohl im kurz- als auch langwelligen Bereich verdeutlicht, wobei zur Bestimmung der spektralen optischen Größen der charakteristische Parameter der ZOL-Verteilung im Fall A $r_m=0.035\mu\text{m}$ gesetzt und im Fall B um den Faktor 10 vergrößert wird. In beiden Fällen ist zwar die Teilchendichte identisch, aber mit dem veränderten Größenspektrum liegt im Fall B eine entsprechend größere Teilchengesamtmasse vor. Die Absorption durch die einflußreichen

gasförmigen Komponenten wird wie zuvor beschrieben in den Strahlungstransportrechnungen berücksichtigt. Im Fall B werden die Erwärmungsraten markant modifiziert. Im Bereich der stratosphärischen Aerosolschicht und bis 30 km Höhe treten mittlere globale Nettoerwärmungsraten von bis zu 1 K/d auf, die besonders auf der erhöhten Absorption im Langwelligen beruhen. Durch die Absorption solarer Strahlung im oberen Modellgebiet werden die Raten im kurzwelligen Bereich deutlich erhöht. Die größten Gradienten der Nettoerwärmungsraten treten im Bereich der höchsten Teilchenzahlgradienten auf. Da die optischen Parameter der Aerosolteilchen neben der Teilchenzahldichte und Absorptionsfähigkeit auch signifikant von der Größenverteilung und damit von den charakteristischen Parametern der Verteilungsfunktion abhängen, ist eine möglichst genaue Bestimmung dieser Funktion erforderlich. Deshalb würde eine feinere Auflösung des Größenspektrums die Bestimmung von r_m höhen- und breitenabhängig und damit auch für unterschiedliche atmosphärische Bedingungen ermöglichen.

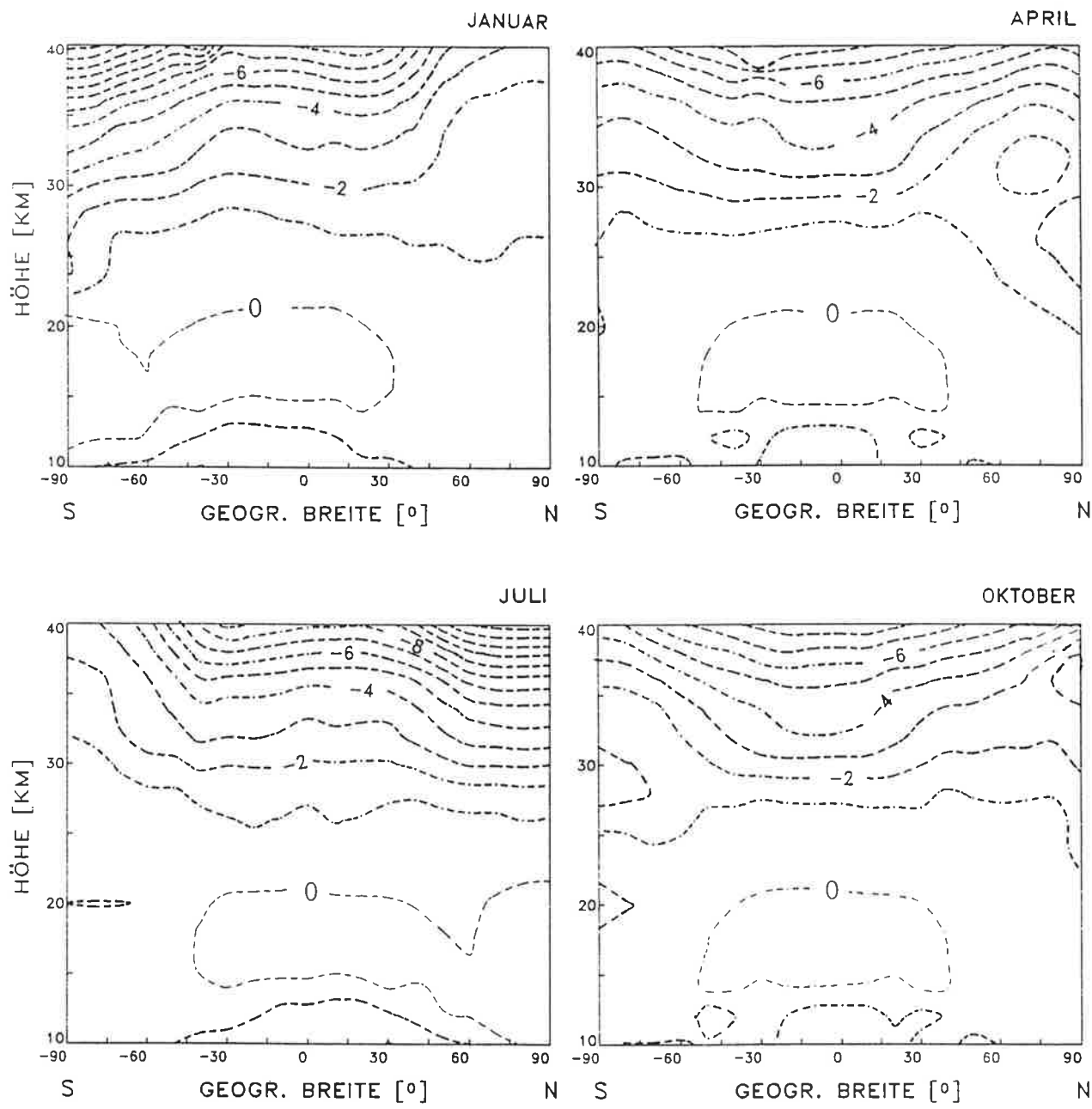


Abbildung 9.3: Nettoerwärmungsraten [K/d] der vulkanisch ungestörten Atmosphäre als Funktion von geographischer Breite und Höhe unter Berücksichtigung der Ozon-, Wasserdampf- und CO_2 -Absorption sowie Streuung und Absorption durch Aerosolteilchen für die vier Jahreszeiten.

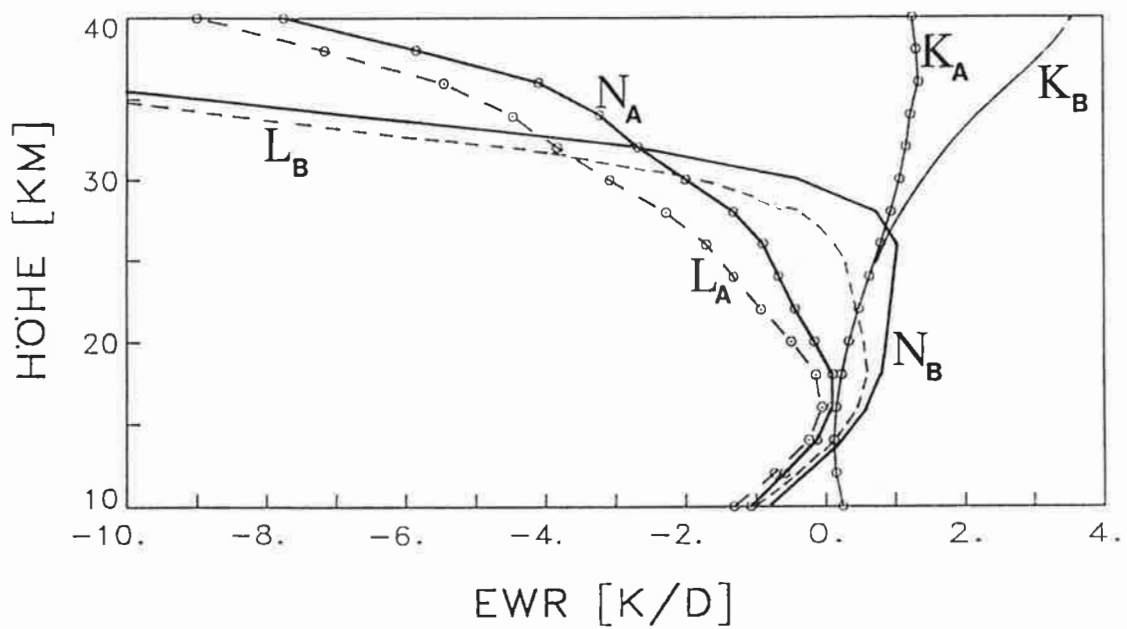


Abbildung 9.4: Vertikalprofile der mittleren globalen Erwärmungsraten unter ungestörten Bedingungen jeweils für den kurzwelligen (dünne Linie), langwelligen (gestrichelte Linie) und gesamten Spektralbereich (dicke Linie) unter Januarbedingungen. Fall A (Index A): Charakteristischer Parameter der ZOL-Verteilungsfunktion $r_m = 0.035 \mu\text{m}$, Fall B: $r_m = 0.35 \mu\text{m}$.

9.3 Erwärmungsraten nach dem Ausbruch des *El Chichón*

Zur Berücksichtigung der zeitlichen Entwicklung einer Größenverteilung unter vulkanisch gestörten Bedingungen im Strahlungsmodell werden die Veränderungen des Parameters r_m nach dem Vulkanausbruch des *El Chichón* aus Literaturangaben entnommen (Hofmann, 1987; Michalsky et al., 1984; Turco, 1986). Nach diesen Angaben wächst r_m von $0.3 \mu\text{m}$ im Nordfrühjahr 1982 bis auf einen maximalen Wert von $0.43 \mu\text{m}$ zum Ende des Jahres 1982 und fällt im Folgejahr auf einen Wert von $0.4 \mu\text{m}$, der sich auch im zweiten Jahr nach der Eruption nur geringfügig verkleinert.

Die spektralabhängigen optischen Parameter der Aerosolteilchen werden für 12 verschiedene ZOL-Größenverteilungen gemäß Kapitel 6 berechnet, wozu die charakteristische Größe r_m im Bereich zwischen $r_m = 0.02 \mu\text{m}$ und $r_m = 1.0 \mu\text{m}$ variiert wird. Für die aktuelle Verteilung nach der Eruption werden die benötigten spektralen Größen aus diesem bereitgestellten Satz der optischen Parameter für die jeweils entsprechende Wellenlänge linear interpoliert.

In Abhängigkeit von der Konfiguration der vulkanischen Quelle und dem zeitlichen Ablauf des Vulkanausbruches ist die Zusammensetzung der Teilchen vulkanischen Ursprungs sehr heterogen. Für die Strahlungsübertragungsrechnungen sind Annahmen über die Zusammensetzung der Teilchen und ihres Aggregatzustandes erforderlich. In den ersten vier bis sechs Wochen nach der Eruption überwiegen Silikat- und Asche- teilchen (Oberbeck et al., 1983), die bedingt durch ihre große Masse mit relativ hoher Sedimentationsgeschwindigkeit rasch aus der Stratosphäre fallen. Danach gewinnen Sulfatteilchen und Lösungstropfen unterschiedlicher Salze mit zum Teil eingelagerten Verunreinigungen an Bedeutung (Capone et al., 1983). Da direkte Messungen der optischen Verhältnisse aus dem zentralen Gebiet der vulkanischen Aerosolschicht nicht vorliegen (Patterson et al., 1983), erfolgen die anschließenden Rechnungen ebenfalls mit dem im Kapitel 6 vorgeschlagenen komplexen Brechungsindex.

Die unter Verwendung der berechneten Teilchenzahldichten (Kapitel 8.3) resultierenden Erwärmungsraten zu unterschiedlichen Zeiten nach der Eruption des *El Chichón* sind in Abb. 9.5 (Seite 106) dargestellt. Es treten deutlich höhere Erwärmungs- und

Abkühlungsraten als in der ungestörten Atmosphäre auf. Im tropischen und subtropischen Bereich der Höhenregion von 12 km bis 20 km sind vier Wochen nach dem vulkanischen Teilcheneintrag erhöhte Erwärmungsraten festzustellen. Die Ursachen dafür sind die Absorption solarer Strahlung und der langwellige Strahlungsaustausch mit der wärmeren Troposphäre und dem Erdboden. Im oberen Bereich maximaler Teilchenzahldichte werden die höchsten Erwärmungsraten mit maximal 3 K/d erreicht. Oberhalb dieser Schicht werden durch die langwellige Abstrahlung in den Weltraum enorme Abkühlungsraten hervorgerufen, die zwischen 30 und 33 km Höhe maximal -26 K/d betragen. Im weiteren Verlauf nach der Eruption nimmt die Nettoabkühlung im oberen Modellgebiet kräftig ab, so daß nach einem Jahr im oberen Modellgebiet Raten von etwa -6 K/d bis -10 K/d auftreten.

Anhand der in Abb. 9.6 (Seite 107) dargestellten Differenzen der Nettoerwärmungsraten in gestörten und ungestörten Zeiten kann der alleinige Einfluß vulkanischer Teilchen veranschaulicht werden. Ein halbes Jahr nach der Eruption treten höhere Nettoerwärmungsraten in der tropischen und subtropischen Breitenzone der unteren Stratosphäre auf. Im weiteren Verlauf dehnt sich das Gebiet höherer Nettoerwärmungsraten verglichen zu vulkanisch ungestörten Bedingungen auch auf mittlere Breiten und bis fast 30 km Höhe aus. Mit der deutlich höheren Teilchenzahldichte, insbesondere die der optisch wirksamen der Klasse 2, und einem größeren Radius r_m gegenüber dem der ungestörten Atmosphäre werden im Gebiet der Sulfatschicht auch noch ein Jahr nach der Eruption Differenzen der Nettoerwärmungsraten bis zu 1.5 K/d ermittelt. Sogar zwei Jahre nach dem Vulkanausbruch wird in dieser Region eine noch etwa 50% höhere Erwärmungsrate im Vergleich zur vulkanisch unbeeinflussten Atmosphäre berechnet. Ebenso ist der Bereich positiver Raten ein bis zwei Jahre nach der vulkanischen Störung noch um 7 bis 4 km in größere Höhen ausgedehnt. Im gesamten oberen Modellgebiet und in hohen Breiten der mittleren Stratosphäre resultieren gegenüber der vulkanisch unbeeinflussten Atmosphäre höhere Nettoabkühlungsraten. Vier Wochen nach der Eruption sind die ermittelten Differenzen der Nettoabkühlungsraten mit 24 K/d sehr hoch, die in den nachfolgenden Wochen jedoch kräftig abnehmen, so daß ein Jahr danach Differenzen bis 2 K/d auftreten.

