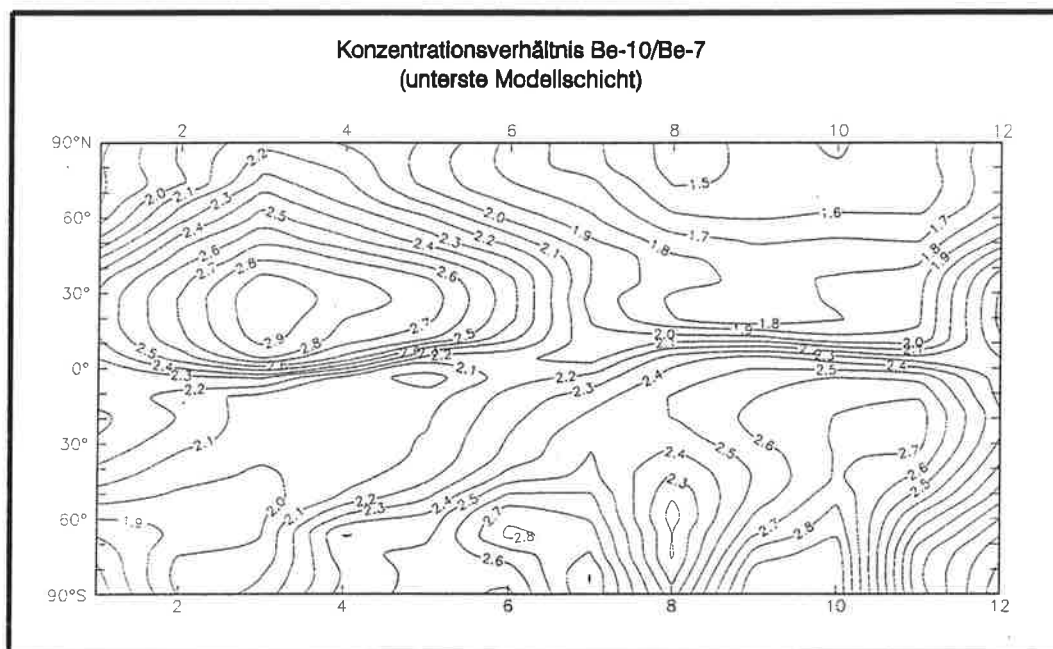




Max-Planck-Institut für Meteorologie

EXAMENSARBEIT Nr. 20



DEPOSITION RADIOAKTIVER TRACER IN EINEM TRANSPORTMODELL DER ATMOSPHERE

von

STEFAN REHFELD

HAMBURG, FEBRUAR 1994

Dissertation im Rahmen des Promotionsverfahrens

Autor:

Stefan Rehfeld

**Universität Hamburg
Fachbereich Geowissenschaften
Bundesstraße 55
D-20146 Hamburg
FRG**

**MAX-PLANCK-INSTITUT
FÜR METEOROLOGIE
UND DER
UNIVERSITÄT HAMBURG
FACHBEREICH GEOWISSENSCHAFTEN
BUNDESSTRASSE 55
D-20146 Hamburg
F.R. GERMANY**

**Tel.: +49-(0)40-4 11 73-0
Telemail: MPI.METEOROLOGY
Telefax: +49-(0)40-4 11 73-298**

Deposition radioaktiver Tracer
in einem Transportmodell
der Atmosphäre

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

vorgelegt von

Stefan Rehfeld

aus

Otterndorf (Niederelbe)

Hamburg

1994

ISSN 0938-5177

Als Dissertation angenommen vom Fachbereich Geowissenschaften
der Universität Hamburg

auf Grund der Gutachten von Prof. Dr. M. Dunst
und Dr. M. Heimann.

Hamburg, den 19.1.1994

Prof. Dr. M. Dunst
Sprecher
des Fachbereichs Geowissenschaften

*In der Wissenschaft gleichen wir alle nur
den Kindern, die am Rande des Wissens
hie und da einen Kiesel aufheben,
während sich der weite Ozean des Unbekannten
vor unseren Augen erstreckt.*

Isaac Newton

Inhalt

Zusammenfassung	3
1 Einleitung	5
2 Deposition	9
2.1 Die trockene Deposition	9
2.2 Die nasse Deposition	12
3 Radioaktive Tracer in der Atmosphäre	15
3.1 Natürliche Radioaktivität aus Bodenemissionen	15
3.2 Natürliche Radioaktivität durch kosmische Strahlung	18
3.3 Künstliche Radioaktivität	24
4 Das Transportmodell	28
4.1 Allgemeine Bemerkungen	28
4.2 Das Modellgitter	29
4.3 Advektion	31
4.4 Subskalige Prozesse	32
4.5 Trockene und nasse Deposition	35
4.6 Chemische Prozesse	40
5 Die Modellsimulationen	41
5.1 Natürliche radioaktive Tracer aus Bodenemissionen (Radon-222 und Blei-210)	41
5.1.1 Der Beobachtungsdatensatz	41
5.1.2 Lebensdauer der Aerosole in der Atmosphäre	43
5.1.3 Globale Charakteristika der Konzentrations- und Depositionsverteilung	48
5.1.4 Troposphärische Transporte und ihre jahreszeitliche Variabilität	59
5.2 Natürliche radioaktive Tracer durch kosmische Strahlung (Beryllium-7 und Beryllium-10)	71
5.2.1 Die Quellverteilung	71
5.2.2 Der Beobachtungsdatensatz	72
5.2.3 Lebensdauer der Aerosole in der Atmosphäre	75
5.2.4 Globale Charakteristika der Konzentrations- und Depositionsverteilung	77
5.2.5 Das Konzentrationsverhältnis Beryllium-10 zu Beryllium-7 als Indikator stratosphärischer Luftmassen	85

5.2.6	Das Konzentrationsverhältnis Beryllium-7 zu Blei-210 als Indikator troposphärischer Mischungsprozesse	95
5.3	Künstliche Radioaktivität (Strontium-90)	101
5.3.1	Die Anfangskonzentrationsverteilung	101
5.3.2	Der Beobachtungsdatensatz	102
5.3.3	Stratosphärische Tracermasse und Lebenszeit	104
5.3.4	Troposphärische Transportvorgänge	107
5.3.5	Das Frühjahrsmaximum der niederen und mittleren Breiten	113
5.3.6	Der Jahresgang der Deposition an einzelnen Beobachtungsstationen	116
6	Schlußfolgerungen und Ausblick	128
	Danksagung	133
	Literaturverzeichnis	134

Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit ist es, ein globales, dreidimensionales Transportmodell der Atmosphäre auf seine Transportcharakteristika hin zu überprüfen. Zu diesem Zweck wird die Ausbreitung von natürlichen (^{210}Pb , ^7Be , ^{10}Be) und künstlichen (^{90}Sr), radioaktiven, wasserlöslichen, von Aerosolen absorbierten, Isotopen simuliert. Ihre Quellverteilung und Quellstärke ist gut bekannt. Innerhalb der Atmosphäre werden sie nur durch radioaktiven Zerfall abgebaut, und ihre atmosphärische Senke sind trockene und nasse Deposition.

Die unterschiedliche Quellkonfiguration dieser Substanzen erlaubt es, die ganze Palette atmosphärischer Transportprozesse zu studieren. Das ^{210}Pb entsteht bevorzugt in der kontinentalen, planetarischen Grenzschicht und ermöglicht daher die Analyse von Transportvorgängen in der unteren Troposphäre. ^7Be und ^{10}Be werden zu einem Drittel in der Troposphäre und zu zwei Drittel in der Stratosphäre erzeugt und dienen dem Studium troposphärischer Transportprozesse sowie der Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre. Die Bildung der Konzentrationsverhältnisse $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ (zur Untersuchung troposphärischer Transportvorgänge) und $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ (zur Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre) ist hierbei sehr nützlich. ^{90}Sr ist eine durch Atombombenversuche eingebrachte stratosphärische Substanz und ermöglicht neben Studien der stratosphärischen Zirkulation ebenfalls die Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre.

Das Transportmodell besitzt eine horizontale Auflösung von 10° in der Länge und ca. 7.83° in der Breite mit 19 Schichten in der Vertikalen. Zum Antrieb des Modells werden die Analysen des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF) aus dem Jahre 1990 benutzt. Die numerische Advektion erfolgt mit dem "slopes - scheme" von Russell und Lerner (1981). Das Transportmodell enthält eine Parameterisierung der Cumulus - Konvektion nach dem Massenflußschema von Tiedtke (1989) und eine Parameterisierung der vertikalen "eddy - fluxes" nach Louis (1979). Die trockene Deposition wird mit der Vorgabe einer zeitlich und räumlich konstanten, trockenen Depositionsgeschwindigkeit von 0.1 cm s^{-1} beschrieben. Zur Parameterisierung der nassen Deposition wird das Schema von Kasibhatla et. al. (1991) verwendet. Die hierfür benötigten Niederschlagsfelder sind tägliche, 36-stündige ECMWF - Vorhersagen des stratiformen und konvektiven Niederschlags von 1990.

Die modellierte, atmosphärische Lebensdauer der, die ^{210}Pb - Atome absorbierenden, Aerosole beträgt in der unteren Troposphäre im globalen Mittel ca. 5 Tage und steigt in 8km Höhe auf etwa 20 Tage an. Die Subtropen und Polarregionen weisen dabei in der mittleren und oberen Troposphäre mit 30 bis 50 Tagen wesentlich höhere Lebenszeiten auf als die Tropen und mittleren Breiten (5 bis 10 Tage). Die Lebensdauer der, die ^7Be - Atome absorbierenden, Aerosole weist eine ähnliche räumliche Struktur auf, aufgrund der

Quellverteilung aber um den Faktor 1.5 bis 2 höhere Werte.

Die Halbwertszeit für den interhemisphärischen, stratosphärischen Massentransfer beträgt im Transportmodell 2.7 Jahre, für den Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre 1.3 Jahre. Saisonale Maxima dieses Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre zeigen sich jeweils im Frühjahr der entsprechenden Hemisphäre. Ein minimaler Austausch besteht im Herbst. Am intensivsten ist diese saisonale Variabilität im Bereich der nordhemisphärischen Subtropen ausgeprägt.

Größere Diskrepanzen zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen kristallisieren sich in den Polarregionen heraus. Als Gründe für diesen Dissens werden mögliche Defizite in den zum Antrieb des Modells benutzten ECMWF - Analysedaten, das für die meteorologischen Verhältnisse in den Polarregionen wahrscheinlich zu simpel formulierte Parameterisierungsschema der nassen Deposition sowie numerische Effekte als Folge einer Verkleinerung der Gitterboxen genannt.

1 Einleitung

Die Möglichkeit einer durch den Menschen verursachten Klimaveränderung wird in den letzten Jahren zunehmend in der Öffentlichkeit diskutiert. Im Mittelpunkt steht dabei die Erwärmung durch den sogenannten Treibhauseffekt. In den letzten Jahrzehnten führte eine vermehrte Verbrennung fossiler Energieträger (Öl, Kohle, Gas) zu einem kontinuierlichen Anstieg der CO_2 - Konzentration in der Atmosphäre. Weitere klimarelevante Spurengase sind z.B. Methan, Lachgas und die Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKW) (Bolin et. al., 1986). Zu den sehr reaktionsfreudigen Spurengasen gehören die Schwefel- und Stickstoffverbindungen. Ihre Verweilzeit in der Atmosphäre ist eng mit dem Wasserdampfkreislauf verknüpft. Durch chemische Reaktionen mit anderen atmosphärischen Gasen bzw. den OH - Radikalen werden diese Verbindungen in andere gasförmige Komponenten oder in Aerosolpartikel umgewandelt (Warneck, 1988). Aerosole sind wegen ihrer Bedeutung als Kondensationskerne bei der Wolkenbildung sowie ihrer Wechselwirkung mit der kurz- und langwelligen Strahlung wesentliche Bestandteile der Atmosphäre, welche auch das Klima beeinflussen.

Durch die Simulation der Verteilung einer solchen Substanz mit Hilfe eines Transportmodells lassen sich wichtige Fragestellungen näher beleuchten, z.B. welche raumzeitliche Verteilung der Konzentration sich aufgrund einer bestimmten Quellen- und Senkenverteilung des Tracers ergibt bzw. welche Auf- und Abbauprozesse eines Spurenstoffes aus einer beobachteten Konzentrationsverteilung abzuleiten sind. Eine solche Analyse erfordert ein Verständnis atmosphärischer Transportvorgänge sowie die Kenntnis der Fähigkeit des Transportmodells diese wiederzugeben.

Abbildung 1 skizziert schematisch die in der Atmosphäre ablaufenden Prozesse. Nach seiner Emission wird ein Spurenstoff durch advective und diffusive Transportvorgänge räumlich verteilt. Die Tropopause bildet ein Hindernis für diese Transporte. Ein Tracer mit einer troposphärischen Quelle kann nur allmählich in die Stratosphäre befördert werden, und umgekehrt wird eine Substanz mit stratosphärischer Quelle nur langsam in die Troposphäre transportiert. Durch radioaktiven Zerfall oder chemische Umwandlungen wird ein Tracer innerhalb der Atmosphäre abgebaut. Trockene Deposition in der bodennahen Grenzschicht, Sedimentation und das Auswaschen durch Niederschlag (nasse Deposition) sorgen für seine Ablagerung am Erdboden bzw. im Ozean.

Informationen über die Transporteigenschaften eines Modells lassen sich durch die Simulation der Verteilung von Spurenstoffen gewinnen, welche die folgenden Eigenschaften aufweisen :

- Die Verteilung und Stärke der Quellen und Senken ist hinreichend genau bekannt. Innerhalb der Atmosphäre wird der Spurenstoff nur durch gut bekannte und mathematisch einfach zu handhabende physikalische und/oder chemische Auf- und

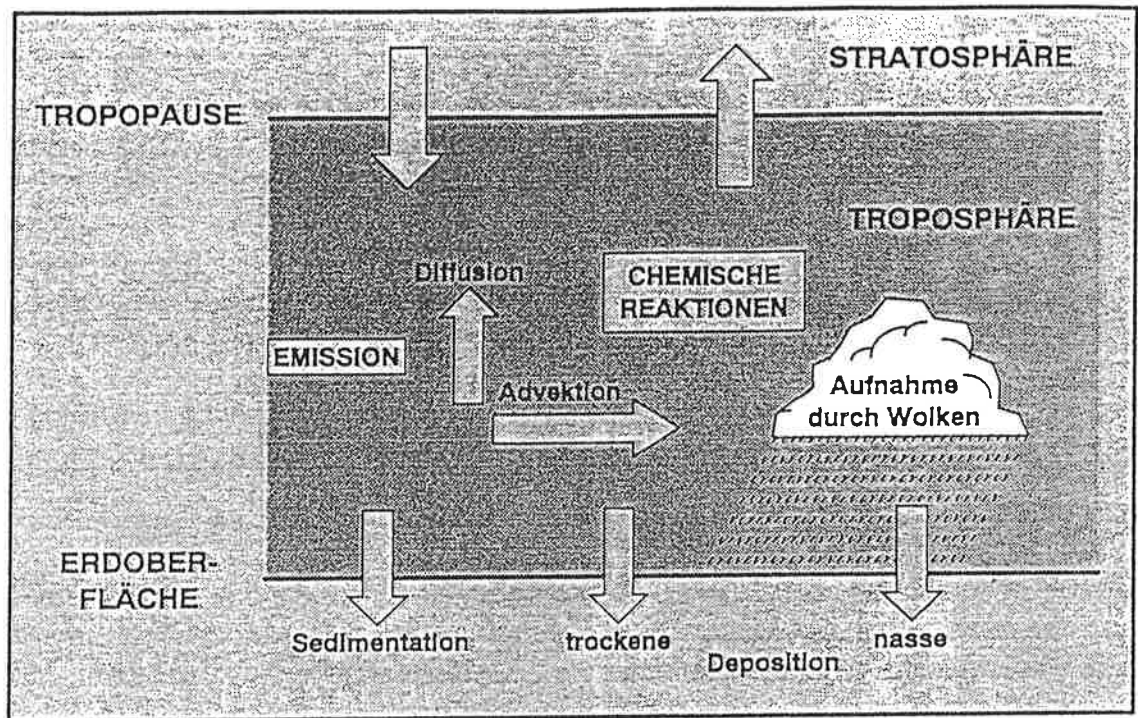


Abb.1 Schematische Darstellung der in der Atmosphäre ablaufenden Transportprozesse

Abbauprozesse verändert, wie z.B. durch den radioaktiven Zerfall.

- Der Spurenstoff ist kostengünstig, hinreichend genau und genügend oft meßbar.
- Die Konzentrationsverteilung des Tracers ist charakteristisch für die zu erfassenden Transportprozesse, d.h. im interessierenden raumzeitlichen Bereich treten genügend große Konzentrationsunterschiede auf.

Das Ziel dieser Arbeit ist es ein Transportmodell auf seine Transportcharakteristika hin zu überprüfen, indem man die Verteilung von wasserlöslichen, radioaktiven Spurenstoffen, welche die obigen Eigenschaften erfüllen, simuliert und die Resultate mit Beobachtungen vergleicht.

Die mittleren radioaktiven Lebenszeiten dieser Spurenstoffe variieren von wenigen Stunden und Tagen bis hin zu Größenordnungen von 10^6 Jahren, also praktisch stabilen Tracern. Diese Tatsache erlaubt die Untersuchung einer großen Spannbreite von Transportprozessen. Man teilt die atmosphärischen, radioaktiven Tracer in drei Gruppen ein

(Junge, 1963) :

- Natürliche radioaktive Tracer aus Bodenemissionen
- Natürliche radioaktive Tracer durch kosmische Strahlung
- Künstliche Radioaktivität (aus Atombombenversuchen)

In dieser Arbeit wurden aus der ersten Gruppe das wasserunlösliche Radon-222 (^{222}Rn) und sein Zerfallsprodukt Blei-210 (^{210}Pb), aus der zweiten Beryllium-7 (^7Be) und Beryllium-10 (^{10}Be) und aus der letzten Strontium-90 (^{90}Sr) ausgewählt. Die für diese Tracer verfügbaren Beobachtungsdatensätze sind, mit Einschränkungen für ^{222}Rn und ^{10}Be , besonders umfangreich.

^{222}Rn (radioaktive Halbwertszeit : 3.83 Tage) wird primär aus der Erdkruste emittiert und zerfällt zu ^{210}Pb (radioaktive Halbwertszeit : 22.4 Jahre). ^7Be (radioaktive Halbwertszeit : 53 Tage) und ^{10}Be (radioaktive Halbwertszeit : $2.5 \cdot 10^6$ Jahre) werden zu ca. 2/3 in der Stratosphäre und zu 1/3 in der Troposphäre erzeugt. ^{90}Sr (radioaktive Halbwertszeit : 27.7 Jahre) wird größtenteils in der Stratosphäre gebildet. Lediglich in den ersten Monaten nach einem Nuklearversuch ist auch in der Troposphäre erzeugtes ^{90}Sr vorhanden.

Während ^{222}Rn gasförmig und wasserunlöslich ist und nur durch radioaktiven Zerfall aus der Atmosphäre entfernt wird, werden die ^{210}Pb , ^7Be , ^{10}Be und ^{90}Sr - Atome irreversibel von Aerosolpartikeln absorbiert, d.h. ihre Verteilung innerhalb der Atmosphäre sowie ihre Deposition hängt von den physikalisch/chemischen Eigenschaften dieser Aerosole ab. Die radioaktive Masse ist dabei so klein, daß diese Aerosoleigenschaften durch den Anbindungsprozeß nicht berührt werden (Feichter et. al., 1991). Dieser Anbindungsprozeß ist charakteristisch für die hier betrachteten radioaktiven Tracer (Junge, 1963). Zum Zeitpunkt ihrer Entstehung liegen ^{210}Pb , ^7Be , ^{10}Be und ^{90}Sr noch in atomarer Form als sogenannte Primärpartikel vor. Diese Atome sind meist elektrisch geladen und formen Molekülcluster mit Wasserdampf-, Sauerstoff- oder anderen Gasatomen. Aufgrund ihrer hohen Mobilität treffen diese Molekülcluster sehr rasch auf Aerosole und werden angebunden (Sekundärpartikel) (Junge, 1963).

Wie oben bereits erwähnt, sind Aerosole, aufgrund ihrer Wirkung als Kondensationskerne und ihrer Beeinflussung der solaren und terrestrischen Strahlung, klimarelevante Tracer. Abbildung 2 zeigt die Einteilung der Aerosole in drei Gruppen, entsprechend ihrer Größenordnung (Junge, 1963).

Die "Aitken - particles" mit Radien kleiner als $0.1 \mu\text{m}$ spielen primär in der atmosphärischen Elektrizität eine Rolle. Die "Large - particles" mit Radien zwischen 0.1 und $1 \mu\text{m}$ sind verantwortlich für die Streuung des sichtbaren Lichtes und kontrollieren die Sicht-

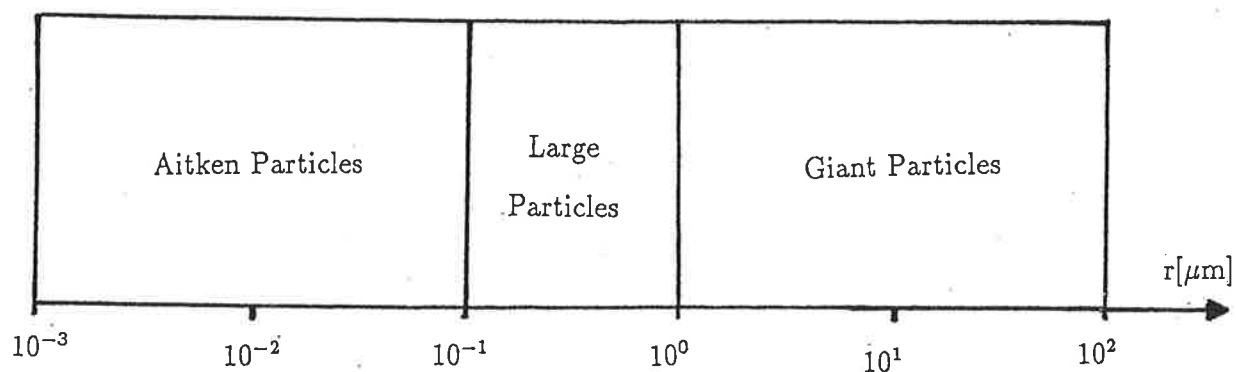


Abb.2 Einteilung der atmosphärischen Aerosole in drei Gruppen, entsprechend ihrer Größenordnung (nach Junge (1963)).

weite außerhalb von Wolken und Nebel. Ebenso wie die "Giant - particles" (Radien größer als $1 \mu\text{m}$) agieren sie als Kondensationskerne bei der Wolkenbildung (Junge, 1963).

Die in dieser Arbeit untersuchten radioaktiven Substanzen ^{210}Pb , ^7Be , ^{10}Be und ^{90}Sr werden primär von Aerosolen der Größenordnung $2 \cdot 10^{-2}$ bis $1 \mu\text{m}$ Radius aufgenommen (Graustein und Turekian, 1986 ; Turekian et. al, 1977 ; Feichter et. al., 1991 ; Junge, 1963 ; Brost et. al., 1991 ; Feely et. al., 1966), d.h. insbesondere von den "Large - particles", welche Kondensations- und Strahlungsprozesse beeinflussen. Durch die Wirkung von Aerosolen als Kondensationskerne und anschließendem Ausregnen werden auch die radioaktiven Substanzen aus der Atmosphäre entfernt.

Die unterschiedliche Quellkonfiguration dieser Substanzen erlaubt es die ganze Palette atmosphärischer Transportprozesse zu studieren und bildet ferner einen ausgezeichneten Test für die Parameterisierungsschemata der trockenen und nassen Deposition in einem Transportmodell. Das ^{210}Pb entsteht primär in der kontinentalen, planetarischen Grenzschicht und ermöglicht daher die Analyse von Transportvorgängen in der unteren Troposphäre. ^7Be und ^{10}Be erlauben die Untersuchung troposphärischer Transportprozesse sowie ein Studium des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre. Die Bildung der Konzentrationsverhältnisse $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ (zur Untersuchung troposphärischer Transportvorgänge) und $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ (zur Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre) ist hierbei sehr nützlich. ^{10}Be und ^7Be besitzen die gleiche räumliche Quellverteilung, unterliegen denselben atmosphärischen Transportprozessen und werden im Verhältnis $^{10}\text{Be}/^7\text{Be} \approx 0.5$ produziert. Die radioaktiven Halbwertszeiten sind mit $2.5 \cdot 10^6$ Jahren (^{10}Be) bzw. 53 Tagen (^7Be) jedoch sehr verschieden (siehe oben). Da die stratosphärische Halbwertszeit eines Tracers sehr viel größer als die radioaktive Halbwertszeit des ^7Be ist, sind stratosphärische Luftmassen durch hohe ^{10}Be - Konzentrationen gekennzeichnet, und ihr Einmischen in die Troposphäre bewirkt

eine markante Erhöhung des $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ - Konzentrationsverhältnisses in Bodennähe. Das stratosphärische ^{90}Sr dient dem Studium von Transportprozessen innerhalb der Stratosphäre sowie ebenfalls der Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre.

Eine nähere Erläuterung der trockenen und nassen Deposition erfolgt im 2. Kapitel, die oben erwähnten drei Gruppen radioaktiver Tracer sind im 3. Abschnitt näher beschrieben. Nach der Vorstellung des globalen dreidimensionalen Transportmodells im 4. Kapitel werden im 5. Abschnitt die Modellsimulationen und deren Resultate vorgestellt. Den Abschluß der Arbeit bilden einige Schlußbemerkungen sowie ein Ausblick.

2 Deposition

Die Entfernung von Aerosolen aus der Atmosphäre und ihre Deposition am Erdboden bzw. im Ozean ist ein wichtiger Selbstreinigungsprozeß, welcher einer Akkumulierung der Partikel entgegenwirkt. Drei Mechanismen sind in diesem Zusammenhang zu erwähnen (Junge, 1963) :

- Trockene Deposition in der bodennahen Grenzschicht
- Sedimentation
- Nasse Deposition durch Niederschlag

Die nur für größere Aerosole wirksame, gravitationsbedingte Sedimentation wird als ein Spezialfall der trockenen Deposition im folgenden Abschnitt behandelt.

2.1 Die trockene Deposition

Die Entfernung von Aerosolen aus der Atmosphäre ohne Einwirkung von Niederschlag bezeichnet man als trockene Deposition. Der trockene Depositionsfluß einer Substanz kann wie folgt beschrieben werden :

$$\phi_d = v_d \cdot c \quad (1)$$

wobei

- ϕ_d : Depositionsfluß [$\text{kg m}^{-2}\text{s}^{-1}$]
- v_d : trockene Depositionsgeschwindigkeit [ms^{-1}]
- c : Tracerkonzentration in einer bestimmten Referenzhöhe, z.B. ein Meter [kg m^{-3}]

Die trockene Depositionsgeschwindigkeit v_d ist die charakteristische Größe zur Beschreibung der trockenen Deposition eines Spurenstoffes. Obwohl sie sowohl für Partikel

als auch für Gase in Feld- und Laborexperimenten gemessen wurde (siehe z.B. Dovland und Eliassen, 1976 ; Slinn und Slinn, 1980), reicht die Datenbasis für jede einzelne verwandte Meßtechnik nicht aus, um allgemeingültige Aussagen bezüglich ihrer Größe treffen zu können. Um einen halbwegs ausreichenden Datensatz zur Verfügung zu haben, ist man gezwungen auf die Resultate aller Meßtechniken zurückzugreifen, obwohl jede gewisse Defizite aufweist (Sehmel, 1980).