Um die Wirkung der vulkanischen Teilchen in den beiden Spektralbereichen zu verdeutlichen, wird in Abb. 9.7 die globale Verteilung der Erwärmungsraten einen Monat nach dem Vulkanausbruch getrennt für den solaren und terrestrischen Spektralbereich dargestellt. Sowohl im solaren als auch im terrestrischen Bereich ist das Maximum der Erwärmungs- und Abkühlungsraten am Oberrand der vulkanischen Aerosolteilchenwolke zu finden. Die Strahlungstransportrechnungen liefern im solaren Bereich maximale Raten von 4.8 K/d. Die im langwelligen Spektralbereich auftretenden Abkühlungsraten mit Werten bis zu -30 K/d sind bemerkenswert hoch, da die im langwelligen Bereich absorbierenden Aerosolteilchen neben der hohen Absorption auch in Abhängigkeit von der Temperatur emittieren. Diese hohe Nettoabkühlung wird durch die Erwärmungsraten im kurzwelligen Spektralbereich nicht ausgeglichen.

Unsicherheiten bei der Bestimmung der Erwärmungsraten ergeben sich einerseits aus dem angenommenen höhenkonstanten Mischungsverhältnis der Schwefelsäure und dem unbekanntem Aggregatzustand der Aerosolteilchen sowie andererseits aus dem in den einzelnen Wellenlängenbereichen konstant angenommenen Brechungsindex. Hinsichtlich der zahlreichen Annahmen in den Modellvariablen sind die Simulationen der durch vulkanische Teilchen verursachten Erwärmungsraten derzeit noch wenig verbindlich. Zusätzlich sollte bei der Interpretation der ermittelten Nettoraten vier Wochen nach der Eruption (Abb. 9.5) folgendes bemerkt werden. Zwar ist der Einfluß von Sulfatteilchen auf den Strahlungshaushalt auf Grund ihrer höheren Aufenthaltszeit in der Atmosphäre weitaus größer als der von vulkanischen Silikat- oder Ascheteilchen (Rampino et al., 1984), aber die höhere Anzahl an Silikatascheteilchen unmittelbar nach der Eruption würde das Absorptionsvermögen im sichtbaren Spektralbereich erhöhen (Kondratyev, 1983; Vupputuri et al., 1984), so daß größere Erwärmungsraten als mit der Annahme von Schwefelsäuretröpfchen zu erwarten sind. Silikatasche besitzt in diesem Spektralbereich einen Imaginärteil des Brechungsindex im Bereich 0.001 bis 0.02 (Patterson et al., 1983). Dem obigen Effekt wirkt entgegen, daß die vulkanischen Teilchen erst in zwei bis vier Wochen einmal um die Erde zirkulieren (z.B. Pollack et al., 1983), wogegen in dem zweidimensionalen Transportmodell sofort eine zonale Verteilung angenommen wird. Deshalb sollten sowohl die simulierten Teilchenverteilungen als auch die damit verbundenen Strahlungsflußänderungen erst einige Monaten nach dem Vulkanausbruch, etwa ab Monat

Juli, für weitere Auswertungen herangezogen werden.

Diese teilchenbedingten Erwärmungsraten im Bereich höherer Teilchenzahldichte nach dem Ausbruch des *El Chichón* stehen in der unteren Stratosphäre qualitativ in Übereinstimmung mit den beobachteten Temperaturanomalien. Anhand zonaler Mittel der Juli-Temperaturen im 30-hPa-Niveau (≈ 24 km) konnte Labitzke et al. (1983 und 1984) aus Messungen zeigen, daß nach dem Vulkanausbruch eine deutliche Temperaturerhöhung über tropischen nördlichen Breiten von 10° bis 30°N verursacht wird, die mehr als drei Standardabweichungen des 18-jährigen Mittels (Zeitraum 1964 bis 1981) beträgt. Die höchsten Abweichungen vom zonalen Mittel treten bei 10°N in 30-hPa-Niveau mit 4 bis 5 K auf. Im 50-hPa-Niveau (≈ 20 km) sind die Abweichungen geringer; maximal bis 2 K in tropischen Breiten.

In der Meßreihe der atmosphärischen Transmission der Station Mauna Loa (Hawaii) wird im nördlichen Sommer nach der Vulkaneruption bei einer Wellenlänge von $0.5 \mu\text{m}$ eine Verminderung von 15% gegenüber den Vormonaten verzeichnet; auch im nachfolgenden Jahr ist die Transmission immer noch um 5% durch vulkanisches Aerosol reduziert (Hofmann, 1988). Pyranometermessungen am gleichen Ort liefern im Juni nach dem Ausbruch eine Reduktion der Globalstrahlung um 5.6% (Pollack et al., 1983).

Berechnungen mit einem eindimensionalen Strahlungsmodell von Pollack et al. (1983) zeigen gegenüber der vulkanisch kaum gestörten Atmosphäre ebenfalls einen Anstieg der Temperatur in der mittleren Stratosphäre, die in Abhängigkeit von der angenommenen optischen Dicke der vulkanischen Aerosolwolke 2 bis 6 K beträgt. Oberhalb der vulkanischen Aerosolteilchenwolke wird eine Temperaturabnahme bis -4 K zwischen 30 und 40 km Höhe simuliert.

Die ermittelten Erwärmungsraten sind empfindlich von dem Spektrum und der Zusammensetzung der Aerosolteilchen und damit von der Vorgabe des komplexen Brechungsindex m^* abhängig. Zum Vergleich mit den oben angeführten Strahlungs-transportrechnungen bei gestörten Bedingungen (im folgenden mit Fall I bezeichnet)

wird für die weitere Simulation (Fall II) der Brechungsindex der vulkanisch eingebrachten Teilchen derart gewählt, daß im gesamten kurzwelligen Spektralbereich ein einheitlicher Index $m^* = 1.45 - 1 \cdot 10^{-6}i$ und im langwelligen Bereich $m^* = 1.50 - 8 \cdot 10^{-3}i$ gilt, der für verunreinigte H_2SO_4 -Teilchen charakteristisch ist (zum Beispiel Asaturov, 1984; Luther, 1976; Toon et al., 1976). Damit wird im infraroten Spektralbereich ein deutlich geringeres Absorptionsvermögen der Aerosolteilchen als für den bisher benutzten wellenlängenabhängigen Brechungsindex nach Palmer et al. (1975) im Fall I angenommen. Zum Vergleich mit Abb. 9.7 sind in Abb. 9.8 die im Fall II resultierenden Erwärmungsraten beider Spektralbereiche vier Wochen nach dem Vulkanausbruch dargestellt, da zu diesem Termin Unterschiede deutlich ausgeprägt sind. Im Gegensatz zum Fall I ist auf Grund der geringeren optischen Wirkung der Aerosolteilchen kein ausgeprägtes Maximum der Erwärmungs- bzw. Abkühlungsraten zu finden; die Erwärmung im solaren Bereich wird im wesentlichen nur durch die Ozonabsorption bedingt. Lediglich durch die Absorption des aus der unteren Atmosphäre kommenden langwelligen Strahlungsflusses wird der untere Teil der vulkanischen Aerosolwolke erwärmt.

Zur Verdeutlichung der Unterschiede zwischen Fall I und II sind die Differenzen der Nettoerwärmungsraten ein halbes Jahr nach der Eruption in Abb. 9.9 (Seite 110) aufgezeigt. Die unterschiedlich angenommene Absorptionsfähigkeit der vulkanisch eingebrachten Aerosolteilchen bewirken im Fall I bis zu 1.8 K/d höhere Erwärmungsraten im unteren und mittleren Modellgebiet und oberhalb von 28 km eine mit der Höhe zunehmend höhere Abkühlungsrate bis 4 K/d am oberen Modellrand. Die Reduktion des kurzwelligen Nettostrahlungsflusses im Höhenbereich der Stratosphäre beträgt im Juli im Fall I abhängig von der geographischen Zone 2.7% bis 10% und im Fall II 1.8% bis 6%, wobei die größeren Werte jeweils in hohen Breiten auftreten. Aus diesem Vergleich ist ersichtlich, daß eine dominante Nettoerwärmung durch vulkanische Teilchen in der unteren Stratosphäre nur bei Annahme der optischen Parameter von reinen Schwefelsäuretröpfchen zu erwarten ist.

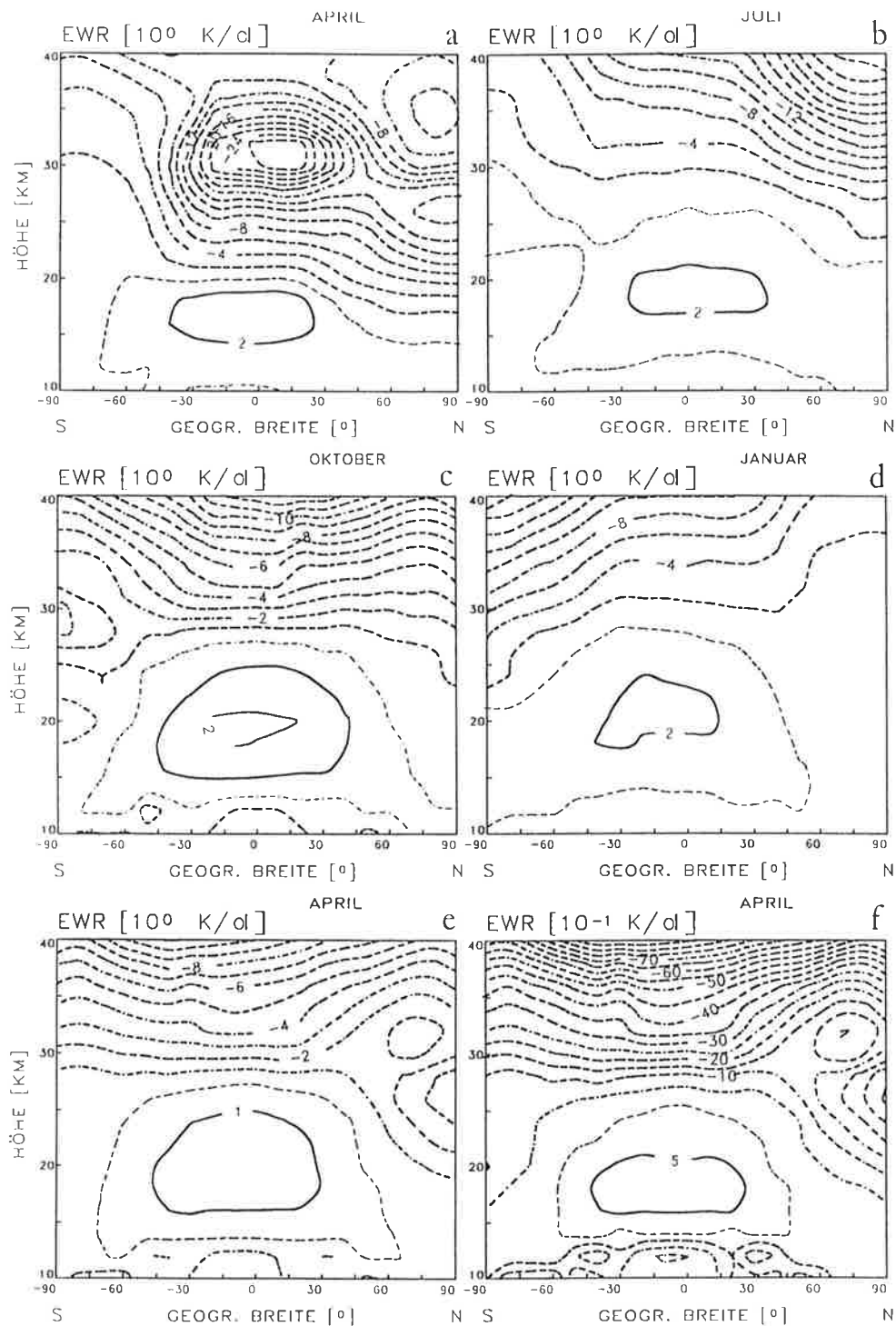


Abbildung 9.5: Nettoerwärmungsraten zu unterschiedlichen Zeiten nach Ausbruch des *El Chichón* als Funktion von geographischer Breite und Höhe unter Berücksichtigung der Ozon-, Wasserdampf- und CO_2 -Absorption sowie Streuung und Absorption der Aerosolteilchen; (a) 4 Wochen, (b) 3 Monate, (c) ein halbes Jahr, (d) 9 Monate, (e) ein Jahr und (f) zwei Jahre danach ((a) bis (e) in [K/d], (f) in [0.1 K/d]).