Messungen im Labor haben den Vorteil der Reproduzierbarkeit, jedoch stellt sich die Frage der Übertragbarkeit in die Natur. Variable meteorologische Rahmenbedingungen beschränken die Vergleichbarkeit von Feldmessungen. Für die Bestimmung der Depositionsgeschwindigkeit in der Natur werden sowohl künstliche Kollektoren als auch ausgewählte Segmente einer natürlichen Oberfläche benutzt. Messungen mit den Kollektoren sind relativ kostengünstig, jedoch muß eine Beziehung zwischen künstlichen und natürlichen Oberflächen hergestellt werden. Wählt man bestimmte Segmente einer natürlichen Oberfläche aus, müssen die Resultate repräsentativ für die gesamte Fläche sein. Aufgrund dieser großen Unsicherheiten lassen sich keine allgemeingültigen Schlußfolgerungen bezüglich der Größe der trockenen Depositionsgeschwindigkeit ziehen. Die Meßwerte variieren zwischen Werten von 10^{-3} und 180 cm s^{-1} (Sehmel, 1980).

Die trockene Depositionsrate hängt von

- Meteorologischen Variablen,
- den Eigenschaften des Spurenstoffes und
- der Beschaffenheit der Erdoberfläche

ab. Zu den meteorologischen Größen zählen u.a. die dynamisch induzierte Turbulenz sowie die thermische Schichtung der Atmosphäre. Eine zunehmende Bodenrauigkeit und eine wachsende Windgeschwindigkeit verstärken die turbulenten Strömungen und verursachen eine Zunahme der trockenen Deposition (Sehmel, 1980). Eine thermisch stabil geschichtete Atmosphäre wirkt diesem Prozeß entgegen (Dovland und Eliassen, 1976).

Partikeleigenschaften, wie deren Radius, Dichte und Form, bestimmen ob Brownsche Diffusion, Eddy Diffusion oder eine gravitationsbedingte Sedimentation der Partikel der primäre Depositionsmechanismus ist. Für Partikel kleiner als ca. $0.05 \mu\text{m}$ im Radius (Aitken - Partikel) ist die Brownsche Diffusion vorherrschend. Je kleiner die Partikel werden, desto mehr ähneln sie dem Verhalten eines Gases (Sehmel, 1980). Für Partikelradien größer als ca. $0.5 \mu\text{m}$ gewinnen Eddy Diffusion und Sedimentation zunehmend an Bedeutung (Junge, 1963 ; Sehmel, 1980). Sind die Aerosole elektrisch geladen, können auch elektrostatische Kräfte eine Rolle spielen, welche möglicherweise dem zum Boden gerichteten Depositionsfluß entgegenwirken (Giorgi, 1986).

Die Struktur der Erdoberfläche bestimmt, ob Partikel auf Hindernisse aufprallen bzw.

von ihnen absorbiert werden und in welchem Ausmaß sie nach einer Deponierung durch das Windfeld erneut in die Atmosphäre eingebracht werden können (Slinn, 1976). Grob kann man zwischen Wasserflächen, verschiedenen Bodentypen mit unterschiedlicher Rauigkeit und Vegetationsoberflächen unterscheiden (Giorgi, 1986).

Um die trockene Deposition atmosphärischer Substanzen in einem Transportmodell zu parameterisieren, muß laut Gleichung (1) ein den Eigenschaften des Tracers, der Erdoberfläche und den meteorologischen Bedingungen angemessener Ausdruck für die Depositionsgeschwindigkeit gefunden werden. In vielen Studien wird eine räumlich und zeitlich konstante trockene Depositionsgeschwindigkeit, je nach Art der untersuchten Substanz, vorgeschrieben (Fay und Rosenzweig, 1980 ; Rodhe et. al., 1981 ; Feichter et. al., 1991 ; Brost et. al., 1991). Shannon (1981) verwendet für SO₂- und Sulfatsimulationen eine sowohl jahreszeitlich wie täglich variierende Depositionsgeschwindigkeit. Brodzinsky et. al. (1984) schreiben für fünf verschiedene Stickstoffverbindungen Werte für den Tag und für die Nacht vor. Die reduzierten Werte in der Nacht beruhen auf einer stabileren planetarischen Grenzschicht und im Falle von Gasen auf geschlossenen Stomata der Pflanzen (Sehmel, 1980).

Breite Verwendung finden auch sogenannte Widerstandsmodelle ("multibox resistance models") als einfache mathematische Beschreibung eines kontinuierlichen Massentransfers durch verschiedene Schichten in der planetarischen Grenzschicht. Dabei wird jeder einzelnen Schicht ein gewisser Widerstand gegenüber dem Transfer von Partikeln zugeschrieben. Er ist umgekehrt proportional zur Depositionsgeschwindigkeit (Slinn, 1976 ; Slinn et. al., 1978 ; Chang et. al., 1987).

Giorgi (1986) unterteilt die planetarische Grenzschicht in eine "surface layer" und eine "interfacial layer". Während in der erstgenannten die atmosphärische Schichtung und Turbulenz sowie die Sedimentation die Hauptrolle spielen, sind in der letzteren Brownsche Diffusion, das Benetzen und Aufprallen von Partikeln auf Hindernisse und elektrostatische Kräfte die primären Mechanismen für die trockene Deposition. Für jede der zwei Schichten wird dann in Abhängigkeit von den meteorologischen Gegebenheiten, den Partikeleigenschaften und des Oberflächentyps eine Depositionsgeschwindigkeit berechnet.

Die relative Bedeutung der trockenen Deposition im Vergleich zur nassen Deposition ist schwer abzuschätzen (Junge, 1963 ; Sehmel, 1980 ; Slinn et. al., 1978). Viele Faktoren spielen dabei eine Rolle, so zum Beispiel die Quellhöhe und die Niederschlagsrate. In niederschlagsarmen Regionen wird die trockene Deposition an Bedeutung gewinnen. Ebenso kann man vermuten, daß in Bodennähe emittierte Tracer, insbesondere in der näheren Quellumgebung, bevorzugt trocken deponiert werden. Die trockene Deposition ist wegen der Turbulenz ein verstärkt in den unteren Atmosphärenschichten wirkender Prozeß, im Gegensatz zur nassen Deposition, welche mitunter die ganze Troposphäre erfassen kann. Jedoch ist sie permanent existent, während die nasse Deposition an ein

Niederschlagsereignis geknüpft ist (Sehmel, 1980).

Für die in dieser Arbeit untersuchten radioaktiven, atmosphärischen Tracer ist die nasse Deposition der primäre Depositionsmechanismus. Dies zeigt sich sowohl in Messungen (Small, 1959 ; Todd et. al., 1989), als auch in Modellsimulationen (Feichter et. al., 1991 ; Brost et. al., 1991).

2.2 Die nasse Deposition

Für viele atmosphärische Spurenstoffe ist das Auswaschen durch Niederschlag ein sehr effektiver Prozeß. Dabei wird unterschieden zwischen dem "rainout" und dem "washout". Der Begriff "rainout" umfaßt alle Prozesse, die innerhalb einer Wolke stattfinden. "Washout" hingegen bezieht sich auf Vorgänge unterhalb der Wolkenbasis. Diese beiden Begriffe sollen hier zunächst näher erläutert werden.

Junge (1963) erwähnt die folgenden drei Prozesse, durch die Aerosolpartikel von Wolkentropfen aufgenommen werden können ("rainout") :

- Die Aktivierung von Aerosolen als Kondensationskerne
- Brownsche Diffusion
- Wasserdampfgradient (Facy - Effekt)

Für die Mehrzahl aller Aerosole ist der Kondensationsprozeß selbst der relevante Mechanismus. Die Brownsche Diffusion und der Facy - Effekt spielen lediglich für Partikel mit einem Radius kleiner als ca. $0.05 \mu\text{m}$ (Aitken - Partikel) eine größere Rolle (Junge, 1963).

Der Prozeß des "washout" beginnt wenn die Regentropfen die Wolke verlassen. Bei ihrem Fall nehmen sie Aerosolpartikel auf und verdunsten gleichzeitig. Hohe Verdunstungsraten können eine Deposition der Partikel am Erdboden verhindern und sie in die atmosphärische Zirkulation zurückführen. Nach Junge (1963) ist der "washout" auf Partikel mit einem Radius größer als ca. $1 \mu\text{m}$ beschränkt. Für solche Aerosole hängt die relative Bedeutung des "washout" gegenüber dem "rainout" von ihrer vertikalen Konzentrationsverteilung ab. Hohe Konzentrationen unterhalb der Wolkenbasis werden die Effizienz des "washout" erhöhen.

Die nasse Deposition ist ein recht komplexes Phänomen. Sie beinhaltet sowohl mikrophysikalische Prozesse, als auch solche in einer Größenordnung von mehreren hundert Kilometern (synoptischer Scale). In globalen, atmosphärischen Transportmodellen betragen die typischen horizontalen Größenordnungen einer Gitterzelle einige hundert Kilometer. Die nasse Deposition ist folglich ein subskaliger Prozeß und muß parameterisiert werden. Die verwendeten Parameterisierungen sind im allgemeinen abgeleitet aus der Arbeit von Junge und Gustafson (1957) und beinhalten keine mikrophysikalischen Details. Für die

Beschreibung mikrophysikalischer Details der Wolkenphysik sei z.B. auf Pruppacher und Klett (1978) und Mason (1957) verwiesen. Junge und Gustafson (1957) beschreiben die nasse Depositionsrates eines Tracers wie folgt :

$$\frac{\Delta c_{cl}}{\Delta t} = -\frac{\epsilon R}{LH} \cdot c_{cl} = -\lambda \cdot c_{cl} \quad (2)$$

wobei

- c_{cl} : Konzentration des Tracers in der Wolke [kg m^{-3}]
- L : Flüssigwassergehalt der Wolke [kg m^{-3}]
- H : Höhe der Luftsäule, z.B. Tropopausenhöhe [m]
- R : Niederschlagsrate aus der Luftsäule [$\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$]
- ϵ : Auswascheffizienz ($0 \leq \epsilon \leq 1$)
- λ : $\frac{\epsilon R}{LH}$

Der Faktor ϵ hängt von den Eigenschaften des Tracers ab, wie z.B. seiner Effektivität als Kondensationskern. Diesbezüglich vermutet Junge (1963) eine inverse Proportionalität zur atmosphärischen Partikelkonzentration und gibt die folgenden Werte für ϵ an : $\epsilon = 0.5 - 0.8$ für kontinentale, Niederschlag erzeugende Wolken und $\epsilon = 0.9 - 1.0$ für maritime Wolken. In der kontinentalen planetarischen Grenzschicht kann ϵ auf Werte um 0.2 absinken. Andere Tracereigenschaften, wie z.B. deren Wasserlöslichkeit, können diese Werte beeinflussen, so daß allgemeingültige Aussagen bezüglich der Größe des Faktors ϵ nicht möglich sind.

Die mittlere Depositionsrates eines Tracers über der Grundfläche der Luftmassensäule ergibt sich aus einer über ein gewisses Zeitintervall Δt und die Grundfläche gemittelten Niederschlagsrate R . Diese Vorgehensweise ist jedoch nur korrekt für einen gleichmäßig über das ganze Gebiet erfolgenden Niederschlag (Junge und Gustafson, 1957). Tatsächlich ist der Niederschlag jedoch ein ausgeprägt lokales Phänomen, insbesondere wenn er in Verbindung mit konvektiver Bewölkung auftritt. Die Niederschlagsrate R setzt sich aus einer voneinander unabhängigen Anzahl n von Niederschlagsereignissen unterschiedlicher Intensität und Dauer ($\Delta t_n \leq \Delta t$) über einem Teilbereich der Grundfläche zusammen.

Die obigen Ausführungen verdeutlichen die Probleme, die sich bei der Parameterisierung der nassen Deposition in globalen Transportmodellen ergeben. Da Niederschlag erzeugende Wolken oft nur einen Teil der Gitterbox des Modells einnehmen, kommt auch den subskaligen Mischungsprozessen, dem Transport von Tracern aus dem "trockenen" in den "nassen" Teil der Box, eine möglicherweise nicht unerhebliche Bedeutung zu (Brost et. al., 1991).

Die in globalen Transportmodellen verwendeten Parameterisierungen der nassen Deposition unterscheiden sich im Prinzip nur in der Wahl des Faktors λ , d.h. seiner horizontalen, vertikalen und zeitlichen Variabilität. In Arbeiten am Geophysical Fluid Dynamics

Laboratory (GFDL) in den USA (Mahlman und Moxim, 1978 ; Levy et. al., 1980 ; Levy und Moxim, 1987, 1989) wurde die vertikale Variation von λ (eine Abnahme mit der Höhe) global einheitlich vorgeschrieben. Jedem Modellniveau wird dabei eine bestimmte Tracerlebensdauer zugeordnet, welche mit der Höhe zunimmt. Dadurch berücksichtigt man die Abnahme der Niederschlagsmenge (Junge, 1963). Die modellierte Niederschlagsrate am Erdboden erlaubt eine horizontale und zeitliche Variation des Faktors λ . Ferner wird λ mit der Wasserlöslichkeit des Aerosols verändert.

Giorgi und Chameides (1986) haben ein Depositionsschema für hochgradig wasserlösliche Substanzen entwickelt, bei dem sich die raumzeitliche Variation von λ aus der für jede einzelne Modellgitterbox (von einem meteorologischen Modell) vorhergesagten Niederschlagsmenge ergibt. Sie unterscheiden zwischen konvektivem und stratiformen Niederschlag. Penner et. al. (1991) benutzen eine Art vereinfachtes Schema von Giorgi und Chameides (1986), berücksichtigen aber eine Variation von λ mit der Löslichkeit und Reaktionsfreudigkeit des Tracers.

Joussoume (1990) nimmt in ihrer Simulation des atmosphärischen Kreislaufs von Wüstenstaubpartikeln an, daß diese mit der gleichen Effizienz wie Wasserdampf entfernt werden, was einer mittleren Lebensdauer von etwa zehn Tagen in der Atmosphäre entspricht.

Kasibhatla et. al. (1991) greifen in ihrem Depositionsschema für hochgradig wasserlösliche Substanzen (Stickstoffverbindungen) auf viele Ideen von Giorgi und Chameides (1986) zurück, benutzen jedoch nicht den stratiformen bzw. konvektiven Niederschlag aus einer einzelnen Gitterbox, sondern deren Summe aus der gesamten Luftsäule. Für beide Niederschlagstypen wird ein charakteristischer Flüssigwassergehalt (analoge Werte wie in Giorgi und Chameides (1986)) sowie eine typische vertikale Mächtigkeit definiert (Skalenhöhe H in Gleichung (2)).

Kasibhatla et. al. (1991) konstatieren für ihre ersten Simulationen mit anthropogenen Stickstoffverbindungen eine Übereinstimmung zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen, die mindestens die Güte wie bei Verwendung des Schemas von Mahlman und Moxim (1978) besitzt. Beide Schemata werden auch in dieser Arbeit verwendet und in ihren Resultaten miteinander verglichen. Ihre nähere Erläuterung erfolgt in Abschnitt 4.5.

3 Radioaktive Tracer in der Atmosphäre

Wie einleitend beschrieben, gibt es drei Klassen von radioaktiven Tracern in der Atmosphäre : Natürliche Substanzen, unterteilt in solche, die aus dem Erdboden entweichen, und solche, die durch kosmische Strahlung produziert werden, sowie künstliche, welche durch Nuklearversuche in die Atmosphäre eingebracht wurden. Es gibt allerdings einige natürliche Spurenstoffe, die auch durch Atomwaffentests in die Atmosphäre gelangen können, jedoch, mit Ausnahme der langlebigen Elemente Tritium, ^{14}C und ^{210}Pb , nur für eine kurze Periode nach Nuklearversuchen das natürliche Konzentrationsniveau verfälschen (Turekian et. al., 1977 ; Junge, 1963). Hierzu gehören ^{35}S und ^{33}P (Drevinsky et. al., 1964 ; Lal et. al., 1960) sowie ^{22}Na (Junge, 1963). Über manche natürliche Tracer, wie ^7Be und ^{32}P , gibt es widersprüchliche Aussagen in der Literatur bezüglich ihrer Produktion in Kernwaffenversuchen (Drevinsky et. al., 1964 ; Lal et. al., 1960).

3.1 Natürliche Radioaktivität aus Bodenemissionen

Die Erdkruste enthält die radioaktiven Nuklide Uran-238 (^{238}U), Uran-235 (^{235}U) und Thorium-232 (^{232}Th), welche durch Zerfall verschiedene Isotope des Edelgases Radon bilden. Diese Arbeit beschränkt sich auf die Elemente der Zerfallskette des ^{238}U , da nur sie genügend lange radioaktive Halbwertszeiten besitzen um atmosphärische Transportprozesse zu studieren (Junge, 1963). Tabelle 1 zeigt die beim Zerfall entstehenden Tracer mit den dazugehörigen Halbwertszeiten. Das gasförmige Radon-222 (^{222}Rn) entweicht aus der Erdkruste und zerfällt rasch zum langlebigen Schwermetall Blei-210 (^{210}Pb).

Die Emissionsrate des ^{222}Rn hängt von der Konzentration seines Vorgängers in der Zerfallskette (^{226}Ra) in der Erdkruste, den Eigenschaften des Bodens (Wassergehalt, Porosität) und den meteorologischen Bedingungen ab. Sie wird entweder direkt mit Hilfe von Kollektoren gemessen, die eine bestimmte Fläche des Erdbodens überdecken, oder indirekt aus vertikalen ^{222}Rn - Meßprofilen in der Atmosphäre unter der Annahme eines Gleichgewichtes zwischen Emission und radioaktivem Zerfall (Turekian et. al., 1977).

Lambert et. al. (1982) leiten mittels eines Zweiboxmodells (Troposphäre - Stratosphäre) eine ^{222}Rn - Emissionsrate des Erdbodens von $0.72 \text{ atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ her, während Turekian et. al. (1977) einen Wert von $1.2 \text{ atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ angeben. Liu et. al. (1984) haben einige ^{222}Rn - Meßprofile zusammengefaßt und bestimmen mittels der indirekten Methode die sommerliche Emissionsrate zu $1.1 \text{ atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Einzelmessungen können jedoch, je nach Bodenbeschaffenheit und meteorologischen Bedingungen, erheblich von diesen von Lambert et. al. (1982) und Turekian et. al. (1977) berechneten globalen Mittelwerten abweichen. Nach Dörr (1984) nimmt die Emissionsrate im Falle einer 15 cm dicken Schneedecke um 30-40% ab und wird bei gefrorenem Boden gänzlich unterdrückt. Aufgrund einer Verstopfung der Poren im Erdboden durch Niederschlag resultiert nach

Element	Halbwertszeit
^{238}U	$4.5 \cdot 10^9$ Jahre
\vdots	\vdots
^{226}Ra	$1.58 \cdot 10^3$ Jahre
^{222}Rn	3.83 Tage
^{218}Po	3.05 Minuten
^{214}Pb	26.8 Minuten
^{214}Bi	19.7 Minuten
^{214}Po	$1.5 \cdot 10^{-4}$ Sekunden
^{210}Pb	22.4 Jahre
^{210}Bi	5 Tage
^{210}Po	140 Tage
^{206}Pb	stabil

Tab.1 Radioaktive Zerfallskette des ^{238}U

Mattsson (1970) ebenfalls eine Abnahme der ^{222}Rn - Emission. In die gleiche Richtung weisen die Meßergebnisse von Pereira et. al. (1988). Demgegenüber führt die Transpiration von Pflanzen zu einer relevanten Erhöhung der Emissionsrate, die teilweise sogar das sechsfache der Werte über kahlem Erdboden erreicht (Martell, 1985).

Die ^{222}Rn - Emission des Ozeans ist aufgrund des wesentlich geringeren Gehalts an ^{226}Ra um etwa zwei Größenordnungen kleiner als die der Kontinente, so daß ozeanische Emissionen nur etwa für 2% der ^{222}Rn - Masse in der Atmosphäre verantwortlich sind (Wilkening und Clements, 1975 ; Peng et. al., 1979). Diese Tatsache macht man sich zunutze, um kontinentale von maritimen Luftmassen zu unterscheiden (Dörr et. al., 1983 ; Polian et. al., 1986 ; Heimann et. al., 1990). Aufgrund der kleineren Landmasse der Südhemisphäre sind die ^{222}Rn - Konzentrationen hier geringer als in der Nordhemisphäre. Die niedrigsten Werte sind in der Antarktis zu finden (Junge, 1963).

In globalen Transportmodellen der Atmosphäre vernachlässigt man in der Regel die ozeanische Quelle und nimmt eine konstante ^{222}Rn - Emissionsrate aus eisfreien Landoberflächen an. Die Werte liegen im Bereich von 0.72 bis 1.2 atome $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ (Feichter et. al., 1991 ; Heimann und Feichter, 1990). Dieser relativ einfache Ansatz wird damit begründet, daß sich lokale Differenzen in der Emission über die große Grundfläche einer Gitterbox herausmitteln (Feichter et. al., 1991). In dieser Arbeit wird ebenso verfahren

(siehe Abschnitt 5.1).

Aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit des ^{222}Rn von 3.83 Tagen existiert über Kontinenten ein ausgeprägter vertikaler Konzentrationsgradient, insbesondere im Winterhalbjahr. Die Analysen von Liu et. al. (1984) zeigen, daß im Sommer ca. 55% des ^{222}Rn aus der planetarischen Grenzschicht transportiert wird. Etwa 20% überschreitet noch eine Höhe von ca. 5.5 km. In Verbindung mit tropischen Gewitterwolken wird ca. 1% des ^{222}Rn direkt von der Grenzschicht in die Stratosphäre befördert und speist durch seinen dortigen radioaktiven Zerfall das stratosphärische Reservoir des ^{210}Pb (Lambert et. al., 1990a). In globalen Tracermodellen der Atmosphäre dient das ^{222}Rn daher zur Validierung von Transportprozessen auf Zeitskalen von Stunden bis Wochen (synoptischer Scale ; Heimann und Feichter, 1990 ; Heimann et. al., 1990).

Im Gegensatz zum kurzlebigen ^{222}Rn , dessen einzige Senke der radioaktive Zerfall ist, wird sein Zerfallsprodukt, das langlebige Schwermetall ^{210}Pb (Halbwertszeit 22.4 Jahre), hauptsächlich durch trockene und nasse Deposition, und nur zu einem sehr geringen Teil durch radioaktiven Abbau, aus der Atmosphäre entfernt. Aufgrund der Quellverteilung und kurzen Lebensdauer des ^{222}Rn entsteht das ^{210}Pb hauptsächlich in der unteren Troposphäre über den Kontinenten.

Die ^{210}Pb - Atome werden sehr rasch nach ihrer Entstehung irreversibel von Aerosolpartikeln angebonden, so daß ihr Transport und ihre Deposition von den physikalisch-chemischen Eigenschaften dieser Aerosole bestimmt wird (Junge, 1963). Die Masse dieser radioaktiven Substanz ist dabei so gering, daß sie selbst keinen Einfluß auf die Aerosolcharakteristika hat (Brost et. al., 1991). Der mittlere Radius dieser Aerosole liegt im Bereich von 0.05 bis 0.25 μm (Graustein und Turekian, 1986 ; Turekian et. al., 1977 ; Feichter et. al., 1991).

Das ^{210}Pb wurde daher intensiv zur Bestimmung der mittleren atmosphärischen Lebensdauer dieser (kontinentalen) Aerosole benutzt. Hierfür werden Konzentrationsverhältnisse des ^{210}Pb mit seinen Vorgängern bzw. Tochterprodukten in der Zerfallskette des ^{238}U gebildet (Junge, 1963). Blifford et. al. (1952) erhalten aus Messungen der ^{222}Rn - Tochterprodukte eine Lebenszeit der Aerosole von zehn Tagen. Poet et. al. (1972) geben für die untere Troposphäre (unterhalb der Wolkenbasis) einen Wert von vier Tagen an. Moore et. al. (1973) ermitteln eine durchschnittliche Aerosollebensdauer in der unteren Troposphäre von weniger als einer Woche. Bis zur oberen Troposphäre steigt sie auf zwei bis drei Wochen an. Für die untere Stratosphäre nennen Moore et. al. (1973) Werte von ein bis zwei Monaten. Mit Hilfe des ^{210}Pb - Vertikalprofils von Moore et. al. (1973) ermitteln Graustein und Turekian (1986) einen Wert von 4.8 Tagen.

Diese auf zeitlich und räumlich beschränkten Isotopkonzentrationsmessungen beruhenden Abschätzungen der Aerosollebensdauer sind jedoch nicht unbedingt repräsentativ für die gesamte Atmosphäre. Simulationen mit einem atmosphärischen Transportmodell

können ein umfassenderes Bild der Verhältnisse liefern. Lambert et. al. (1982) erhalten mit ihrem Zweiboxmodell (Troposphäre - Stratosphäre) eine troposphärische Lebensdauer der Aerosole von 6.5 Tagen. Turekian et. al. (1977) geben einen Wert von 7.2 Tagen an.

Das System ^{222}Rn (Gas) - ^{210}Pb (Aerosol) ähnelt der Kombination SO_2 (Gas) - SO_4^{2-} (Aerosol) bzw. NH_3 (Gas) - NH_4^+ (Aerosol). Auch die Quellverteilung, hohe Konzentrationen in der unteren Troposphäre über den Kontinenten, ist sehr ähnlich. Daher wird ^{210}Pb auch als Tracer beispielsweise für das System Schwefeldioxyd (SO_2) - Sulfat (SO_4^{2-}) benutzt (Tsunogai et. al., 1988). Ferner ist es zur Untersuchung des Transports kontinentaler Aerosole über den Ozean in die Polargebiete nützlich (Lambert et. al., 1990b).

3.2 Natürliche Radioaktivität durch kosmische Strahlung

Durch die Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit atmosphärischen Gasen werden permanent radioaktive Isotope in der Stratosphäre und oberen Troposphäre erzeugt. Die Primärstrahlung hat sowohl eine galaktische wie solare Komponente und besteht im Prinzip aus elektrisch geladenen Partikeln, wovon ca. 90% Protonen und etwa 10% Alphapartikel sind. Ferner sind geringe Mengen von Nukliden mit Atomgewichten größer als ca. 82 enthalten (Friedlander, 1989). Die galaktische Komponente der Primärstrahlung dominiert die Isotopproduktion in der Atmosphäre. Der solare Beitrag beschränkt sich auf die unmittelbare Umgebung der magnetischen Pole und leistet im globalen und zeitlichen Mittel einen Beitrag von nur wenigen Prozent (Lal und Peters, 1967). Durch schwache magnetische Felder sowohl im Weltraum, als auch speziell in unserem Sonnensystem, werden diese kosmischen Partikel so gestreut, daß sie außerhalb des Einflusses des Erdmagnetfeldes homogen verteilt sind. Das Magnetfeld der Erde lenkt die Partikel dergestalt, daß praktisch keine zonale Variation in der Primärstrahlung existiert (Friedlander, 1989). Nur sehr energiereiche kosmische Partikel sind in der Lage am Äquator die magnetischen Feldlinien der Erde zu kreuzen und in die Atmosphäre einzudringen. Je mehr man sich jedoch den geomagnetischen Polen nähert, desto geringer muß diese Energie sein. Daraus resultiert ein ausgeprägter meridionaler Gradient im Primärfluß kosmischer Partikel in die Lufthülle der Erde (Hillas, 1972).