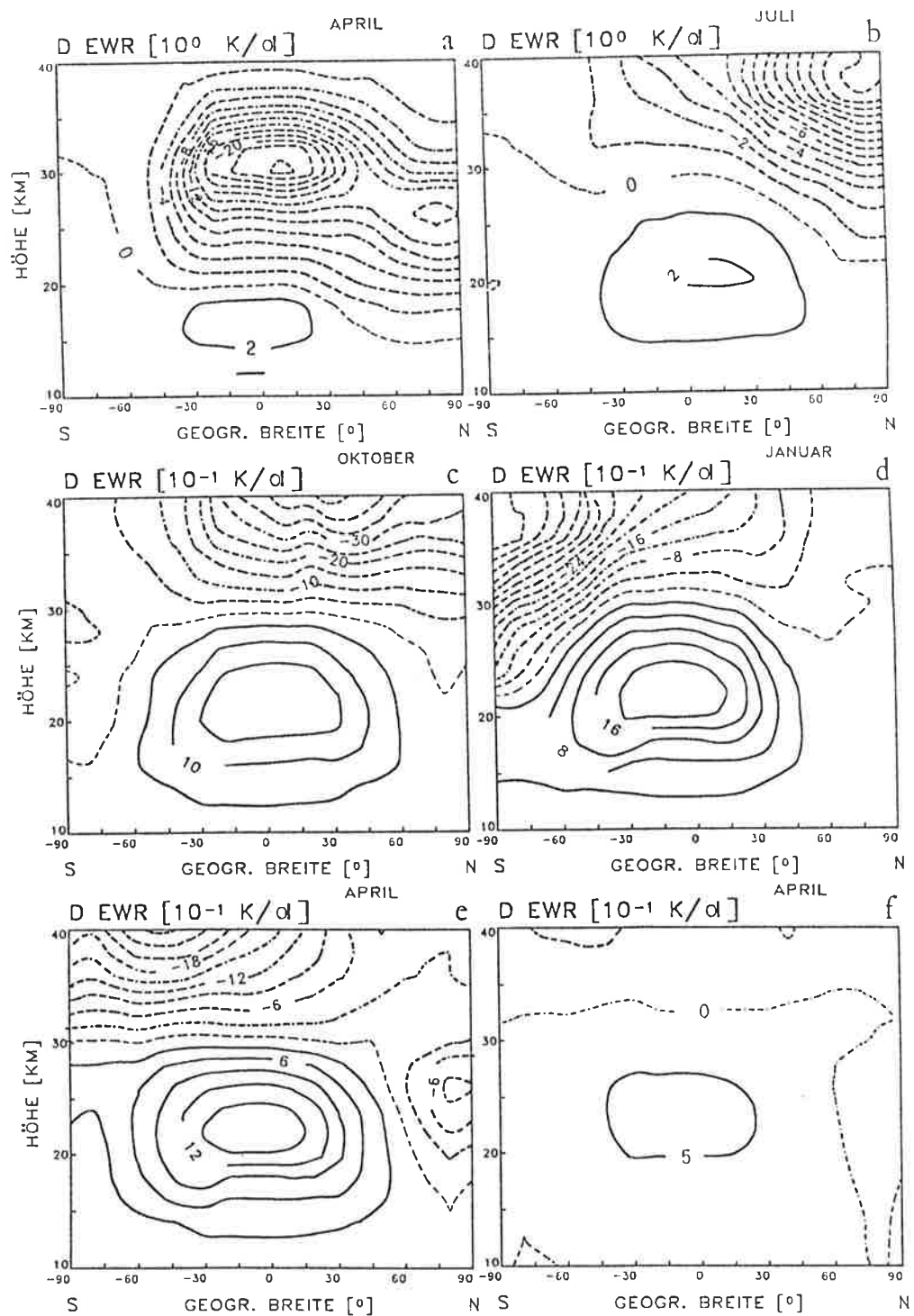


Abbildung 9.6: Differenz der Nettoerwärmungsraten in vulkanisch gestörten und ungestörten Bedingungen zu unterschiedlichen Zeiten nach dem Ausbruch des *El Chichón* als Funktion von geographischer Breite und Höhe ; (a) 4 Wochen, (b) 3 Monate, (c) ein halbes Jahr, (d) 9 Monate, (e) ein Jahr und (f) zwei Jahre danach ((a) und (b) in [K/d], (c) bis (f) in [0.1 K/d]).

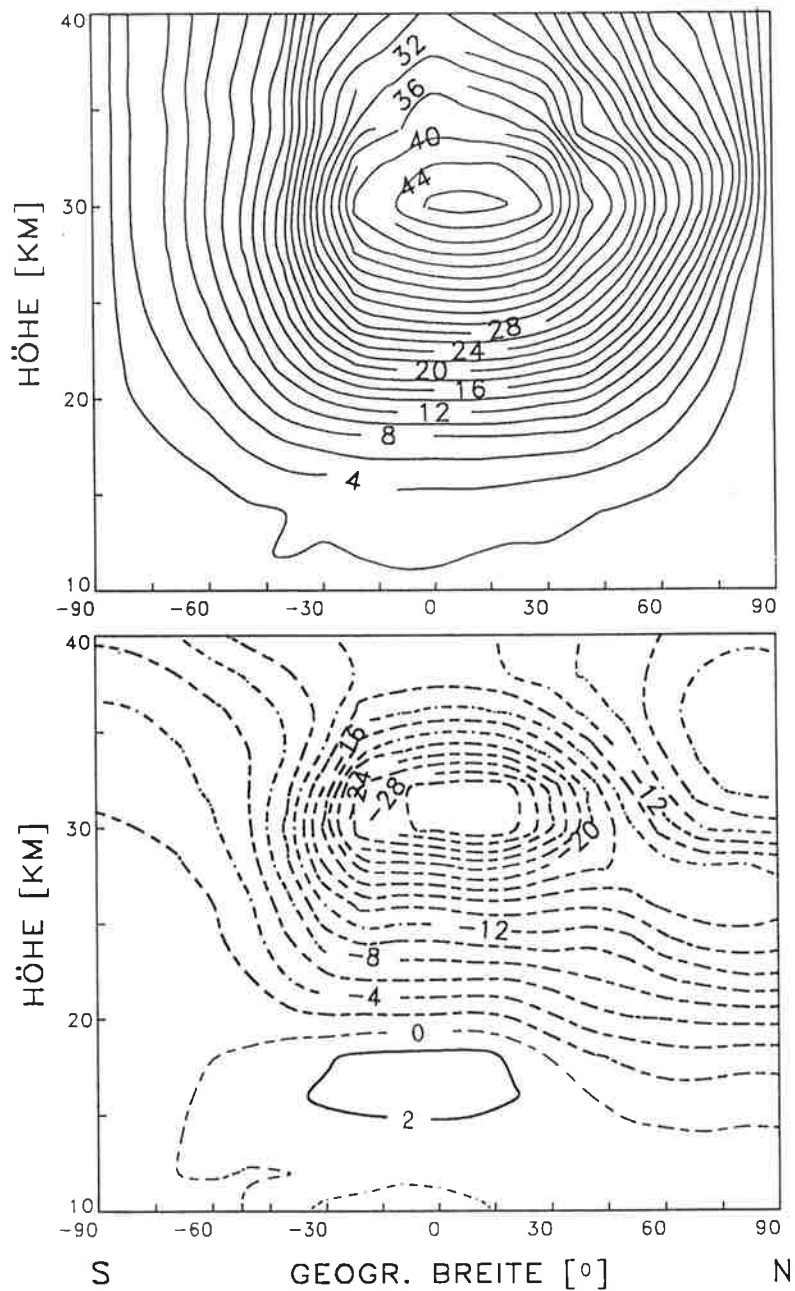


Abbildung 9.7: Erwärmungsraten für den kurzwelligen (oben in [0.1 K/d]) und langwelligen Spektralbereich (unten in [K/d]) vier Wochen nach der Eruption des *El Chichón* als Funktion von geographischer Breite und Höhe unter Berücksichtigung der Ozon-, Wasserdampf-, CO_2 -Absorption sowie Aerosolstreuung und -absorption.

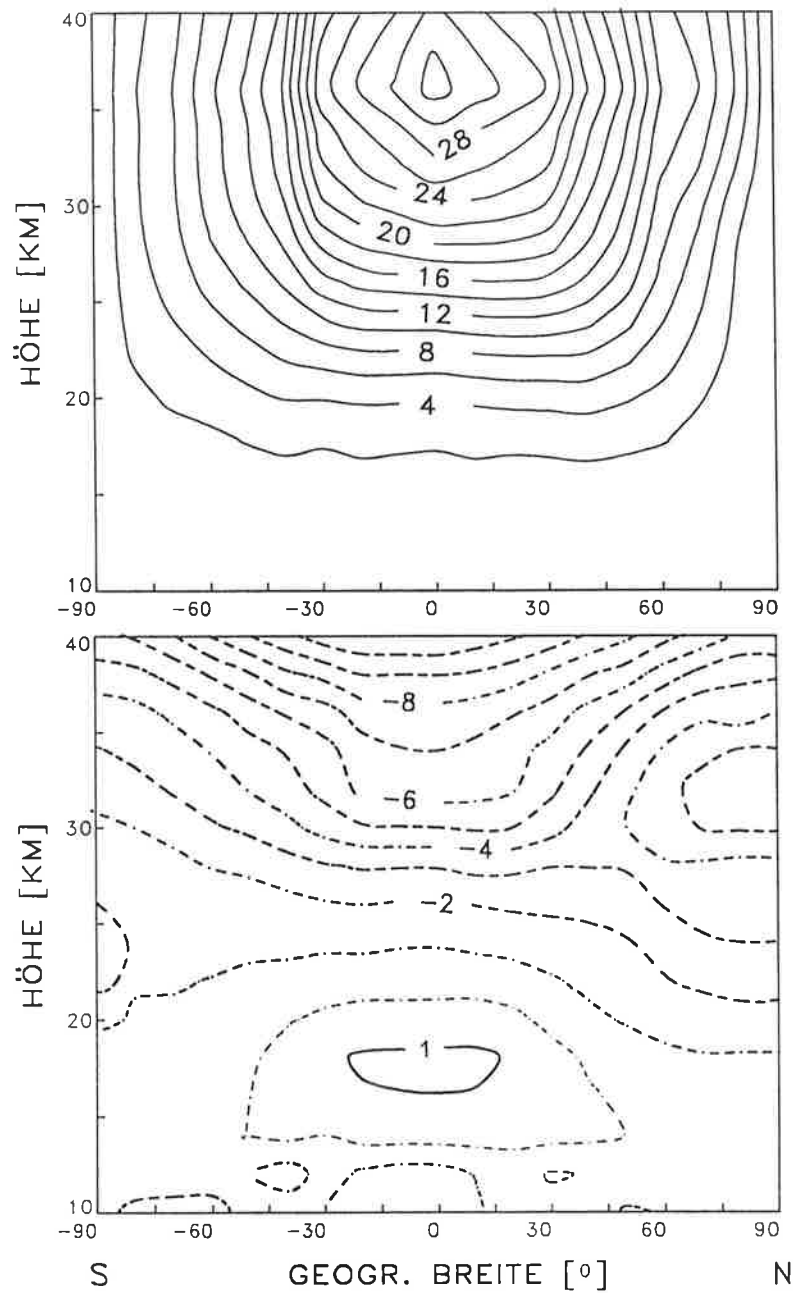


Abbildung 9.8: Erwärmungsraten für den solaren (oben in [0.1 K/d]) und terrestrischen Spektralbereich (unten in [K/d]) vier Wochen nach der Eruption des *El Chichón* als Funktion von geographischer Breite und Höhe unter Annahme eines konstanten komplexen Brechungsindexes für Aerosolteilchen.

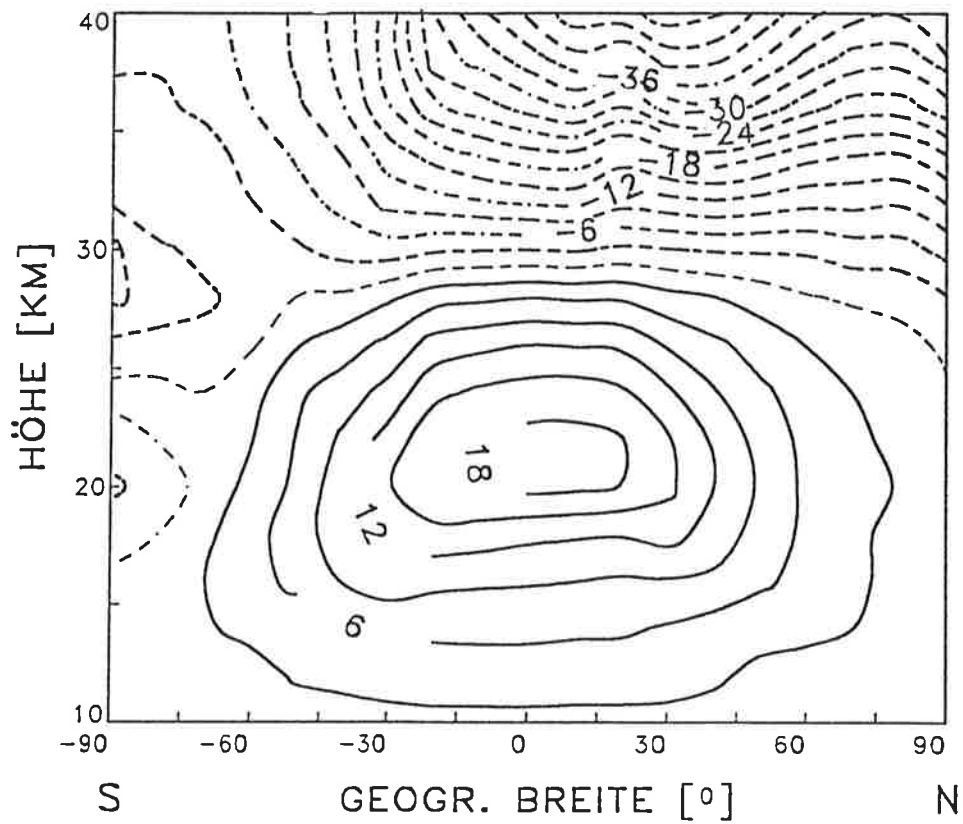


Abbildung 9.9: Differenz der Nettoerwärmungsraten (in 0.1 K/d) im Fall I und II ein halbes Jahr nach dem Ausbruch des *El Chichón* als Funktion von geographischer Breite und Höhe.