Nach dem Eintritt in die Erdatmosphäre treffen die Partikel auf in der Lufthülle vorhandene Atome und setzen einen Kaskadenprozeß sekundärer und tertiärer Partikel in Gang (Lal und Peters, 1967). Für die Produktion der meisten Isotope, so auch der in dieser Arbeit betrachteten Tracer ^7Be und ^{10}Be , ist der daraus resultierende Neutronenfluß entscheidend. Diese Neutronen prallen auf ihrem Weg durch die Atmosphäre auf Sauerstoff- und Stickstoffatome (die sogenannten "target-nuclides") und bewirken nukleare Zerfälle, sogenannte "stars", von denen ein gewisser Teil ^7Be bzw. ^{10}Be Atome erzeugt. Protonen tragen nur etwa 10% zu ihrer Produktion bei (Lal und Peters, 1967).

Die Energie der Primärpartikel bestimmt wie tief die Kaskade in die Atmosphäre

eindringen kann, ehe die Partikel so stark abgebremst werden, daß sie nicht mehr zur Isotopproduktion beitragen können. Das Zusammenwirken dieses Prozesses mit der zunehmenden Luftdichte (d.h. einer Zunahme an Sauerstoff- und Stickstoffatomen) führt zur Ausbildung einer Schicht maximaler Isotopproduktion, deren Höhe mit der geomagnetischen Breite variiert (Junge, 1963). Etwa 2/3 des ^7Be bzw. ^{10}Be werden in der Stratosphäre, der Rest in der Troposphäre erzeugt (Lal und Peters, 1967).

Ebenso wie die Zerfallsprodukte des ^{222}Rn werden ^7Be und ^{10}Be - Atome von Aerosolpartikeln (in der Größenordnung von $0.025\ \mu\text{m}$ bis $1\ \mu\text{m}$ Radius) irreversibel angebunden. Aufgrund der geringeren Aerosoldichte in dieser Höhe geschieht dies allerdings erst nach mehreren Stunden, anstatt wie beim ^{210}Pb bereits nach wenigen Minuten (Junge, 1963 ; Brost et. al., 1991).

Die Produktionsrate der Isotope variiert mit der Stärke und dem Energiespektrum der Primärstrahlung sowie der Intensität des Magnetfeldes der Erde. In diesem Zusammenhang lassen sich drei Zeitskalen definieren (Lal und Peters, 1967) :

- Zeiträume von hundert bis zu mehreren Millionen Jahren, d.h. verschiedene geologische Epochen.
- Zeitintervalle von mehreren Jahren, insbesondere der 11 - Jahreszyklus der Sonnenfleckenaktivität
- Zeitskalen von wenigen Stunden und Tagen bis hin zu mehreren Monaten

Die langen Zeitskalen spielen für die Zielsetzung dieser Arbeit keine Rolle. Durch die Messung der Aktivität verschiedener Isotope in ozeanischen Sedimenten, in Eisbohrkernen, in der Biosphäre bzw. Meteoriten ist es möglich, Rückschlüsse auf die Stärke und das Spektrum der primären kosmischen Strahlung in zurückliegenden erdgeschichtlichen Perioden zu ziehen, wobei diese Zeit von der Lebensdauer des Isotops abhängt (Lal und Peters, 1967).

Der 11-jährige Zyklus in der Sonnenfleckenaktivität und eine konträr dazu verlaufende Isotopproduktionsrate ist durch direkte Messungen belegt (Lal und Peters, 1967 ; Hötzl et. al., 1991 ; Beer et. al., 1990 ; Lal, 1987). Ein Anstieg der Sonnenfleckenaktivität ist gekennzeichnet durch eine vermehrte Eruption von Plasmawolken meist energieärmerer Partikel von der Sonnenoberfläche. Diese füllen mehr und mehr den galaktischen Raum aus und bilden aufgrund ihrer Magnetfelder ein Hindernis für die galaktische Primärstrahlung, insbesondere für die energieärmeren Partikel. Daraus resultiert dann, mit einer gewissen zeitlichen Verzögerung, eine reduzierte Isotopproduktionsrate (Lal und Peters, 1967).

Da bevorzugt die energieärmeren Partikel beeinflusst werden, treten die größten Veränderungen in der Polarregion und oberhalb von ca. 100 hPa auf (siehe oben). Lal und Peters (1967) haben hier für 1958 (sehr hohe Sonnenfleckenaktivität) eine Reduktion um 70%

gegenüber 1954 (Sonnenfleckenminimum) festgestellt. Unterhalb von 300 hPa beträgt die Abnahme ca. 25% für geographische Breiten über 45°, am Äquator lediglich 7%.

Ein Maß für die Produktionsrate von ^7Be und ^{10}Be ist der am Boden gemessene Neutronenfluß (Hötzl et. al., 1991). Sein Jahresmittelwert zeigt in mittleren und hohen Breiten größere interannuale Schwankungen als in den Tropen und unterstützt somit die obigen Schlußfolgerungen. Ein Jahresgang des Neutronenflusses ist praktisch nicht registrierbar, d.h. auch die kosmische Primärstrahlung bzw. die ^7Be und ^{10}Be - Produktionsrate sollte keine saisonale Variation aufweisen (Brost et. al., 1991).

Kurzzeitige und lokal begrenzte Veränderungen der Isotopproduktionsrate, ausgelöst durch die plötzliche Eruption von Partikeln von der Sonnenoberfläche, dauern wenige Stunden bis hin zu ein paar Tagen und Monaten an. Die von der Sonne emittierten Plasmawolken energiearmer Partikel bewirken eine Abnahme der Primärstrahlung, die sich im Laufe von ein paar Tagen wieder normalisiert. Da die Sonnenoberfläche quasistationäre aktive Regionen aufweist, zeigt dieses Phänomen häufig eine Periode von ca. 27 Tagen (Umlaufzeit der Sonne um ihre eigene Achse). Außerhalb des Magnetfeldes der Erde kann dieser Prozeß eine 40%ige Reduktion der galaktischen Primärstrahlung verursachen (insbesondere für energiearme Partikel), doch kann die Variabilität von Ereignis zu Ereignis recht groß sein, so daß der Effekt auf die Produktion von ^7Be bzw. ^{10}Be schwer abzuschätzen ist (Lal und Peters, 1967). Daneben existiert ein schwacher Tagesgang (Brost et. al., 1991).

Da die Modellsimulationen mit monatlich bzw. jährlich gemittelten Beobachtungen verglichen werden, haben diese kurzzeitigen Fluktuationen wahrscheinlich keinen Einfluß auf die Bodenkonzentration. Eine nähere Erläuterung der Quellfunktion von ^7Be und ^{10}Be erfolgt in Abschnitt 5.2.1.

Einen Überblick über die durch kosmische Strahlung in der Atmosphäre erzeugten radioaktiven Isotope, zusammen mit ihren Halbwertszeiten, den "target-nuclides" und ihrer geschätzten Gesamtmasse in der Atmosphäre (Lal und Peters, 1967), gibt Tabelle 2. Nicht aufgelistet sind Isotope mit Halbwertszeiten von weniger als einem Tag. Zuverlässige Abschätzungen der atmosphärischen Gesamtmasse von ^{81}Kr , ^{37}Ar und ^{39}Ar sind noch nicht möglich (Lal und Peters, 1967). Diese radioaktiven Tracer werden nicht nur in der Atmosphäre, sondern auch im Ozean, in ozeanischen Sedimenten, in der Biosphäre, im Erdboden und Gestein sowie in Eisschilden gefunden (Lal und Peters, 1967 ; McHargue und Damon, 1991). Die große Spannbreite der Halbwertszeiten macht sie für viele Anwendungen als Tracer interessant.

Über die in dieser Arbeit untersuchten Isotope ^7Be und ^{10}Be wurde erstmalig Mitte der 50er Jahre in der Literatur berichtet. Arnold und Al-Salih (1955) schreiben über Beobachtungen von ^7Be im Niederschlag, Cruickshank et. al. (1956) über ^7Be - Konzentrationen in der Luft. ^{10}Be wurde zuerst in ozeanischen Sedimentbohrkernen gefunden. Eine Ver-

Tracer	Halbwertszeit	"target-nuclid"	Gesamtmasse in der Atmosphäre [kg]
^3He	stabil	N, O	$3.2 \cdot 10^6$
^{10}Be	$2.5 \cdot 10^6$ Jahre	N, O	$4.3 \cdot 10^5$
^{26}Al	$7.4 \cdot 10^5$ Jahre	Ar	$1.1 \cdot 10^3$
^{36}Cl	$3.1 \cdot 10^5$ Jahre	Ar	$1.5 \cdot 10^4$
^{81}Kr	$2.1 \cdot 10^5$ Jahre	Kr	?
^{14}C	5730 Jahre	N, O	$7.5 \cdot 10^4$
^{32}Si	500 Jahre	Ar	1.4
^{39}Ar	270 Jahre	Ar	?
^3H	12.3 Jahre	N, O	3.5
^{22}Na	2.6 Jahre	Ar	$1.9 \cdot 10^{-3}$
^{35}S	87 Tage	Ar	$4.5 \cdot 10^{-3}$
^7Be	53 Tage	N, O	$3.2 \cdot 10^{-3}$
^{37}Ar	35 Tage	Ar	?
^{33}P	25 Tage	Ar	$6 \cdot 10^{-4}$
^{32}P	14.3 Tage	Ar	$4 \cdot 10^{-4}$

Tab.2 Durch kosmische Strahlung in der Atmosphäre erzeugte radioaktive Isotope. Zusätzlich zur Halbwertszeit und den atmosphärischen Gasen ("target-nuclides") durch deren Wechselwirkung mit der kosmischen Strahlung das entsprechende Nuklid entsteht, sind Schätzungen der Gesamtmasse der Isotope in der Atmosphäre angegeben. Zuverlässige Werte für ^{81}Kr , ^{37}Ar und ^{39}Ar sind noch nicht möglich (Lal und Peters, 1967).

besserung in der Meßtechnik (Accelerator Mass Spectrometry (AMS), siehe McHargue und Damon (1991)) ermöglichte in letzter Zeit eine zuverlässigere ^{10}Be - Konzentrationsmessung.

Gegenstand vieler Untersuchungen sind die Faktoren, welche die ^7Be bzw. ^{10}Be Konzentration in Bodennähe bzw. ihre Deposition beeinflussen. Feely et. al. (1988) nennen in diesem Zusammenhang vier Prozesse :

- Nasse Deposition
- Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre
- Vertikaltransport in der Troposphäre
- Horizontaler Transport von subtropischen und mittleren Breiten in die Polarregionen bzw. Tropen

Über ihre relative Bedeutung für den Jahresgang der Tracerkonzentration in Bodennähe bzw. der Deposition gibt es in der Literatur verschiedene Angaben. Aegerter et. al. (1966) sehen die nasse Deposition bzw. den Vertikaltransport in der Troposphäre als die primären Mechanismen an, während das Einmischen von stratosphärischem ^7Be nur

eine geringfügige Bedeutung habe. Auch Arnold und Al-Salih (1955), Cruickshank et. al. (1956) und Marenco und Fontan (1974) unterstreichen den Effekt der nassen Deposition. Demgegenüber ist für Schumann und Stoepler (1963), Rangarajan und Gopalakrishnan (1970), Reiter et. al. (1971, 1975, 1983), Viezee und Singh (1980), Dibb (1989), Bleichrodt und van Abkoude (1963) sowie Dutkiewicz und Husain (1985) der Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre entscheidend. Die Ursache für diese unterschiedliche Bewertung könnte sein, daß die Autoren ihre Untersuchungen an verschiedenen Orten und zu verschiedenen Zeiten durchgeführt haben.

Global betrachtet scheint daher die Annahme von Feely et. al. (1988) am vernünftigsten zu sein, daß an verschiedenen Orten zu verschiedenen Jahreszeiten verschiedene Prozesse die Hauptrolle spielen. Jeder dieser vier Prozesse hat seinen eigenen Jahresgang und die Saisonalität der Bodenkonzentration bzw. Deposition ergibt sich aus ihrem komplexen Zusammenwirken.

Der Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre ist im Frühjahr und Sommer nahe der Polarfront und dem subtropischen Jetstream maximal und zeigt eine hohe Korrelation mit troposphärischen Tiefdruckgebieten (Viezee und Singh, 1980 ; Wolff et. al., 1979 ; Danielsen, 1968). Dieser Massenaustausch weist einen von der geographischen Breite abhängigen Jahresgang auf. Für niedere Breiten (20 - 30°) ist er maximal im Winter und Frühling, für mittlere Breiten (40 - 50°) im Sommer (Viezee und Singh, 1980). Feely et. al. (1988) sowie Rangarajan und Gopalakrishnan (1970) haben die Jahresgänge von ^{137}Cs und ^7Be miteinander korreliert, um den stratosphärischen Anteil des ^7Be an der Bodenkonzentration zu ermitteln. ^{137}Cs gehört zu den künstlichen, radioaktiven Tracern, die mit Ausnahme eines Zeitraums von wenigen Monaten nach einem Nuklearversuch rein stratosphärischen Ursprungs sind. Sie bilden daher ein direktes Maß für den Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre. Wenn jedoch noch andere von den oben genannten Prozessen eine Rolle spielen und der Jahresgang des ^7Be in Phase mit dem des ^{137}Cs ist, wird dem ^7Be am Boden fälschlicherweise ein stratosphärischer Ursprung zugeschrieben. Für viele Stationen in mittleren und höheren Breiten Nordamerikas erhalten Feely et. al. (1988) einen stratosphärischen Anteil von 30-50% im Frühling und 5 -25% im Herbst. Rangarajan und Gopalakrishnan (1970) erhalten in Bombay (Indien) im Frühling 60% und im Herbst 25%. In diesen Breiten dürfte jedoch auch der Jahresgang in der Niederschlagsrate eine Rolle spielen (Feely et. al., 1988). Dutkiewicz und Husain (1985) haben ^{90}Sr (wie ^{137}Cs ein künstlicher, radioaktiver, stratosphärischer Tracer) und ^7Be miteinander korreliert und ermitteln Werte von 40% (Frühling) bzw. 25% im Jahresmittel.

Ein sehr guter Indikator für die Herkunft und Verweilzeit einer atmosphärischen Luftmasse, insbesondere für das Eindringen stratosphärischer Luft in die Troposphäre, ist das Konzentrationsverhältnis $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ (Raisbeck et. al., 1981). Diese beiden Isotope werden im Verhältnis $^{10}\text{Be}/^7\text{Be} \approx 0.5$ produziert, die räumliche Quellverteilung ist gleich (Lal

und Peters, 1967), und nach ihrem Eintreten in die Troposphäre werden sie gleichermaßen transportiert und ausgewaschen. Der einzige Unterschied besteht in den Halbwertszeiten von 53 Tagen (^7Be) und $2.5 \cdot 10^6$ Jahren (^{10}Be) (siehe Tabelle 2). Da die mittlere Aufenthaltszeit eines Tracers in der Stratosphäre ca. ein Jahr beträgt (Raisbeck et. al., 1981) ehe eine Substanz in die Troposphäre eingemischt und schließlich ausgewaschen wird, zeichnen sich stratosphärische Luftmassen durch hohe Werte des Verhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ aus und können durch Messungen am Boden nachgewiesen werden. Im Vergleich zum ^7Be existieren jedoch nur sehr wenige ^{10}Be - Meßreihen, so daß Modellresultate nur punktuell verifiziert werden können.

Der Vertikaltransport innerhalb der Troposphäre ist aufgrund der labileren Schichtung der Atmosphäre im Sommer intensiver als im Winter, so daß insbesondere kontinentale Stationen der mittleren Breiten beider Hemisphären maximale Konzentrationswerte im Sommer aufweisen, sofern dieser Prozeß nicht durch hohe Niederschlagsraten im Sommer überdeckt wird (Brost et. al., 1991). Subtropische und tropische Stationen werden hauptsächlich vom Jahresgang der nassen Deposition beeinflusst (Feely et. al., 1988).

Arktische Stationen zeigen ebenfalls einen Jahresgang in der Tracerkonzentration mit Maximalwerten im späten Winter und Frühling (Feely et. al., 1988). Diese sind in Phase mit der Bildung des arktischen Dunstes, welcher durch die Emission von anthropogenen Aerosolen in mittleren Breiten (Nordamerika, Europa, Asien) und ihrem Transport in die Arktis verursacht wird (Rahn, 1981). Dieser Dunst verschwindet im Frühsommer aufgrund von Veränderungen in den horizontalen Transportprozessen und einem vermehrten Auswaschen der Aerosole auf ihrem Weg in die Polarregion (Barrie et. al., 1981). Dieser Verlauf entspricht dem Jahresgang der ^7Be - Konzentration, so daß die hohen Konzentrationswerte im Winter und Frühling vermutlich auf die horizontale Advektion von ^7Be - tragenden Aerosolen aus mittleren Breiten in die Arktis zurückzuführen sind (Feely et. al., 1988).

Für viele Studien wurde das ^7Be als Tracer für Transportprozesse innerhalb der Stratosphäre benutzt (z.B. Bhandari, 1970 ; Reiter et. al., 1975 ; Bhandari et. al., 1966). Ferner wird das ^7Be mit Ozon korreliert, um dessen stratosphärischen Anteil an den am Boden gemessenen Konzentrationen zu ermitteln (Wolff et. al., 1979 ; Reiter et. al., 1983 ; Dutkiewicz und Husain, 1979).

Die obigen Ausführungen haben gezeigt, daß es kritisch ist, das ^7Be zur Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre heranzuziehen, da mehrere Prozesse seine Konzentration am Boden bestimmen können, und es kein rein stratosphärischer Tracer ist. Durch Bildung des Verhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ gewinnt man zwar wertvolle Einblicke in die Charakteristika dieses Massenaustausches im Transportmodell, doch besteht das Problem der Verifizierung mittels Beobachtungsdaten wegen weniger ^{10}Be - Meßreihen. Eine bessere Interpretation können in diesem Zusammenhang

die im nächsten Abschnitt erläuterten künstlichen, radioaktiven, stratosphärischen Tracer gewähren, wobei allerdings andere Probleme auftreten.

3.3 Künstliche Radioaktivität

Anfang der 50er Jahre begannen die USA, die UdSSR und Großbritannien mit der Durchführung atmosphärischer Kernwaffenversuche, wodurch eine Vielzahl lang- wie kurzlebiger radioaktiver Isotope in die Atmosphäre eingebracht wurden (Junge, 1963). Nach einem Testmoratorium im November 1958 nahm ihre Konzentration etwas ab, ehe die UdSSR im Jahre 1961 und die USA 1962 die Atomwaffentests wiederaufnahmen. Dies führte zu Beginn des Jahres 1963 zu hohen stratosphärischen Konzentrationen. Bis Mitte 1967 fanden keine größeren Versuche statt, so daß die Isotopkonzentrationen wieder abnahmen. Danach führten Frankreich (in der Südsee) und China einige Tests durch, was eine abrupte Erhöhung der atmosphärischen Konzentrationen in der jeweiligen Hemisphäre zur Folge hatte (Staley, 1982). Nach dem letzten größeren atmosphärischen Atombombenversuch, durchgeführt von der Volksrepublik China im Oktober 1980, sind selbst die Konzentrationen der langlebigen Isotope mittlerweile unterhalb die Meßbarkeitsgrenze abgesunken (Feely et. al., 1988).

Drei Arten von atmosphärischen Kernwaffenversuchen lassen sich nach dem Ort des Versuchs unterscheiden: Detonationen in der freien Atmosphäre und solche in Bodennähe, und zwar über Land oder über Wasser. Der Versuchsort und seine Intensität bestimmen wieviel von den erzeugten radioaktiven Isotopen unmittelbar als lokaler Fallout im Testgebiet niedergeht, welcher Anteil innerhalb der Troposphäre verteilt wird, und wie hoch der Prozentsatz ist, der die Stratosphäre erreicht und bei entsprechend großer radioaktiver Halbwertszeit lange in der Atmosphäre verweilt. Die Angaben über den stratosphärischen Anteil am Fallout schwanken stark (Junge, 1963), doch kann davon ausgegangen werden, daß er für Detonationen in Erdbodennähe am geringsten ist, da hierbei große Mengen an Bodenpartikeln vom Feuerball mitgerissen werden. Diese großen Partikel binden die radioaktiven Zerfallsprodukte und werden rasch durch Sedimentation aus der Atmosphäre entfernt. Umgekehrt liegen die Verhältnisse bei Versuchen in der freien Atmosphäre. Um nennenswerte Massen an Isotopen in die Stratosphäre zu befördern, muß ein Nuklearversuch eine Intensität von über einer Megatonne haben (Machta und List, 1959).

In allen Nuklearversuchen werden die meisten Isotope durch Neutronenspaltung von ^{235}U , ^{238}U und ^{239}Pu erzeugt. Durch diesen Prozeß entsteht eine Reihe von Primärnukliden, meist jeweils zwei Nuklide mit ungleichen Massen von 100 bzw. 140 (Junge, 1963). Diese Primärnuklide sind hochgradig instabil und durchlaufen verschiedene Zerfallsketten, bis schließlich radioaktive Isotope mit unterschiedlichen Halbwertszeiten entstehen (Junge, 1963; Machta und List, 1959). Die Zusammensetzung dieser Zerfallsprodukte variiert dabei nur geringfügig von Nuklearversuch zu Nuklearversuch (Junge, 1963). Ta-

belle 3 zeigt einige durch diesen Spaltprozeß erzeugte radioaktive Isotope, für die eine große Anzahl von Beobachtungsmeßreihen existieren (Junge, 1963). Ein Grund für diese Vielzahl von stratosphärischen und troposphärischen Messungen, insbesondere der langlebigen Isotope ^{90}Sr und ^{137}Cs , ist die von ihnen ausgehende potentielle gesundheitliche Gefahr. Sie reichern sich in pflanzlichen und tierischen Lebewesen an und gelangen über die Nahrungskette in die menschlichen Knochen (Health and Safety Laboratory Reports : HASL-210, HASL-217, HASL-242, HASL-243). Die große Spannbreite der Halbwertszeiten ermöglicht das Nachweisen von Transportprozessen auf Zeitskalen von Tagen bis hin zu mehreren Jahren. Das in dieser Arbeit untersuchte ^{90}Sr ist langlebig und eignet sich beispielsweise für die Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre (siehe unten).

Isotop	Halbwertszeit
^{137}Cs	28.8 Jahre
^{90}Sr	27.7 Jahre
^{144}Ce	285 Tage
^{95}Zr	65 Tage
^{89}Sr	51 Tage
^{140}Ba	12.8 Tage

Tab.3 Auswahl einiger durch Neutronenspaltung von ^{235}U , ^{238}U und ^{239}Pu bei Atombombenversuchen in die Atmosphäre eingebrachter radioaktiver Isotope

Die künstlich erzeugten Isotope werden ebenso wie die in den beiden vorherigen Abschnitten erläuterten natürlichen Isotope von Aerosolpartikeln angehängen. Für die Stratosphäre haben diese Partikel eine Größenordnung von 0.02 bis 0.15 μm im Radius (Feely et. al., 1966). Radioaktive Isotope, die wie das ^{90}Sr verschiedene Primärnuklide als Vorläufer haben (siehe oben), werden von kleineren Aerosolen angehängen als solche die direkt erzeugt werden (Junge, 1963).

Die Verwendbarkeit künstlich erzeugter radioaktiver Isotope als Tracer für atmosphärische Transportprozesse ist nur mit Einschränkungen möglich. Ihre Quellverteilung in der Atmosphäre ergibt sich nicht wie im Falle der natürlichen Radioaktivität aus physikalisch-chemischen Gesetzmäßigkeiten, sondern ist das Resultat einer Vielzahl von Injektionen die vollkommen willkürlich in Raum und Zeit stattfanden. Auch Informationen über die Anzahl und Intensität dieser Atomtests waren nicht immer in vollem Umfang für die Öffentlichkeit zugänglich (Junge, 1963). Es ist daher schwer zu unterscheiden, ob Variationen in der Depositionsrate an bestimmten Bodenstationen das Ergebnis meteorologischer

Vorgänge sind oder das Resultat eines Kernwaffenversuchs.

Um diese Schwierigkeit zu umgehen, wird in dieser Arbeit der Zeitraum von 1963 bis 1966 untersucht, in dem keine größeren Atombombenversuche, die auch die Stratosphäre beeinflussen, stattfanden (Staley, 1982). Da die mittlere Lebenszeit eines Aerosols in der Troposphäre etwa 30 Tage beträgt (Machta und List, 1959), sind etwa ein bis zwei Monate nach dem letzten Nukleartest nur noch in der Stratosphäre Zerfallsprodukte vorhanden, oder die troposphärischen Isotope sind stratosphärischen Ursprungs. Ihre dortige Konzentrationsverteilung wird aus Messungen abgeleitet (siehe Abschnitt 5.3.1). In einem Transportmodell kann dann sowohl der kontinuierliche Abbau der stratosphärischen Tracermasse durch den Massenaustausch mit der Troposphäre untersucht werden als auch der interhemisphärische Austausch zwischen den beiden Stratosphären. Die Ergebnisse können mit Beobachtungen verglichen werden (Feely et. al., 1966 ; Fabian et. al., 1968 ; Staley, 1982).

Außer Studien der stratosphärischen Zirkulation (Krey, 1967) kann durch Bildung der Konzentrationsverhältnisse kurzlebiger zu langlebiger Isotope (z.B. $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$, $^{144}\text{Ce}/^{90}\text{Sr}$, $^{140}\text{Ba}/^{90}\text{Sr}$) das Alter von radioaktiven Zerfallsprodukten ermittelt werden, sofern ihr Produktionsverhältnis bekannt ist (Junge, 1963 ; Lockhart et. al., 1960a ; Lockhart et. al., 1960b). Sofern die Zerfallsprodukte eines Nuklearversuches dominieren, nimmt dieses Konzentrationsverhältnis mit der Halbwertszeit des kurzlebigen Isotops ab. Dies erlaubt eine Rückdatierung des Atomwaffenversuches. Ferner gibt es einige durch Neutronenaktivierung erzeugte Isotope (z.B. ^{185}W (Halbwertszeit 78.8 Tage), ^{102}Rh (210 Tage), ^{109}Cd (410 Tage) ; Staley, 1982), welche eindeutig einem bestimmten Versuch zugeordnet werden können. Sofern nicht eine Überlappung mehrerer solcher Tests stattfindet, kann seine Ausbreitung von einer praktisch punktförmigen Quelle in der Atmosphäre nachgezeichnet werden (Junge, 1963 ; Lockhart et. al., 1960a ; Lockhart et. al., 1960b).