10 Schlußbemerkungen

Der wesentliche Beitrag dieser vorliegenden Untersuchung liegt in der Berechnung globaler Aerosolteilchenverteilungen für die Stratosphäre und obere Troposphäre unter ungestörten Bedingungen und bei Beeinflussung durch hochreichende Vulkanausbrüche. Zusammen mit den Ergebnissen des troposphärischen Transportmodells von Rehkopf (1984) sind somit zonale Mittel der Aerosolteilchenzahldichten in drei Größenklassen für meridionale Gitterweiten von 10 Grad unter Januar- und Julibedingungen von 0 bis 40 km Höhe errechnet worden, die zur Eingabe in ein globales Klimamodell notwendig sind.

Mit den Ergebnissen des zweidimensionalen Transportmodells für Aerosolteilchen und Schwefelkomponenten konnte die Existenz einer Schicht höherer Teilchenzahldichte in der Stratosphäre nachgewiesen werden. In Zeiten geringer Vulkanaktivität wird die stratosphärische Aerosolschicht neben dem Teilchenfluß aus der Troposphäre durch kontinuierliche Teilchenquellen in der Stratosphäre aufrechterhalten. Gasförmige Schwefelkomponenten gelangen durch turbulenten Transport von der Troposphäre in die Stratosphäre und werden dort durch chemische und photochemische Prozesse in Schwefelsäure umgewandelt, aus der neue Teilchen durch die Gas-Teilchen-Umwandlung entstehen. Aus diesem Grunde ist in ungestörten Zeiten der Anteil der beteiligten Schwefelgase für die Aerosolschicht entscheidend. Den Hauptanteil der stratosphärischen Schwefelquelle liefert Carbonylsulfid. Der erhebliche Einfluß reaktionskinetischer Daten auf die globalen Verteilungen der Gase wurde gezeigt. Deshalb sind weitere Überprüfungen der Gültigkeit der Reaktionskonstanten, gerade unter den Bedingungen tiefer Temperaturen und geringen Luftdrucks, erforderlich.

Durch hochreichende Vulkanausbrüche wird die stratosphärische Aerosolschicht über zwei bis drei Jahre wesentlich beeinflusst. Allerdings kann der vulkanische Eintrag von Aerosolteilchen nur mit großem Fehler abgeschätzt werden, der bei der Eruption des *El Chichón* mit 40 bis 50% angegeben wird (Mroz et al., 1983). Ebenso bleibt die Aerosolgrößenverteilung in den vulkanischen Aerosolwolken sowie die Zusammensetzung der Teilchen nahezu unbekannt. Die berechneten Teilchenzahldichten der mit-

telgroßen Teilchen sind auch noch mehrere Jahre nach dem Ausbruch höher als die der völlig ungestörten Atmosphäre. Mit der Voraussetzung, daß die Atmosphäre im letzten Jahrzehnt durch geringe Vulkanaktivitäten ständig gestört war, gelten die 3 bis 5 Jahre nach einer massiven Vulkaneruption, wie der des *El Chichón*, berechneten Teilchenzahldichten der Klasse 2 für die gering gestörte Stratosphäre. Die vulkanisch eingebrachten Teilchen der Klasse 1 wachsen durch Koagulationsprozesse schnell an, so daß bereits ein Jahr nach dem Vulkanausbruch der Zustand der nahezu ungestörten Atmosphäre erreicht wird. Vulkanisch eingebrachte Teilchen spielen außerdem eine wesentliche Rolle als Reaktionspartner für weitere heterogene Reaktionen auf Teilchenoberflächen (Cadle et al., 1975); jedoch lassen sich die atmosphärischen Reaktionskonstanten wegen fehlender kinetischer Daten nur grob abschätzen (Whitten, 1982).

Da ein globales Meßnetz für Aerosolteilchen bisher nicht existiert und nur wenige Abschätzungen von globalen Teilchenzahldichten vorliegen, ist die Vergleichbarkeit der vorliegenden Ergebnisse nur bedingt möglich. Eine realistische Ausbreitung der vulkanischen *El Chichón*-Aerosolwolken wäre jedoch erst mit Hilfe dreidimensionaler Simulation unter Berücksichtigung aktueller meteorologischer Daten möglich, da bei einem zweidimensionalen Transportmodell bereits mit Beginn des Vulkanausbruchs eine zonale Verteilung erfolgt und somit die meridionale Ausbreitung der Teilchen direkt nach der Eruption überschätzt wird.

Anhand der durchgeführten Strahlungsübertragungsrechnungen bei vulkanisch gestörten und ungestörten Bedingungen konnte der Einfluß der benötigten Parameter zur Bestimmung der optischen Eigenschaften von Aerosolteilchen herausgestellt werden. Für die Berechnung der Erwärmungsraten ist neben der Teilchenzahldichte und -zusammensetzung die Größenverteilung der Aerosolteilchen signifikant. Durch die Einteilung des Aerosolteilchenspektrums in lediglich drei Größenklassen läßt sich der charakteristische Parameter r_m einer vorgegebenen ZOL-Verteilungsfunktion nur sehr vereinfacht und höhenunabhängig vorgeben. Erst bei einer feineren Differenzierung der Teilchenklasseneinteilung kann der häufigste Radius aus der Teilchenanzahl für jeden Gitterpunkt des Modells unter den verschiedenen atmosphärischen Bedingungen bestimmt werden. Nach einer Eruption würde sich beispielsweise eine

Anhäufung größerer Teilchen in der unteren Modellregion in der höhenabhängigen Größenverteilung und damit im häufigsten Radius widerspiegeln. Besonders bei Teilchen mittlerer Größe, aus denen die Aerosolschicht im wesentlichen besteht, gewinnt eine feinere Klasseneinteilung an Bedeutung. Damit würden neben einer verbesserten Modellierung der Koagulationsprozesse auch die Bestimmung der optischen Eigenschaften der Aerosolteilchen für die Strahlungsübertragungsrechnungen mit höherer Genauigkeit ermöglicht.

Da insbesondere die chemische Zusammensetzung vulkanischer Teilchen und damit der zur Bestimmung der optischen Parameter notwendige wellenlängenabhängige komplexe Brechungsindex mit großen Unsicherheiten behaftet ist, können die vorgenommenen Simulationen des Strahlungstransportes nur für eine grobe Abschätzung des möglichen Einflusses vulkanischer Teilchen auf den Strahlungshaushalt dienen. Mit einem angenommenen Brechungsindex von Schwefelsäuretröpfchen liefern die vulkanische Aerosolteilchen bis zu eineinhalb Jahren nach dem Ausbruch des *El Chichón* einen wesentlichen Beitrag zu den atmosphärischen Erwärmungsraten. Die Ergebnisse des Strahlungsmodells weisen auf eine Nettoerwärmung in der unteren Stratosphäre und eine Nettoabkühlung in der Region darüber. Es ist anzunehmen, daß die teilchenbedingten Störungen auf den Strahlungshaushalt kurze Zeit nach dem Ausbruch durch den erhöhten Anteil an Ruß und Ascheteilchen und damit ansteigender optischer Dicke sogar noch größer sind.

Die klimatischen Veränderungen infolge geänderter Mischungsverhältnisse der klimawirksamen Spurenstoffe oder erhöhter Teilchenzahldichten wirken über die Temperaturabhängigkeit der chemischen Reaktionen auf die Verteilung der Spurengase zurück. Ebenso ist auch die Bildung von Aerosolteilchen aus Gasen empfindlich von den Umgebungsbedingungen abhängig. Deshalb setzt eine Aussage über die verursachten wirklichen Temperaturänderungen durch Aerosolteilchen Modellrechnungen voraus, die sowohl die Wechselwirkung zwischen allgemeiner Zirkulation und Strahlungstransport als auch die Ausbreitung von Spurengasen und Aerosolteilchen mit den wesentlichen reaktionskinetischen Schritten und mikrophysikalischen Prozessen beinhalten. Diese umfangreichen Simulationen bleiben zukünftigen Untersuchungen vorbehalten.

Danksagung

Die vorliegende Untersuchung wurde von Herrn Prof. Dr. H. Hinzpeter angeregt, der durch zahlreiche Diskussionen und kritische Anmerkungen den stetigen Fortgang der Arbeit förderte. Hierfür und für die wissenschaftliche Betreuung sowie sorgfältige Durchsicht der Arbeit bedanke ich mich bei ihm sehr herzlich.

Bei Herrn Prof. Dr. H. Graßl möchte ich mich für eine Reihe von Anregungen und Hinweise bedanken, die bei der Interpretation der Ergebnisse eine wertvolle Hilfe waren. Für die freundlicherweise zur Verfügung gestellten Programme und Daten danke ich Herrn Dr. S. Bakan, Herrn Dr. J. Rehkopf und Herrn Dr. P. Zimmermann. Mein Dank gilt auch Frau M. Grunert für das Zeichnen mehrerer Abbildungen. Ferner sei an dieser Stelle für die freundschaftliche Unterstützung vieler Mitarbeiter des Hamburger Meteorologischen Institutes und des Max-Planck-Institutes für Meteorologie bei der Anfertigung der Arbeit gedankt.

Diese Arbeit wurde durch das Bundesministerium für Forschung und Technologie finanziell gefördert.

Verzeichnis der wichtigsten verwendeten Symbole und Abkürzungen

1. Symbolliste

a	Erdradius
B	Beweglichkeit
c_p	Spezifische Wärme bei konstantem Druck
F	Beimengungsfluß
F_{Net}	Nettostrahlungsfluß
G	Freie Enthalpie
g	Schwerebeschleunigung
h_T	Tropopausenhöhe
J	Kernbildungsrate
K	Diffusionskoeffizient
\bar{K}	Gemittelte Koagulationsfunktion
$K(r_1, r_2)$	Koagulationskonstante
k	Reaktionskonstante
k	Imaginärteil des komplexen Brechungsindex
\tilde{k}	Boltzmann-Konstante
L	Strahldichte
M	Mischungsverhältnis
m	Molekülmasse
m^*	Komplexer Brechungsindex
n	Realteil des komplexen Brechungsindex
n_i	Zonalmittel der Beimengung i
$n(r)$	Größenverteilung
N	Molekülzahl
O_{3G}	Ozonschichtdicke
P	Dampfdruck
$P(\Theta)$	Streufunktion
p	Druck
$phot$	Photooxidationsrate

Q_i	Quellen der Beimengung i
$Q_{e,s}$	Wirkungsquerschnitte der Extinktion und der Streuung
R	Gaskonstante
r	Teilchenradius
r_m	Häufigster Radius
\bar{r}	Mittlerer Radius
r^*	Kritischer Radius
S_i	Senken der Beimengung i
S^*	Kritische Übersättigung
T	Temperatur
U_{SO_2}	SO_2 -Umwandlungsrate
v	Geschwindigkeit
$wash$	Washout-Rate
w_s	Sedimentationsgeschwindigkeit
X	Molenbruch
X'	Tropfenzusammensetzung
y	Horizontalkoordinate
z	Höhe
z_{max}	Höhe des Ozon-Maximums
β	Kollisionsrate
Δt	Zeitschritt
δ	Optische Dicke
η	Viskosität
Θ	Streuwinkel
λ	Mittlere freie Weglänge
μ	Chemisches Potential
ρ	Luftdichte
σ	Parameter in ZOL-Verteilung
σ^*	Oberflächenspannung
σ_e	Extinktionskoeffizient
ϕ	Geographische Breite
$\tilde{\omega}$	Reflexionsvermögen bei Einfachstreuung

2. Liste der Abkürzungen

<i>CO</i>	Kohlenmonoxid
<i>CO₂</i>	Kohlendioxid
<i>COS</i>	Carbonylsulfid
<i>CS₂</i>	Carbondisulfid
<i>H₂O</i>	Wasser
<i>HO₂</i>	Hydroperoxy -Radikal
<i>H₂S</i>	Schwefelwasserstoff
<i>H₂SO₄</i>	Schwefelsäure
<i>O₃</i>	Ozon
<i>O(³P)</i>	Atomarer Sauerstoff im Grundzustand
<i>O(¹D)</i>	Sauerstoff im angeregten Zustand
<i>OH</i>	Hydroxyl-Radikal
<i>S</i>	Schwefel
<i>SH</i>	Hydrosulfid-Radikal
<i>SO</i>	Schwefelmonoxid
<i>SO₂</i>	Schwefeldioxid
<i>ZOL</i>	Zero-Order-Logarithmic

Literaturverzeichnis

- Ackermann, T.P. (1988):** Aerosol and climate modeling. In: Aerosols and climate. Hrsg. V. Hobbs, M.P. McCormick, Deepak Publ., 335-348.
- Armerding, W., F.J. Comes, K.H. Gericke (1987):** Untersuchungen zum troposphärischen OH. In: Atmosphärische Spurenstoffe, Hrsg: R. Jaenicke, Weinheim, 103-120.
- Arnold, F., R. Fabian (1980):** First measurements of gas phase sulfuric acid in the stratosphere. Nature, 283, 55-57.
- Arnold, F., T.H. Burke (1983):** New H₂SO₄ and HSO₃ vapour measurements in the stratosphere - evidence for a volcanic influence. Nature, 301, 293-295.
- Asaturov, M.L. (1984):** Principles of the evolution of aerosol after large emissions into the stratosphere. Meteorol. i Gidrolog., 11, 59-67.
- Bakan, S. (1982):** Strahlungsgetriebene Zellularkonvektion in Schichtwolken. Dissertation, Universität Hamburg, 99 S.
- Bakan, S., H. Hinzpeter (1988):** Atmospheric radiation. In: Landolt-Börnstein, Neue Serie, Vol. 4b Springer-Verlag Berlin, 110-186.
- Barth, C.A., R.W. Sanders, R.J. Thomas, G.E. Thomas, B.M. Jakowsky, R.A. West (1983):** Formation of the El Chichon aerosol cloud. Geophys. Res. Lett., 10, 993-996.
- Baumgartner, A., H. Mayer, W. Metz (1976):** Globale Verteilung der Oberflächenalbedo. Met. Rdsch., 29, 38-43.
- Beilke, S., G. Gravenhorst (1978):** Heterogeneous SO₂-Oxidation in the droplet phase. Atm. Env., 12, 231-239.
- Bergstrom, R.W. (1973):** Extinktions- und Absorptionskoeffizienten des atmosphärischen Aerosols als Funktion der Teilchengröße. Beitr. Phys. Atm., 46, 223-234.
- Bigg, E.K. (1975):** Stratospheric particles. J. Atm. Sci., 32, 910-917.

- Bigg, E.K. (1976):** Size distributions of stratospheric aerosols and their variations with altitude and time. *J. Atm. Sci.*, 33, 1080-1086.
- Burnett, C.R., E.B. Burnett (1984):** Observational results on the vertical column abundance of atmospheric hydroxyl: Description of its seasonal behavior 1977-1982 and of the El Chichon perturbation. *J. Geophys. Res.*, 89, 9603-9611.
- Busch, F. (1911):** Wie entsteht die Dämmerung? *Kosmos*, 9, 332-336.
- Cadle, R.D. (1975):** Volcanic emission of halides and sulfur components to the troposphere and stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 80, 1650-1652.
- Cadle, R.D., G.W. Grams (1975):** Stratospheric aerosol particles and their optical properties. *Rev. Geophys. Space Phys.* 22, 475-501.
- Capone, L.A., O.B. Toon, R.C. Whitten, R.P. Turco, C.A. Riegel, K. Santhanam (1983):** A two-dimensional model simulation of the El Chichon volcanic eruption cloud. *Geophys. Res. Lett.* 10, 1053-1056.
- Carey, S., H. Sigurdsson (1986):** The 1982 eruptions of El chichon volcano, Mexico: observations and numerical modelling of tephra-fall distribution. *Bull. Volcanol.*, 48, 127-141.
- Cronin, J.F. (1971):** Recent volcanism and the stratosphere. *Science*, 172, 847-849.
- Crutzen, P.J. (1975):** A two-dimensional photochemical model of the atmosphere below 55 km: estimates of natural and man-caused ozone perturbations due to NO_x . Fourth conference on CIAP, 246-279.
- 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., U. Schmailzl (1983):** Chemical budgets of the stratosphere. *Planet Space Sci.*, 31, 1009-1032.
- Crutzen, P.J. (1985):** Persönliche Mitteilung.
- Dave, J. (1968):** Report Nr. 320-3238, Mai, IBM Scientific Center, Palo Alto, California.

- DeLuisi, J.J., B.M. Herman (1977):** Estimates of solar radiation by volcanic stratospheric aerosols from Agung using surface-based observations. *J. Geophys. Res.*, 82, 3477-3480.
- Dütsch, H.U. (1971):** Photochemistry of atmospheric ozone. In: *Advances Geophys.*, 15, 219-322.
- Dütsch, H.U. (1978):** Vertical ozone distribution on a global scale. *Pageoph.*, 116, 512-529.
- Enquete-Kommission (1988):** Schutz der Erdatmosphäre - eine internationale Herausforderung. Bericht der Enquete-Kommission des 11. Deutschen Bundestages, Bonn, 583 S.
- Espenscheid, W.F., M. Kerker, E. Matijevic (1964):** Logarithmic distribution functions for colloidal particles. *J. Phys. Chem.*, 68, 3093-3097.
- Fabian, P. (1987):** Atmosphäre und Umwelt. Springer-Verlag Berlin, 133 S.
- Fabian, P.(1988):** Antartisches Ozonloch: Indizien weisen auf Umweltverschmutzung. *Phys. Bl.*, 44, 1, 2-7.
- Farlow, N.H., G.V. Ferry, H.Y. Lem, D.M. Hayes (1979):** Latitudinal variations of stratospheric aerosols. *J. Geophys. Res.*, 84, C2, 733-743.
- Finlayson-Pitts, B.J., J.N. Pitts (1986):** Atmospheric chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques. J. Wiley, New York, 1098 S.
- Flohn, H. (1989):** Ändert sich unser Klima? In: *Mannheimer Forum 88/89*, Boehringer, Mannheim, 135-189.
- Flood, H. (1934):** Tropfenbildung in übersättigten Äthylalkohol-Wasserdampfgemischen. *Z. Phys. Chem.*, 170 A, 286-294.
- Freeman, K.P., K. Liou (1979):** Climatic effects of cirrus clouds. *Adv. Geophys.*, 21, 231-287.
- Fuchs, N.A. (1964):** The mechanics of aerosol. Pergamon Press, 408 S.

- Georgii, H.W. (1989):** Schwefelverbindungen in der Atmosphäre. PROMET, 374, 65-72.
- Gidel, L.T., P.J. Crutzen, J. Fishman (1983):** A two-dimensional photochemical model of the atmosphere. 1. Chlorcarbon emissions and their effect on stratospheric ozone. J. Geophys. Res., 88, 6622-6640.
- Gmitro, J.I., T. Vermeulen (1964):** Vapor-liquid equilibria for aqueous sulfuric acid. Amer. Inst. Chem. Engin. J., 10, 740-746.
- Graßl, H. (1978):** Strahlung in getrübbten Atmosphären und in Wolken. Hamburger Geophys. Einzelschriften, 37, 136 S.
- Graßl, H. (1988):** What are the radiative and climate consequences of the changing concentration of atmospheric aerosol particles? In: The changing atmosphere. Dahlem workshop reports Hrsg. F.S. Rowland, I.S.A. Isaksen, John Wiley and sons, 281 S., 187-199.
- Green, A.E.S. (1964):** Attenuation by ozone and the earth's albedo in the middle ultraviolet. Appl. Opt., 3, 203-208.
- Hamill, P., O.B. Toon, C.S. Kiang (1977):** Microphysical processes affecting stratospheric aerosol particles. J. Atm. Sci., 34, 1104-1119.
- Hamill, P., C.S. Kiang, R.D. Cadle (1977):** The nucleation of H₂SO₄-H₂O solution aerosol particles in the stratosphere. J. Atm. Sci., 34, 150-162.
- Hamill, P., R.P. Turco, O.B. Toon, C.S. Kiang, R.C. Whitten (1982):** An analysis of various nucleation mechanism for sulfate particles in the stratosphere. J. Aerosol Sci., 13, 561-585.
- Hansen, J.E., J.W. Hovenier (1974):** Interpretation of the polarization of venus. J. Atm. Sci., 31, 1137-1160.
- Harshvardhan, R.D. Cess (1976):** Stratospheric aerosols: Effect upon atmospheric temperature and global climate. Tellus, 28, 1-10.
- Hering, W.S., C.N. Tonart, T.R. Borden (1967):** Ozone heating and radiative equilibrium in the lower stratosphere. J. Atm. Sci., 24, 402-413.

- Hofmann, D.J., J.M. Rosen, T.J. Pepin, R.G. Pinnick (1975):** Stratospheric aerosols measurements: time variations at northern mid-latitudes. *J. Atm. Sci.*, 32, 1446-1456.
- Hofmann, D.J., J.M. Rosen (1980):** Stratospheric sulfuric acid layer: evidence for an anthropogenic component. *Science*, 208, 1368-1370.
- Hofmann, D.J., J.M. Rosen (1981):** On the background stratospheric aerosol layer. *J. Atm. Sci.*, 38, 168-181.
- Hofmann, D.J., J.M. Rosen (1983):** Stratospheric sulfuric acid fraction and mass estimate for the 1982 volcanic eruption of El Chichon. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 313-316.
- Hofmann, D.J. (1987):** Perturbations to the global atmosphere associated with the El Chichon volcanic eruption of 1982. *Rev. Geophys.*, 25, 4, 743-759.
- Hofmann, D.J. (1988):** Aerosols from past and present volcanic emissions. In: *Aerosols and climate*. Hrsg. V. Hobbs, M.P. McCormick, Deepak Publ., 195-214.
- Inn, E. (1979):** COS in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 6, 191-193.
- Inn, E., J.F. Vedder, D. O'Hara (1981):** Measurement of stratospheric sulfur constituents. *Geophys. Res. Lett.*, 8, 5-8.
- Jaeschke, W., R. Schmitt, H.W. Georgii (1976):** Preliminary results of stratospheric SO₂ measurements. *Geophys. Res. Lett.*, 3, 517-519.
- Junge, C.E., C.W. Chagnon, J.E. Manson (1961):** Stratospheric aerosols. *J. Meteor.*, 18, 81-108.
- Junge, C. (1987):** Kreisläufe von Spurengasen in der Atmosphäre. In: *Atmosphärische Spurenstoffe*, Hrsg. R. Jaenicke, VCH Verlagsgesellschaft Weinheim, 443 S.
- Käselau, K.H., P. Fabian, H.Rohrs (1974):** Measurements of aerosol concentration up to a height of 27 km. *Pure Appl. Geophys.*, 112, 877-885.

- Kasten, F. (1968):** Falling speed of aerosol particles. *J. Appl. Met.*, 7, 944-947.
- Kiang, C.S., D. Stauffer, V.A. Mohnen, J. Bricard, B. Vigla (1973):** Heteromolecular nucleation theory applied to gas-to-particle conversion. *Atm. Env.*, 7, 1279-1283.
- Kiehl, J.V., V. Ramanathan (1983):** CO₂ radiative parameterization used in climate models: comparison with narrow band models and with laboratory data. *J. Geophys. Res.*, 88, 5191-5202.
- Kiehl, J.V., S. Solomon (1986):** On radiative balance of the stratosphere. *J. Atm. Sci.*, 43, 1525-1534.
- Kley, D., A. Volz (1987):** Troposphärisches Ozon und Klima. In: *Globales Klima*, VDI-Schriftenreihe Nr. 7, 97-114.
- Knollenberg, R.G., D. Huffman (1983):** Measurements of the aerosol size distributions in the El Chichon cloud. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 1025-1028.
- Kondratyev, K.Y. (1983):** Volcanoes and climate. WCP 54, WMO/TD Nr. 166.
- Kondratyev, K.Y. (1969):** Radiation in the atmosphere. New York, Academic Press, 912 S.
- Krueger, A.J. (1983):** Sighting of El Chichon sulfur dioxide clouds with the Nimbus-7 total ozone mapping spectrometer. *Science*, 220, 1377-1379.
- Kurylo, M.J. (1978):** Flash photolysis resonance fluorescence investigation of the reactions of OH-radicals with COS and CS₂. *Chem. Phys. Lett.*, 58, 238-242.
- Labitzke, K. (1983):** Temperature effects in the stratosphere of the April 4, 1982 eruption of El Chichon, Mexico. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 24-26.
- Labitzke, K., B. Naujokat (1983):** On the variability and on trends of the temperature in the middle stratosphere. *Beitr. Phys. Atm.*, 56, 495-507.
- Labitzke, K., B. Naujokat (1984):** On the effect of volcanic eruptions of mount Agung and El Chichon on the temperature of the stratosphere. *Geof. Int.*, 23, 223-232.

- Lacis, A.A., J.E. Hansen (1974):** A parameterization for the absorption of solar radiation in the earth's atmosphere. *J. Atm. Sci.*, 31, 118-133.
- Lamb, H.H. (1983):** Update of the chronology of assessments of the volcanic dust veil index. *Clim. Monitor*, 12, 79-90.
- Lenoble, J., C. Brogniez (1984):** A comparative review of radiation aerosol models. *Beitr. Phys. Atm.*, 57, 1-20.
- Liou, K. (1980):** An introduction to atmospheric radiation. Academic Press, New York, 392 S.
- Luther, F. (1976):** Relative influence of stratospheric aerosols on solar and long-wave radiative fluxes for a tropical atmosphere. *J. Appl. Met.*, 1, 951-955.
- Marsal, D. (1976):** Die numerische Lösung partieller Differentialgleichungen in Wissenschaft und Technik. Bibliographisches Inst., Mannheim, 574 S.
- McCormick, M.P., T.J. Swissler (1983):** Stratospheric aerosol mass and latitudinal distribution of the El Chichon eruption cloud for October 1982. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 877-880.
- McKeen, S.A., S.C. Liu (1984):** On the chemistry of stratospheric SO₂ from volcanic eruption. *J. Geophys. Res.*, 89, 4873-4881.
- Meixner, F.X., H.W. Georgii, G. Ockelmann, H. Jäger, R. Reiter (1981):** The arrival of the Mt. St. Helens eruption cloud over Europe. *Geophys. Res. Lett.*, 8, 163-166.
- Meixner, F.X. (1982):** Die vertikale Verteilung des atmosphärischen Schwefeldioxids im Tropopausenbereich. *Ber. Inst. Met. der Universität Frankfurt*, Nr. 45, 191 S.
- Meixner, F.X. (1984):** The vertical sulfur dioxide distribution at the tropopause level. *J. Atm. Chem.*, 2, 175-189.
- Michalsky, J.J., B.M. Herman, N.R. Larson (1984):** Mid-latitude stratospheric aerosol layer enhancement by El Chichon: the first year. *Geophys. Res. Lett.*, 11, 76-79.