Die jahreszeitliche Variabilität der Deposition und bodennahen Konzentration von ^{90}Sr und anderen künstlichen Isotopen ist der Untersuchungsgegenstand vieler Studien (Lockhart et. al., 1960a ; Lockhart et. al., 1960b ; Miyake et. al., 1960 ; Lockhart, 1960 ; Bleichrodt et. al., 1961 ; Wilgain et. al., 1965 ; Volchok, 1965 ; Hardy et. al., 1968 ; Freudenthal, 1970) und wird auch im Mittelpunkt dieser Arbeit stehen. Da das ^{90}Sr ein bis zwei Monate nach einem Nuklearversuch praktisch ein rein stratosphärischer Tracer ist, sind die Faktoren, welche sein Einmischen in die Troposphäre beeinflussen, von bevorzugtem Interesse. Ein in Verbindung mit der Zyklogense stehender verstärkter Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre wurde bereits im vorherigen Abschnitt erläutert (Danielsen, 1968). Die Ergebnisse von Hardy et. al. (1968), welche Maxima der Deposition von ^{90}Sr bei 45°N und 40°S und Minima am Äquator und den Polen analysiert haben, untermauern diesen Vorgang. Charakteristisch ist auch ein Frühjahrsmaximum und Herbstminimum der ^{90}Sr - Bodenkonzentration in niederen und mittleren Breiten (Bleichrodt et. al., 1961 ; Volchok, 1965 ; Staley, 1982). In der

Nordhemisphäre ist das Maximum sehr prägnant und zeigt sich zunächst im April bei ca. 10°N und dann mit einer zeitlichen Verzögerung in höheren Breiten (Staley, 1982). Bis 50°S weist die Südhemisphäre mit einem Maximum im Oktober (südhemisphärischer Frühling) eine entsprechend um sechs Monate verschobene Phase auf. Allerdings ist der Maximalwert weniger prägnant als in der Nordhemisphäre. Südlich von 50°S bildet sich ein Maximalwert im südhemisphärischen Sommer (Januar bis März) aus. Staley (1982) führt dieses Frühjahrsmaximum auf ein Anheben der Tropopause, zunächst in niederen, später dann in mittleren Breiten, zurück. Die mit ^{90}Sr und anderen künstlichen Isotopen angereicherte Luftmasse der unteren Stratosphäre verlagert sich dadurch in die obere Troposphäre und unterliegt ihren Mischungsprozessen. Im Herbst verläuft der Vorgang dann umgekehrt.

4 Das Transportmodell

Im folgenden Kapitel wird das in dieser Arbeit verwendete Transportmodell vorgestellt.

4.1 Allgemeine Bemerkungen

Sei $C(\vec{r}, t)$ das Mischungsverhältnis eines Spurenstoffes, ausgedrückt in Mol Spurenstoff pro Mol Luft oder auch kg Spurenstoff pro kg Luft, so verlangt die Massenerhaltung des Tracers :

$$\frac{d}{dt} (\rho(\vec{r}, t) \cdot C(\vec{r}, t)) = Q(\vec{r}, t) \quad (3)$$

mit

$$\begin{aligned} \rho(\vec{r}, t) &: \text{Dichte des Trägermediums (Luft) [kg m}^{-3}\text{]} \\ Q(\vec{r}, t) &: \text{Tracerspezifischer Quellen- und Senkenterm [kg m}^{-3}\text{ s}^{-1}\text{]} \end{aligned}$$

Die Größen ρ , C und Q sind Funktionen des Ortes $\vec{r} = (x, y, z)$ und der Zeit t . Spaltet man die totale zeitliche Ableitung $\frac{d}{dt}$ in ihren lokalen und advektiven Teil auf, so erhält man :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho(\vec{r}, t) \cdot C(\vec{r}, t)) + \vec{\nabla} \cdot (\vec{v}(\vec{r}, t) \rho(\vec{r}, t) C(\vec{r}, t)) = Q(\vec{r}, t) \quad (4)$$

wobei

$$\vec{v}(\vec{r}, t) : \text{Geschwindigkeitsfeld des Trägermediums [m s}^{-1}\text{]}$$

Ein Transportmodell versucht unter Vorgabe von Anfangs- und Randbedingungen eine Lösung der obigen Gleichung für einen bestimmten Raumzeitbereich zu finden. Diese Lösung läßt sich in der Praxis nur mit endlicher räumlicher und zeitlicher Auflösung finden, da auch das Strömungsfeld $\vec{v}(\vec{r}, t)$ nur mit endlicher Auflösung vorliegt. Wenn $\bar{\Phi}(\vec{r}, t)$ den Mittelwert einer Größe $\Phi(\vec{r}, t)$ über die nicht explizit aufgelösten raumzeitlichen Skalen bezeichnet, so läßt sich die obige Gleichung umformen zu :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\bar{\rho}(\vec{r}, t) \cdot \bar{C}(\vec{r}, t)) = - \vec{\nabla} \cdot (\bar{\vec{v}}(\vec{r}, t) \bar{\rho}(\vec{r}, t) \bar{C}(\vec{r}, t)) - \vec{\nabla} \cdot \vec{F}(\vec{r}, t) + \bar{Q}(\vec{r}, t) \quad (5)$$

Der hierbei neu auftretende Term $\vec{\nabla} \cdot \vec{F}(\vec{r}, t)$ bezeichnet die Divergenz der Tracerflüsse \vec{F} aufgrund der nicht explizit aufgelösten subskaligen Transportprozesse. Während der erste Ausdruck auf der rechten Seite, der Advektionsterm, explizit auf dem Modellgitter auflösbar ist, müssen die subskaligen Transporte durch geeignete Funktionen der Variablen \bar{C} , $\bar{\rho}$ und $\bar{\vec{v}}$ parameterisiert werden. Die hierzu in einfachen Modellen verwendeten Austauschansätze ("Eddy-Diffusion") eignen sich jedoch nicht für globale Transport-

bzw. Zirkulationsmodelle der Atmosphäre. Insbesondere zur Beschreibung der Effekte der vertikalen Konvektion müssen komplexere Schemata verwendet werden. Die Parameterisierung der subskaligen Prozesse in dem hier verwendeten Transportmodell wird in Abschnitt 4.4 näher erläutert, die Advektion in Kapitel 4.3. Der Term $\bar{Q}(\vec{r}, t)$ umfaßt alle Quellen und Senken eines Spurenstoffes, wobei die Senken (trockene und nasse Deposition, radioaktiver Zerfall) in den Abschnitten 4.5 bzw. 4.6 behandelt werden. Die Quellen sind tracerspezifisch und werden im 5. Kapitel beschrieben.

Grundsätzlich gibt es zwei Möglichkeiten zur numerischen Lösung der obigen Transportgleichung eines Tracers. Sie kann einerseits als zusätzliche Modellgleichung innerhalb eines Zirkulationsmodells der Atmosphäre gelöst werden ("on-line" Methode). Andererseits ist es möglich die Massenflußfelder $\overline{\rho\vec{v}}$, beispielsweise eines Zirkulationsmodells, abzuspeichern und zur Lösung der obigen Transportgleichung ein eigenes Transportmodell zu benutzen, mit den Massenflußfeldern als Input ("off-line" Methode).

Der Vorteil der "off-line" Methode liegt in ihrer größeren Flexibilität und den geringeren Rechenkosten. Dies resultiert aus der Tatsache, daß im Falle der "on-line" Modellierung für jedes Tracerexperiment das gesamte Zirkulationsmodell neu gestartet werden muß. Dadurch erhöht sich die verbrauchte Rechenzeit enorm und reduziert die Anzahl und Länge der durchführbaren Tracersimulationen. Die Verwendung der "off-line" Methode erfordert allerdings eine große Sorgfalt bei der Verarbeitung der abgespeicherten Massenflußfelder. Der Speicherplatz eines Computers reicht in der Regel nicht aus, um alle Massenflußdaten eines Zirkulationsmodells abzuspeichern. Demzufolge können nur die Momentanwerte zu bestimmten Zeiten herangezogen werden. Dies kann zu Verfälschungen in der Bodendrucktendenz führen und somit Auswirkungen auf die erforderliche Massenerhaltung des Tracers haben. Um diese Schwierigkeiten zu umgehen, sollten Mittelwerte über das betreffende Zeitintervall verwendet werden (Mahlman und Moxim, 1978). In dieser Arbeit wird der Weg der "off-line" Modellierung beschritten, wobei die Massenerhaltung des Tracers gewährleistet ist (siehe Abschnitt 4.3).

Mit einer früheren Version des hier vorgestellten Transportmodells wurden beispielsweise Simulationen von CO_2 (Heimann und Keeling, 1989) und ^{222}Rn (Heimann et. al., 1990 ; Heimann und Feichter, 1990) durchgeführt. Die hier vorgestellte neue Version besitzt eine verbesserte Parameterisierung der subskaligen Transportprozesse. Ferner wurde die trockene und nasse Deposition im Modell implementiert, sowie die vertikale und zeitliche Auflösung verbessert.

4.2 Das Modellgitter

Das Transportmodell besitzt eine horizontale Auflösung von ca. 7.83° in der Breite (24 Gitterpunkte) und exakt 10° in der Länge (36 Gitterpunkte) (Heimann und Keeling, 1989). In der Vertikalen besitzt es 19 Schichten. Diese Schichten sind definiert durch den

Druck an ihrer oberen bzw. unteren Berandung, wobei sich dieser aus der Beziehung

$$p_k = a_k + b_k \cdot p_s$$

mit $k = 0, \dots, 19$ ergibt. Die a_k 's und b_k 's sind Koeffizienten, deren Werte die Vertikal-
 koordinate definieren (siehe Tabelle 4), p_s ist der Bodendruck [hPa].

Index	a_k [hPa]	b_k
0	0.	1.
1	0.	0.9922814815
2	0.	0.9729851852
3	7.93271873	0.9285453774
4	25.76387911	0.8559091873
5	51.65578417	0.7588896435
6	81.71705195	0.6452167271
7	111.36836800	0.5242267272
8	136.35411399	0.4051301790
9	153.42973117	0.2957986686
10	160.75467708	0.2020107873
11	158.02083431	0.1270975176
12	146.34622974	0.0719273345
13	127.96392296	0.0351713042
14	105.73592240	0.0137884632
15	82.52198781	0.0036717613
16	60.43317764	0.0003948499
17	40.	0.
18	20.	0.
19	0.	0.

Tab.4 Koeffizienten zur Definition der Vertikalkoordinate des Transportmodells

Der Druck am Oberrand der Modellatmosphäre ist 0 hPa ($a_{19} = b_{19} = 0$), durch $a_0 = 0$, $b_0 = 1$ ist p_0 gleich dem Bodendruck p_s . Das übliche Sigma-Koordinatensystem ergibt sich aus diesem sogenannten Hybrid-Koordinatensystem aus dem Spezialfall $a_k = 0$ für alle $k = 0, \dots, 19$. Durch die Wahl von $b_{19} = b_{18} = b_{17} = 0$ sind die beiden obersten Schichten zwischen 40 und 20 bzw. 20 und 0 hPa fixiert (Tabelle 4). Aus der obigen Relation läßt sich eine Vertikalkoordinate η

$$\eta_k = p_k/p_s = a_k/p_s + b_k$$

definieren, welche mit der üblichen Sigma-Koordinate für $a_k = 0$ identisch ist.

4.3 Advektion

Für die Advektion des Tracers wird ein zeitabhängiges, dreidimensionales Massenflußfeld benutzt. Dieses wird aus den 6-stündigen Analysen des Geopotentials, der Temperatur, der spezifischen Feuchte sowie der horizontalen Windkomponenten des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF) des Jahres 1990 gewonnen. Die horizontale Auflösung dieses Datensatzes beträgt $1.125^\circ \times 1.125^\circ$ (320×160 Gitterpunkte). Die Parameter liegen auf 14 Druckniveaus (1000, 850, 700, 500, 400, 300, 250, 200, 150, 100, 70, 50, 30, 10 hPa) vor. In diese Analysen fließen alle verfügbaren meteorologischen Beobachtungen ein.

Ein mittels beobachteter Windfelder angetriebenes Transportmodell besitzt den Vorteil, die Modellresultate direkt mit beobachteten Spurenstoffkonzentrationen eines bestimmten Jahres vergleichen zu können. Dies ist ein härterer Test für das Modell als wenn Massenflußfelder eines Zirkulationsmodells der Atmosphäre benutzt werden. In diesem Fall müssen außerdem langjährige, klimatologisch signifikante Beobachtungsdatensätze für einen Vergleich mit den Modellresultaten vorliegen.

Bei der Auswahl des Beobachtungsjahres gilt es zu bedenken, daß das ECMWF - Analyseschema im Laufe der Zeit immer wieder verbessert und verfeinert wurde, was nicht-physikalische Veränderungen in der ECMWF-Klimatologie zur Folge hatte. Trenberth und Olson (1988) haben die ECMWF-Analysen von 1979 bis 1986 nach derartigen Auswirkungen und generell auf fehlerhafte Daten hin untersucht. In Arpe (1991) sind die wichtigsten Veränderungen des Analyse- bzw. Vorhersageschemas des ECMWF während des Zeitraums von 1985 - 1990 aufgeführt. Die hier benutzten Daten des Jahres 1990 besitzen die bisher beste zeitliche und räumliche Auflösung.

Das Transportmodell benötigt die Luftmassenflüsse in zonaler F_x und meridionaler Richtung F_y ,

$$F_x = \int_{y_1}^{y_2} \int_{z_1}^{z_2} \rho u dz dy$$

$$F_y = \int_{x_1}^{x_2} \int_{z_1}^{z_2} \rho v dz dx$$

wobei ρ [kg m^{-3}] die Luftdichte und u [ms^{-1}] bzw. v [ms^{-1}] die zonale bzw. meridionale Windkomponente ist, durch die seitlichen Ränder der Gitterboxen als Input. Der vertikale Transport wird dann im Modell aus dem Prinzip der Massenerhaltung bestimmt. Die Herleitung dieser Luftmassenflüsse aus den ECMWF - Analysen und das Korrekturverfahren zur Gewährleistung der Massenerhaltung ist in Heimann und Keeling (1989) beschrieben.