- Miller, C., D.L. Filkin, A.J. Owen, J.M. Steed, J.P. Jesson (1981):** A two dimensional model of stratospheric chemistry and transport. *J. Geophys. Res.*, 86, 12039-12065.
- Mitchell, J.M. (1982):** El Chichon, weather-maker of the century? *Weatherwise*, 35, 252-262.
- Mohlenkamp, C.R. (1968):** Accuracy of finite-difference methods applied to the advection equation. *J. Appl. Met.*, 7, 160-167.
- Mohnen, V.A., J.P. Lodge (1969):** General review and survey of gas-to-particle conversion. *Int. Conf. on Condensation and Ice Nuclei*, Prag, 69-71.
- Monin, A.S. (1986):** An introduction to the theory of climate. D. Reidel Publ. Company, Dordrecht, 261 S.
- Moortgat, G.K., C.E. Junge (1977):** The role of SO₂ oxidation for the background stratospheric sulfate layer in the light of new reaction rate data. *Pure Appl. Geophys.*, 115, 759-774.
- Mroz, E.J., A.S. Mason, W.A. Sedlack (1983):** Stratospheric sulfate from El Chichon and the mystery volcano. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 873-876.
- Nasa (1981):** Chemical kinetic and photochemical data for use in stratospheric modelling evaluation. Nr. 4, NASA panel for data evaluation, Jan. 15, NASA Jet Prop. Lab., Calif. Inst. Techn., Pasadena.
- Nasa (1985):** NASA Panel for data evaluation, Juli, NASA Jet Prop. Lab., Calif. Inst. Techn., Pasadena, Publ. 85-37.
- Newhall, C.G., S. Self (1982):** The volcanic explosivity index (VEI): an estimate of explosive magnitude for historical volcanism. *J. Geophys. Res.*, 87, C2, 1231-1238.
- Newiger, M. (1985):** Einfluß anthropogener Aerosolteilchen auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre. *Hamburger Geophys. Einzelschriften* Nr. 73, 88 S.

- Oberbeck, V.R., E.F. Danielsen, K.G. Snetsinger, G.V. Ferry, W. Fong, D.M. Hays (1983):** Effect of the eruption of El Chichon on stratospheric aerosol size and composition. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 1021-1024.
- Ockelmann, G.E.F., H.W. Georgii (1989):** Großräumige Verteilung des atmosphärischen Schwefeldioxids in der freien Troposphäre. *Met. Rdsch.*, 41, 136-146.
- Palmer, K.F., D. Williams (1975):** Optical constants of sulfuric acid: application to the cloud of venus. *Appl. Opt.*, 14, 208-219.
- Patterson, E.M., C.O. Pollard, I. Galindo (1983):** Optical properties of the ash from Chichon volcano. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 317-320.
- Pollack, J.B., O.B. Toon, A. Summers, B. Baldwin, C. Sagan, W. Van Camp (1976):** Stratospheric aerosols and climatic change. *Nature*, 263, 551-555.
- Pollack, J.B., T.P. Ackerman (1983):** Possible effects of the El Chichon volcanic cloud on the radiation budget of the northern tropics. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 1057-1060.
- Rampino, M.R., S. Self (1984):** Sulphur-rich volcanic eruptions and stratospheric aerosols. *Nature*, 310, 677-679.
- Ravishankara, A.R., N.M. Kreutter, R.C. Shah, P.H. Wine (1980):** Rate of reaction of OH with COS. *Geophys. Res. Lett.*, 7, 861-864.
- Reed, J.R., K.E. German (1965):** A contribution to the problem of stratospheric diffusion by large scale mixing. *Mon. Weath. Rev.*, 93, 313-321.
- Rehkopf, J. (1984):** Ein zweidimensionales globales Ausbreitungsmodell für Aerosole und Schwefelkomponenten. *Diss. Universität Hamburg*, 107 S.
- Reiss, M. (1950):** The kinetics of phase transition in binary systems. *J. Chem. Phys.*, 18, 840-848.
- Reiter, R., H. Jäger, W. Carnuth, W. Funk (1983):** The El Chichon cloud over central europe, observed by LIDAR at Garmisch-Partenkirchen during 1982. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 1001-1004.

- Reiter, R., H. Jäger (1986):** Results of 8-year continuous measurements of aerosol profiles in the stratosphere with discussion of the importance of stratospheric aerosols to an estimate of effects on the global climate. *Met. Atm. Phys.*, 35, 19-48.
- Richtmyer, R.D., K.W. Morton (1967):** Difference methods for initial value problems. Interscience publishers, New York.
- Rodhe, H., I.S.A. Isaksen (1980):** Global distribution of sulphur compounds in the troposphere estimates in a height/latitude transport model. *J. Geophys. Res.*, 85, 7401-7409.
- Rodhe, H., P.J. Crutzen, A. Vanderpol (1981):** Formation of sulfuric and nitric acid in the atmosphere during long-range transport. *Tellus*, 33, 132-141.
- Rosen, J.M. (1971):** The boiling point of stratospheric aerosols. *J. Appl. Met.*, 10, 1044-1046.
- Rosen, J.M., D.J. Hofmann, J. Laby (1975):** Stratospheric aerosol measurements II: the worldwide distribution. *J. Atm. Sci.*, 32, 1457-1462.
- Rosen, J.M., D.J. Hofmann, K.H. Käselau (1978):** Vertical profiles of condensation nuclei. *J. Appl. Met.*, 17, 1737-1740.
- Rosen, J.M., D.J. Hofmann (1980):** A stratospheric aerosol increase. *Geophys. Res. Lett.*, 7, 669-672.
- Sandalls, F.J., S.A. Penkett (1977):** Measurements of carbonyl sulphide and carbondisulphide in the atmosphere. *Atm. Env.*, 11, 197-199.
- Schönwiese, C.D. (1986):** Zur Parameterisierung der nordhemisphärischen Vulkanätätigkeit seit 1500. *Met. Rdsch.*, 39, 126-132.
- Schönwiese, C.D. (1987):** Das natürliche Klima und seine Schwankungen. In: *Globales Klima*, VDI-Schriftenreihe Nr. 7, 4-26.
- Schönwiese, C.D., B. Diekmann (1987):** Der Treibhauseffekt. Deutsche Verlags-Anstalt Stuttgart., 232 S.

- Sze, N.D., M.K.W. Ko (1979):** CS₂ and COS in the stratospheric sulphur budget. *Nature*, 280, 308-310.
- Toon, O.B., J.B. Pollack (1976):** A global average model of atmospheric aerosols for radiative transfer calculations. *J. Appl. Met.*, 15, 225-246.
- Toon, O.B., J.B. Pollack, B.N. Khare (1976):** The optical constants of several atmospheric aerosol species: ammonium sulfate, aluminium oxide, and sodium chloride. *J. Geophys. Res.*, 81, 5733-5748.
- Toon, O.B., R.P. Turco, P. Hamill, C.S. Kiang, R.C. Whitten (1979):** A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere II: sensitivity studies and comparison with observations. *J. Atm. Sci.*, 36, 718-736.
- Turco, R.P., P. Hamill, O.B. Toon, R.C. Whitten, C.S. Kiang (1979):** A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere I: physical processes and mathematical analogues. *J. Atm. Sci.*, 36, 699-717.
- Turco, R.P., R.C. Whitten, O.B. Toon, J.B. Pollack, P. Hamill (1980):** OCS, stratospheric aerosols and climate. *Nature*, 283, 283-286.
- Turco, R.P., O.B. Toon, P. Hamill, R.C. Whitten (1981):** Effects of meteoric debris on stratospheric aerosols and gases. *J. Geophys. Res.*, 86, 1113-1128.
- Turco, R.P., R.C. Whitten, O.B. Toon (1982):** Stratospheric aerosols: observations and theory. *Rev. Geophys. Space Phys.*, 20, 233-279.
- Turco, R.P. (1986):** Persönliche Mitteilung und Final report: contract NAS 2-12142.
- Twomey, S. (1977):** Atmospheric aerosols. Elsevier Scientific Publ. Comp., Amsterdam, Oxford, New York, 302 S.
- Umweltbrief 20 (1980):** Bericht über die Auswirkungen von Luftverunreinigungen auf das globale Klima. Hrsg. Der Bundesminister des Inneren, Bonn, 42 S.

- U.S. Standard-Atmosphere (1962):** National aeronautics and space administration, Washington, 278 S.
- Viggiano, A.A., F. Arnold (1981):** Extended sulfuric acid vapor concentration measurements in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 8, 583-586.
- Vupputuri, R.K.R., J.P. Blanchet (1984):** The possible effects of El Chichon eruption on atmospheric thermal structure and surface climate. *Geofis. Int.*, Mexiko, 23, 433-447.
- Walter, H. (1972):** Theoretische Studien zur Koagulation und Größenverteilung von Kondensationsaerosolen. Diss. Universität Erlangen-Nürnberg, 108 S.
- Whitten, R.C., J.S. Sims, R.P. Turco (1973):** A model of carbon compounds in the stratosphere and mesosphere. *J. Geophys. Res.*, 78, 5362-5374.
- Whitten, R.C., O.B. Toon, R.P. Turco (1980):** The stratospheric sulfate aerosol layer: processes, models, observations and simulations. *Pure Appl. Geophys.*, 118, 86-127.
- Whitten, R.C. (Hrsg.) (1982):** The stratospheric aerosol layer. Springer-Verlag, Berlin, 152 S.
- Wilson, J.C., E.D. Blackshear, J.H. Hyun (1983):** Changes in the sub- 2.5 micron diameter aerosol observed at 20 km altitude after the eruption of El Chichon. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 1029-1032.
- Wilson, J.C. (1984):** SO₂ conversion rate inferred from in-situ measurements of aerosols and SO₂ in the stratospheric cloud formed by the eruption of the El Chichon volcano. *Aerosols, Elsevier Sci. Publ.*, 953-956.
- WMO (1981):** The stratosphere 1981, theory and measurements. Genf.
- WMO (1985):** Atmospheric ozone 1985, Assessment of our understanding of the processes controlling its present distribution and change. Vol. 1-3.
- Yamamoto, G., M. Tanaka, S. Asano (1970):** Radiative transfer in water clouds in the infrared region. *J. Atm. Sci.*, 27, 282-292.

Yue, G.K. (1979): A quick method for estimating the equilibrium size and composition of aqueous sulfuric acid droplets. *J. Aerosol Sci.*, 10, 75-86.

Yue, G.K., P. Hamill (1979): The homogeneous nucleation rates of H₂SO₄-H₂O aerosol particles in air. *J. Aerosol Sci.*, 10, 609-614.

Anhang
mit der Darstellung der verwendeten
Eingangsparameter

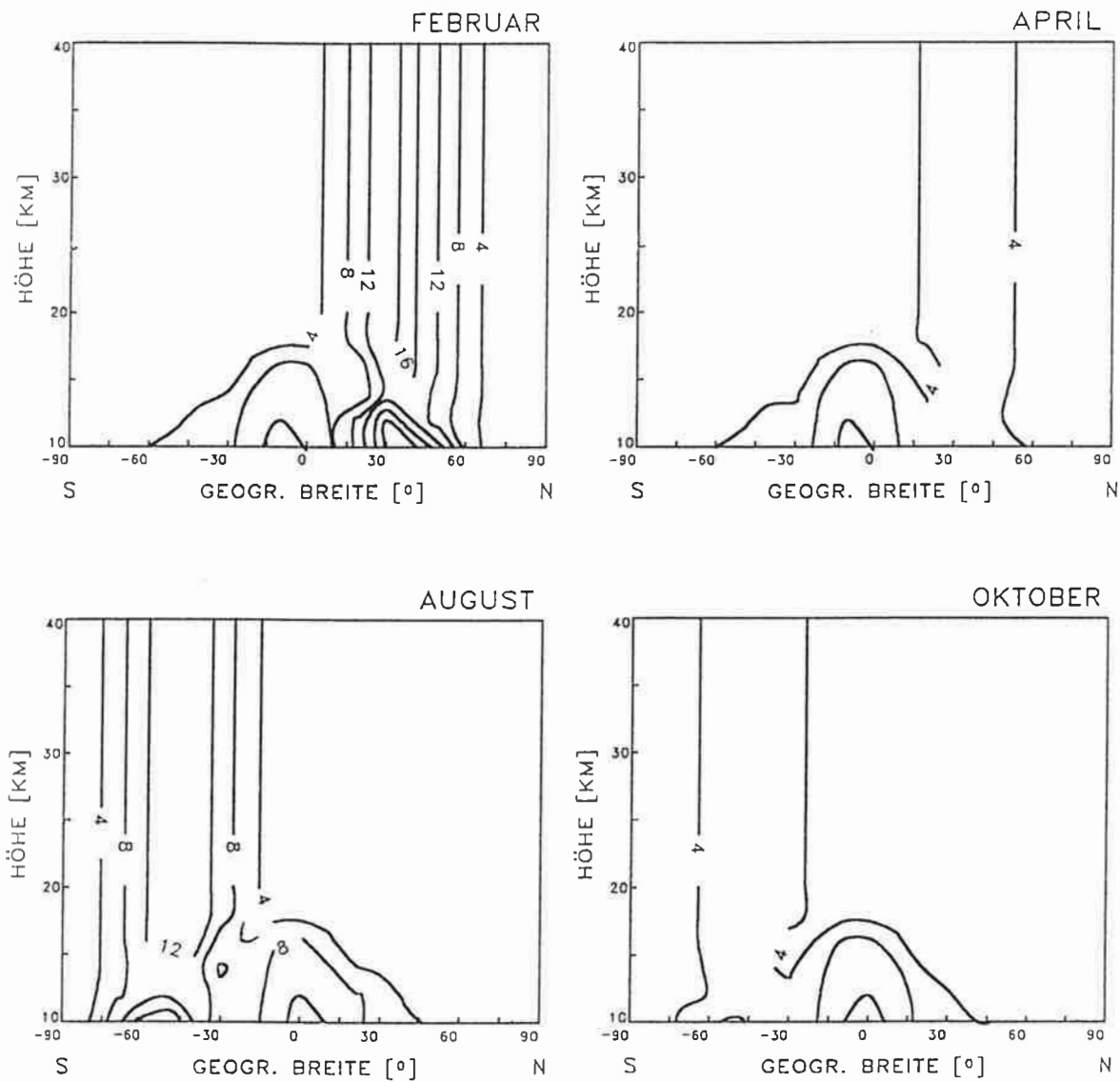


Abbildung I: Zonal gemittelte turbulente Diffusionskoeffizienten K_{yy} [$10^5 \text{ m}^2/\text{s}$] für die vier Jahreszeiten nach Daten von Crutzen (1975, 1985). Der Isolinienabstand beträgt $4 \cdot 10^5 \text{ m}^2/\text{s}$.

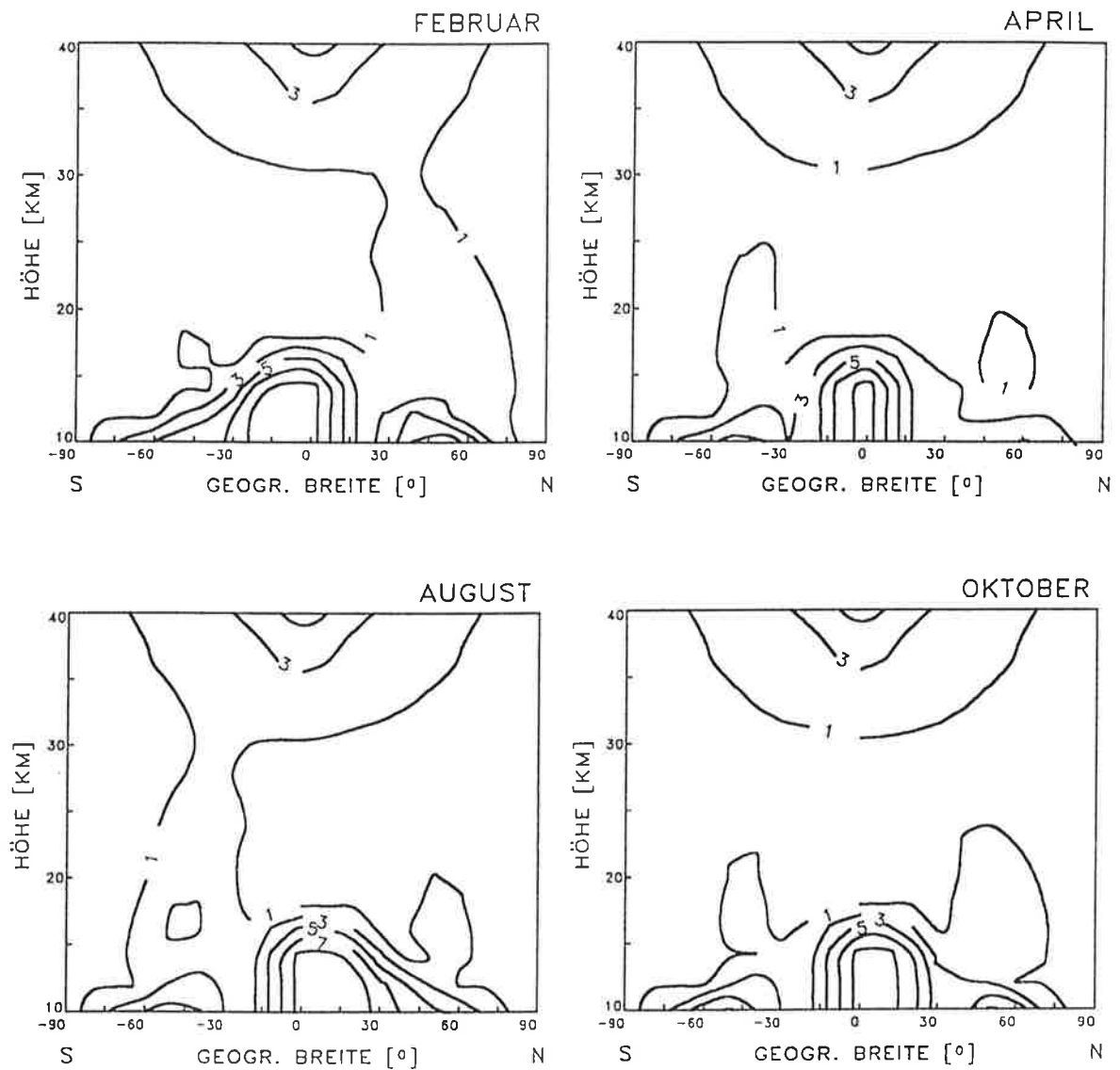


Abbildung II: Zonal gemittelte turbulente Diffusionskoeffizienten K_{zz} [m^2/s] für die vier Jahreszeiten nach Daten von Crutzen (1975, 1985). Der Isolinienabstand beträgt $2 \text{ m}^2/\text{s}$.

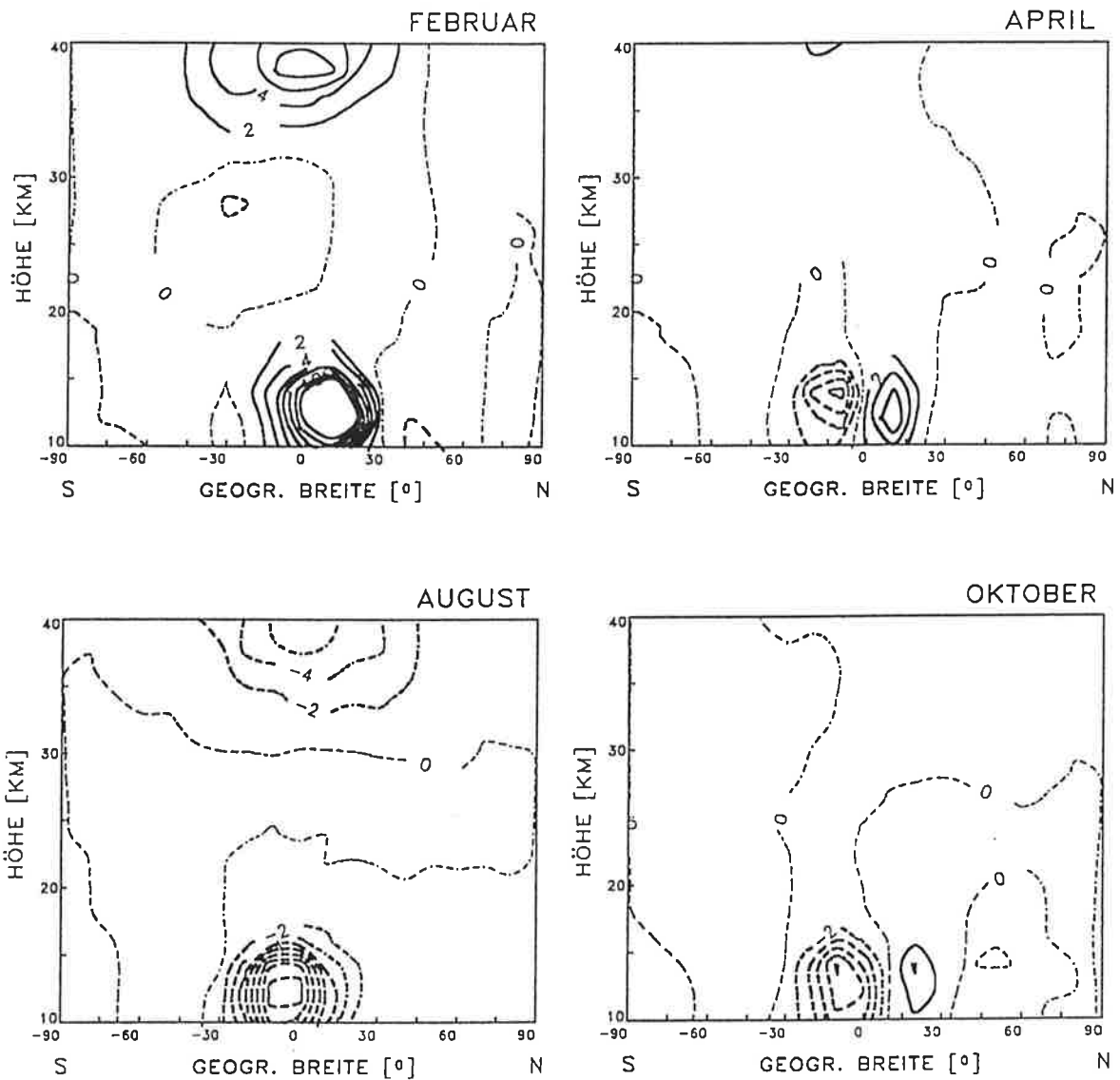


Abbildung III: Zonale Mittel der Horizontalkomponente der Advektion v [10^{-1} m/s] für die vier Jahreszeiten nach Daten von Crutzen (1975, 1985). Der Abstand der Isolinien beträgt $2 \cdot 10^{-1}$ m/s.

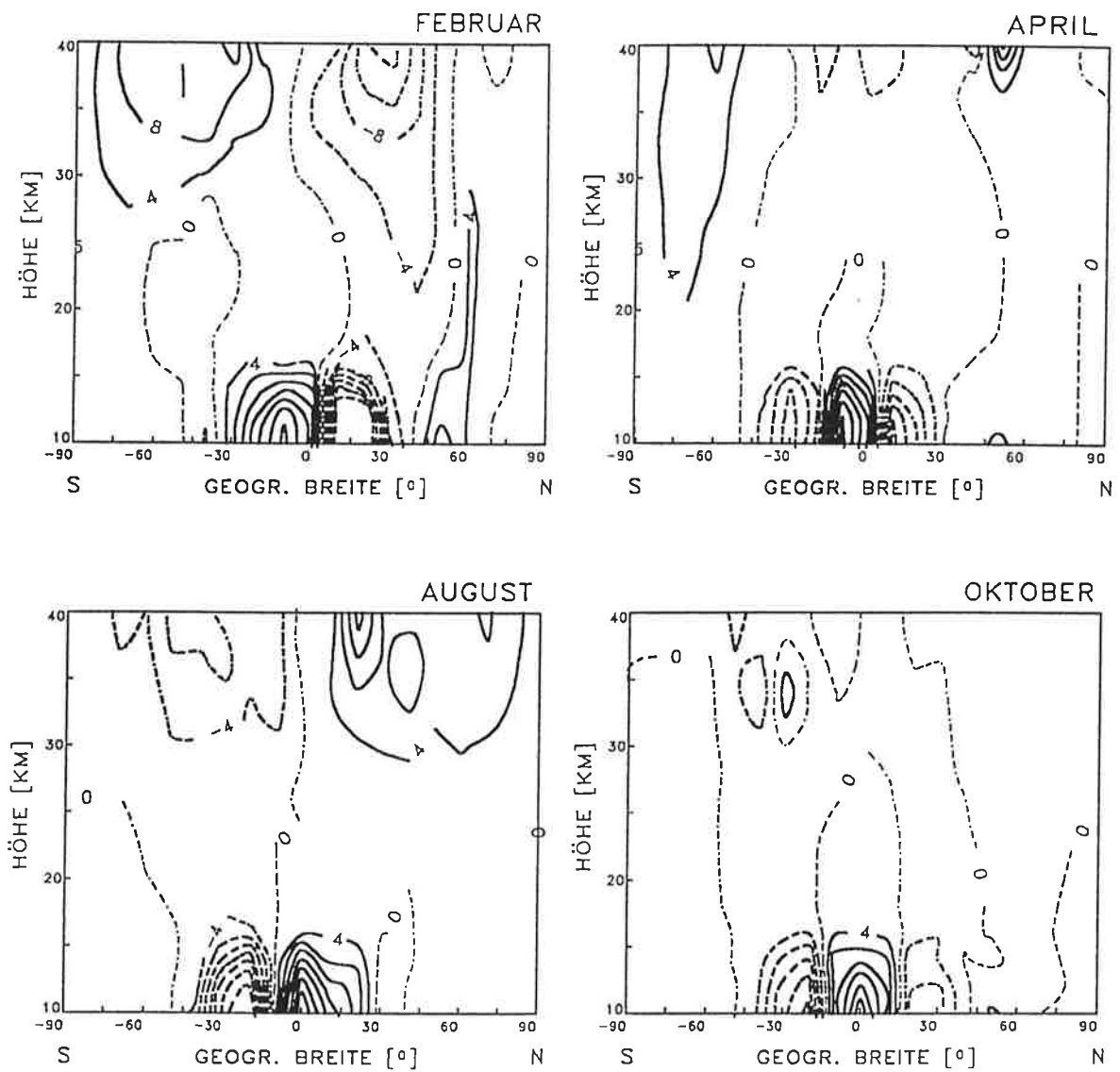


Abbildung IV: Zonale Mittel der Vertikalkomponente der Advektion w [10^{-4} m/s] für die vier Jahreszeiten nach Daten von Crutzen (1975, 1985). Der Abstand der Isolinien beträgt $4 \cdot 10^{-4}$ m/s.

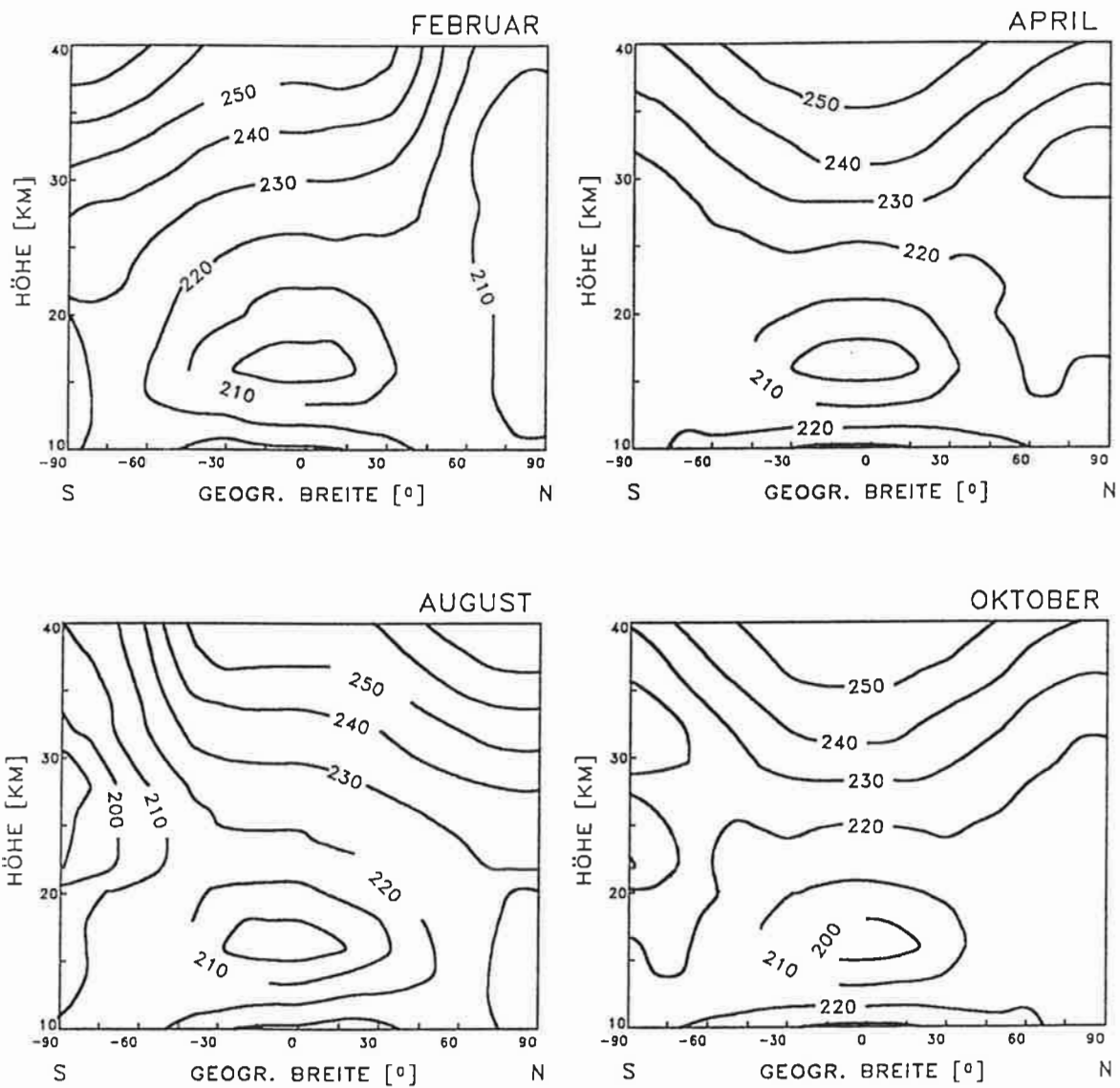


Abbildung V: Zonale Mittel der Temperatur [K] für die vier Jahreszeiten nach Daten von Crutzen (1975, 1985). (Isolinienabstand 10 K).

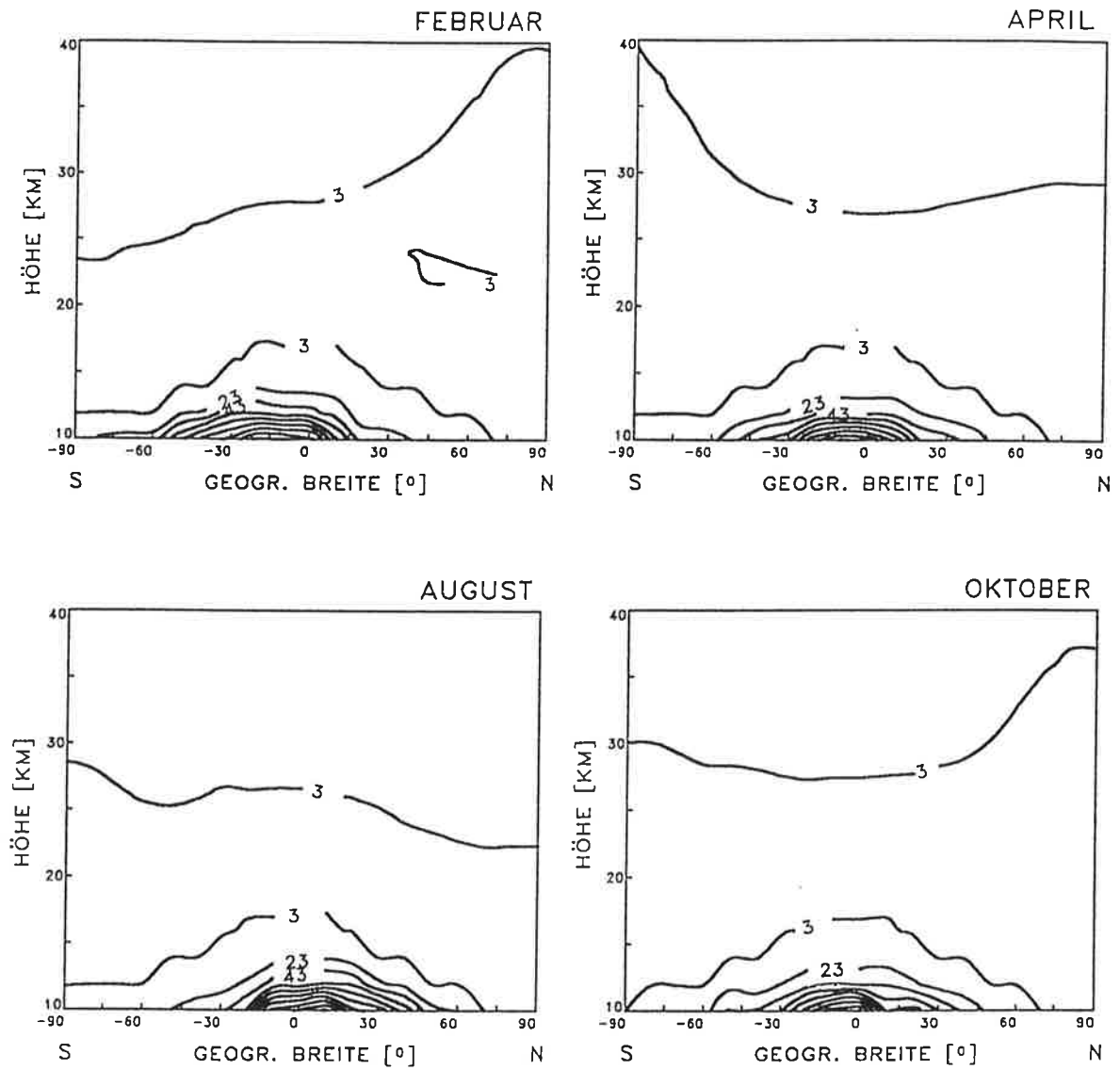


Abbildung VI: Zonale Mittel der Massenmischungsverhältnisse von Wasserdampf [10^{-6} g/g] für die vier Jahreszeiten nach Daten von Crutzen (1975, 1985). Der Isolinienabstand ist $20 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$.

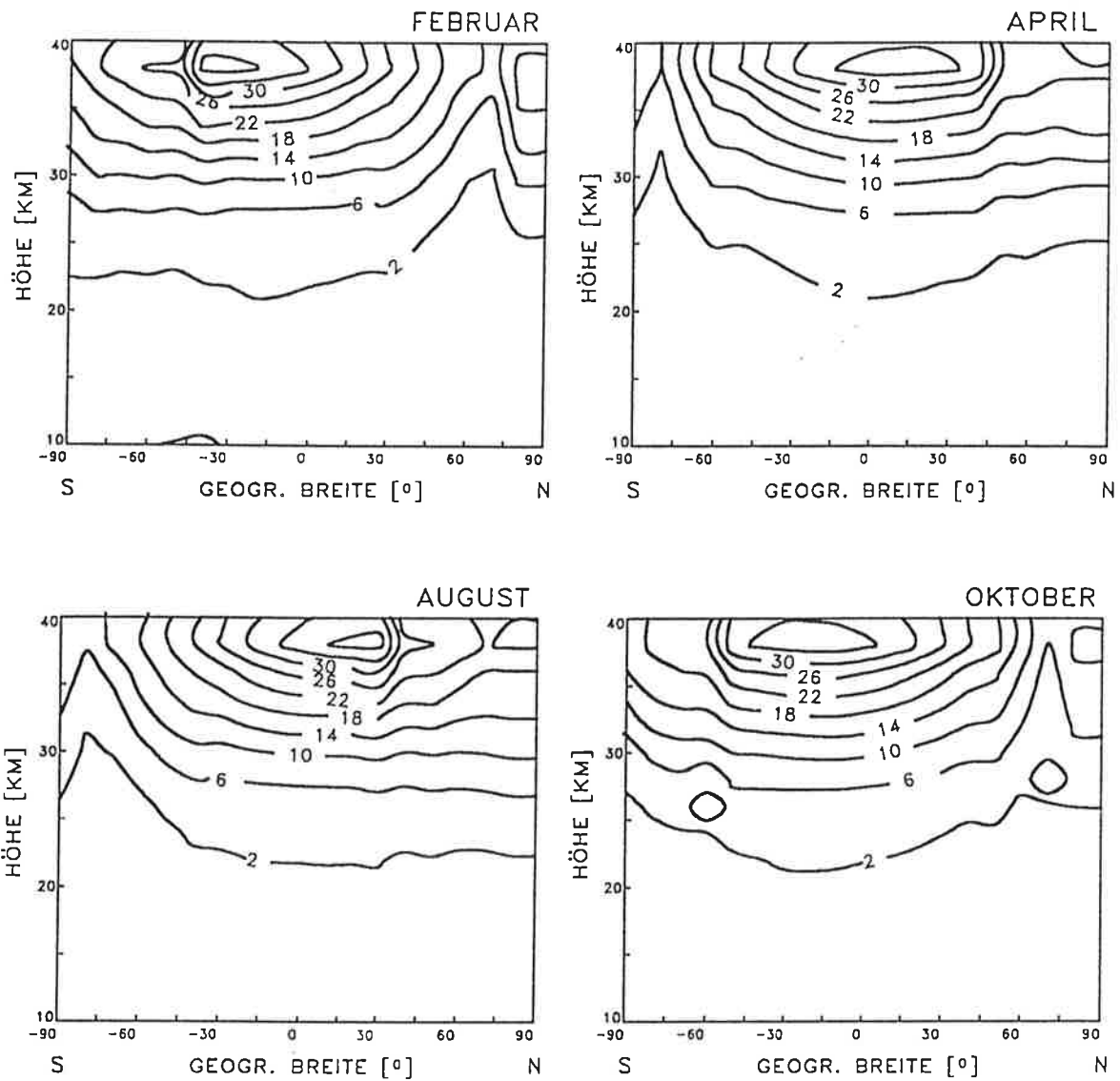


Abbildung VII: Dichte des OH-Radikals [10^{12} Moleküle/m³] für die vier Jahreszeiten nach Daten von Crutzen (1975, 1985). Der Isolinienabstand beträgt $4 \cdot 10^{12}$ Moleküle/m³.

- EXAMENSARBEIT Nr. 1**
Juli 1990
**Modellierung des gekoppelten Systems
Ozean-Atmosphäre in den Tropen**
Mojib Latif
- EXAMENSARBEIT Nr. 2**
Juli 1990
**Zur Dynamik des antarktischen Zirkumpolar-
stromes**
Jörg-Olaf Wolff
- EXAMENSARBEIT Nr. 3**
Juli 1990
**Zur Erniedrigung des atmosphärischen
Kohlendioxidgehalts durch den Weltozean
während der letzten Eiszeit**
Christoph Heinze
- EXAMENSARBEIT Nr. 4**
August 1990
**Analysis and Prediction of the El Niño
Southern Oscillation Phenomenon using
Principal Oscillation Pattern Analysis**
Jin-Song Xu
- EXAMENSARBEIT Nr. 5**
Dezember 1990
**Untersuchung zur niederfrequenten
Variabilität der Meeresoberflächen-
temperatur im Nordpazifik**
Ute Luksch
- EXAMENSARBEIT Nr. 6**
Dezember 1990
Meereismodellierung im Südlichen Ozean
Achim Stössel
- EXAMENSARBEIT Nr. 7**
Dezember 1990
**Principal Interaction/Oscillation Patterns
Theorie und Analysen
zum El Niño/Southern Oscillation-Phänomen**
Udo Weese
- EXAMENSARBEIT Nr. 8**
Dezember 1990
**Bestimmung des Temperaturprofils der
Troposphäre mit einem Zwei-Frequenz-LIDAR**
Felix A. Theopold
- EXAMENSARBEIT Nr. 9**
Januar 1991
**Modellierung des gekoppelten Systems:
Inlandeis, Übergangszone und Schelfeis
der Antarktis**
Wolfgang Böhmer
- EXAMENSARBEIT Nr. 10**
Januar 1991
**Interne Variabilität in einem stochastisch
angetriebenen ozeanischen Zirkulations-
modell**
Uwe Mikolajewicz
- EXAMENSARBEIT Nr. 11**
Februar 1991
**Bildung und Transport von Aerosolteilchen
und ihre Bedeutung für den Strahlungs-
haushalt**
Ingrid Schult

ISSN 0938-5177