Der numerische Zeitschritt des Modells beträgt zwei Stunden. Eine Kontrolle ergab, daß er klein genug ist, so daß nie mehr Masse während eines Zeitschritts die Box verläßt, als

von ihr aufgenommen wird. Der advective Tracertransport wird zu jedem Zeitschritt mit Hilfe des numerischen "slopes schemes", welches von Russell und Lerner (1981) entwickelt wurde, ausgeführt. Dieses Schema berechnet neben der mittleren Tracerkonzentration in einer Box auch noch die zeitliche Entwicklung der drei räumlichen Konzentrationsgradienten innerhalb der Gitterzelle. Im Gegensatz zum "upstream-scheme" ist dieses Verfahren weit weniger diffusiv. Russell und Lerner (1981) haben in verschiedenen Tests gezeigt, daß ihr Schema im Falle konstanter Luftdichte in der Genauigkeit vergleichbar ist mit einem Verfahren vierter Ordnung. Im realistischeren Fall von Dichteveriationen ist es diesem sogar überlegen. Im Vergleich zum "upstream-scheme" benötigt es jedoch eine um den Faktor 2 bis 3 höhere Rechenzeit und einen vermehrten Speicherplatzbedarf (vier Felder pro Tracer statt einem ; Russell und Lerner (1981)).

Die Advektion wird zu jedem Zeitschritt in sieben Subintervalle unterteilt. In der Summe ergibt sich daraus für jede der drei Raumrichtungen wieder ein Zeitintervall von zwei Stunden :

0.5 Stunden in zonaler Richtung
 1 Stunde in meridionaler Richtung
 0.5 Stunden in zonaler Richtung
 2 Stunden in vertikaler Richtung
 0.5 Stunden in zonaler Richtung
 1 Stunde in meridionaler Richtung
 0.5 Stunden in zonaler Richtung

Dieses räumliche "leap-frog" - Verfahren (Russell und Lerner, 1981) repräsentiert verschiedene Zeitschritte in den drei Raumrichtungen. Damit trägt man einerseits der Tatsache Rechnung, daß die zonale Ausdehnung der Gitterboxen mit zunehmendem Abstand vom Äquator abnimmt, andererseits spiegeln sich darin die unterschiedlichen typischen Größenordnungen der drei Windkomponenten wider. Für die unmittelbar an die Polboxen angrenzenden Gitterzellen wird eine weitere Unterteilung des Advektionszeitschrittes in zonaler Richtung durchgeführt (Heimann und Keeling, 1989).

Nach jedem Advektionsschritt werden die, im nächsten Abschnitt erläuterten, subskaligen, vertikalen Prozesse simuliert. Das verwendete Transportmodell enthält keine explizite horizontale Diffusion.

4.4 Subskalige Prozesse

Ein sehr wesentlicher subskaliger Prozeß in allgemeinen Zirkulations- bzw. Transportmodellen der Atmosphäre ist die Cumulus - Konvektion. Sie beeinflußt die großräumige Zirkulation durch :

- Diabatische Erwärmung aufgrund des Freisetzens latenter Wärme
- Vertikalen, turbulenten Transport von Wärme, Feuchte und Impuls
- Wechselwirkung der Wolken mit der Strahlung

Daneben übt sie einen möglicherweise nicht unerheblichen Einfluß auf die Tracerverteilung aus (Tiedtke, 1990). Die mit dieser vertikalen Konvektion verbundenen räumlichen Skalen sind wesentlich kleiner als die in globalen Transportmodellen explizit aufgelösten, so daß nur der kollektive Effekt von Cumulus - Konvektion parameterisiert werden kann. Eine derartige Parameterisierung setzt eine Beziehung zwischen der großräumigen Strömung und der Cumulus-Konvektion voraus, d.h. es müssen physikalische Parameter existieren, welche die Cumulus-Konvektion kontrollieren. Man spricht in diesem Zusammenhang vom Schließungsansatz des Parameterisierungsschemas, von denen eine ganze Reihe in der Literatur existieren (Tiedtke, 1988). In dieser Arbeit werden weitgehend die hierzu von Tiedtke (1989) in einem Wolkenmodell entwickelten Ideen eines Massenflußschemas übernommen, die im folgenden kurz skizziert werden.

Cumuluswolken seien in einer Gittersäule des Transportmodelles eingebettet. Sie besitzen eine einheitliche Wolkenbasis, aufgrund unterschiedlicher En- und Detrainmentraten jedoch variable Obergrenzen. Eine Wolke wird charakterisiert durch ihren aufwärts bzw. abwärts gerichteten Massenfluß und ihre thermischen Eigenschaften, wie die trockene statische Energie ($s = c_p T + gz$, mit c_p : spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck [$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$], T : Temperatur [K], g : Gravitationsbeschleunigung [ms^{-2}], z : Höhe [m]), die spezifische Feuchte q [kg Wasserdampf / kg Luft] und den Flüssigwassergehalt l [kg Wasser / kg Luft]. Aus Beobachtungen ist bekannt, daß ein ganzes Spektrum von Wolkenformationen, je nach Art der synoptischen Situation, existiert. Hieraus ergibt sich die Frage, wie detailliert dieses Wolkenensemble parameterisiert werden muß, um realistische Ergebnisse in einem Transportmodell zu erhalten. Die hierzu von Tiedtke (1989) durchgeführten Verifizierungen des Schemas anhand von Beobachtungen zeigen, daß es für den hier verfolgten Zweck ausreicht, das Wolkenensemble als eine Einheit in einem eindimensionalen Wolkenmodell mittels Massenfluß und En- bzw. Detrainmentraten zu beschreiben. Die Differenz zwischen Entrainment und Detrainment bestimmt den vertikalen Massenfluß in der Wolke. In ihrem unteren Bereich überwiegt das Entrainment durch die Wolkenbasis und ihre Ränder, im oberen Bereich, wo die Wolke ihren Auftrieb verliert und zerfließt, das Detrainment (Tiedtke, 1990).

Tiedtke (1989) wendet das Wolkenmodell getrennt auf drei verschiedene Arten von Konvektion an :

1. Hochreichende konvektive Bewölkung
2. Flache Konvektionsbewölkung
3. Konvektion in mittleren und polaren Breiten, wie sie z.B. in Regenbändern an der Warmfront bzw. im Warmluftsektor von Zyklonen auftritt

Hochreichende konvektive Bewölkung tritt häufig in Verbindung mit einer ausgeprägten, großräumigen Konvergenz in den unteren Luftschichten bei gleichzeitiger Anwesenheit einer hochreichend instabilen Schichtung auf (typisch für die Tropen). Beispiele für die flache konvektive Bewölkung sind die unterhalb einer Inversion auftretenden Passatwindcumuli oder die tägliche Konvektion über Land. Ihre Entstehung wird weniger durch die großskalige Wasserdampfkonvergenz, als vielmehr durch lokale Turbulenz unterhalb der Wolkenbasis kontrolliert. Die Konvektion im Bereich außertropischer Zyklonen ist in dieser Arbeit noch nicht parameterisiert worden. Wie später im 5. Kapitel gezeigt wird, treten die größten Diskrepanzen zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen in den Polarregionen auf. Die Nichtberücksichtigung der Konvektion im Bereich außertropischer Zyklonen könnte zu diesem Dissens teilweise beitragen.

Das Verfahren zur Bestimmung der En- bzw. Detrainmentraten und damit des subskaligen, vertikalen Massenflusses in einer Modellgitterbox ist in Tiedtke (1989) beschrieben. Hierbei werden, wie bei der Advektion, die ECMWF - Analysen des Jahres 1990 benutzt. Die En- und Detrainmentraten werden abgespeichert und vom Transportmodell als Input eingelesen.

Abbildung 3 zeigt den jährlich und horizontal gemittelten konvektiven Massenfluß in Abhängigkeit vom Druckniveau (durchgezogene Kurve) im Transportmodell. Er erreicht ein Maximum von ca. $14 \text{ g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ in der unteren Troposphäre und fällt dann kontinuierlich auf Null in Tropopausenhöhe ab. Den Hauptbeitrag zum Maximalwert in der unteren Troposphäre liefert die flache Konvektionsbewölkung, in größeren Höhen spielt die tropische Konvektion die Hauptrolle (Tiedtke, 1990). Vergleichend dazu stellt die gestrichelte Kurve den entsprechenden konvektiven Massenfluß in einem atmosphärischen Zirkulationsmodell dar, welches sowohl Grenzschichtturbulenz als auch flache und hohe Konvektionsbewölkung berücksichtigt (Brost und Heimann, 1991). Der Verlauf ist ähnlich und weist analog Maximalwerte von ca. $14 \text{ g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ in den unteren Atmosphärenschichten auf.

Abbildung 4 zeigt einen Meridionalschnitt des jährlich und zonal gemittelten konvektiven Massenflusses im Transportmodell. Die mittleren Breiten weisen hohe Werte in der unteren Troposphäre auf, die oberhalb davon aber aufgrund verstärkten Detrainments rasch abnehmen (flache Konvektion). Die Tropen weisen kleinere, dafür aber bis in große Höhen reichende konvektive Massentransporte auf (Tiedtke, 1990).

Ein weiterer wichtiger subskaliger Prozess, insbesondere in der planetarischen Grenzschicht, ist die vertikale Turbulenz ("eddy - fluxes"). Der sie beschreibende Diffusionskoeffizient ist eine Funktion der Windscherung und thermischen Schichtung in der Atmosphäre. Das hierzu von Louis (1979) entwickelte Schema stellt eine Beziehung zwischen den explizit auf einem Gitter aufgelösten physikalischen Parametern (Temperatur, Geopotential, horizontale Windgeschwindigkeitskomponenten) und der Größe dieses Ko-

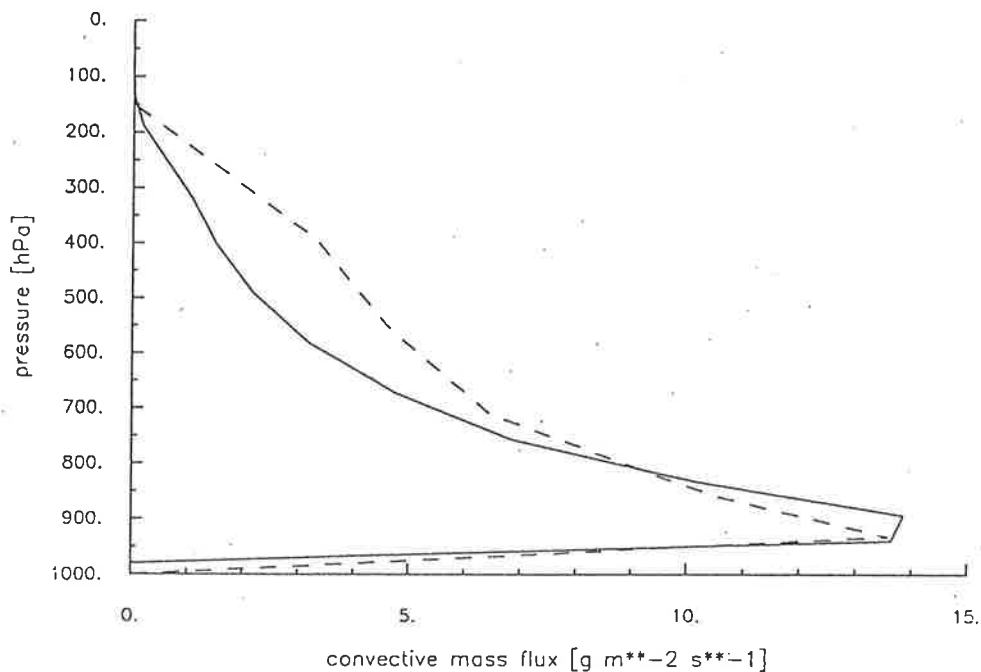


Abb.3 Jährlich und horizontal gemittelter konvektiver Massenfluß [$\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$] in Abhängigkeit vom Druckniveau im Transportmodell (durchgezogene Kurve). Die gestrichelte Kurve zeigt vergleichend dazu den Massenfluß in einem atmosphärischen Zirkulationsmodell, welches neben der Grenzschichtturbulenz sowohl flache als auch hochreichende Konvektionsbewölkung berücksichtigt (siehe Brost und Heimann, 1991).

effizienten her. Es berücksichtigt sowohl thermisch wie mechanisch induzierte Turbulenz. Der mittels dieses Schemas und den ECMWF - Analysen abgeleitete Diffusionskoeffizient wird zusammen mit den En- und Detrainmentraten abgespeichert und vom Transportmodell als Input eingelesen. Aus diesen Größen bestimmt das Transportmodell eine Konvektionsmatrix, welche die subskaligen Massentransfers zwischen verschiedenen Schichten beschreibt.

4.5 Trockene und nasse Deposition

Die im Transportmodell verwendete Parameterisierung der trockenen Deposition ist recht simpel. Wie in Abschnitt 2.1 erläutert wurde, ergibt sich die trockene Depositionsrate eines Spurenstoffes aus dem Produkt der trockenen Depositionsgeschwindigkeit und seiner Konzentration in einer bestimmten Referenzhöhe. Für alle hier untersuchten radioaktiven Tracer wird ein konstanter Wert der trockenen Depositionsgeschwindigkeit von $v_d = 0.1 \text{ cm s}^{-1}$ (Brost et. al., 1991 ; Feichter et. al., 1991) verwendet und mit der Spu-

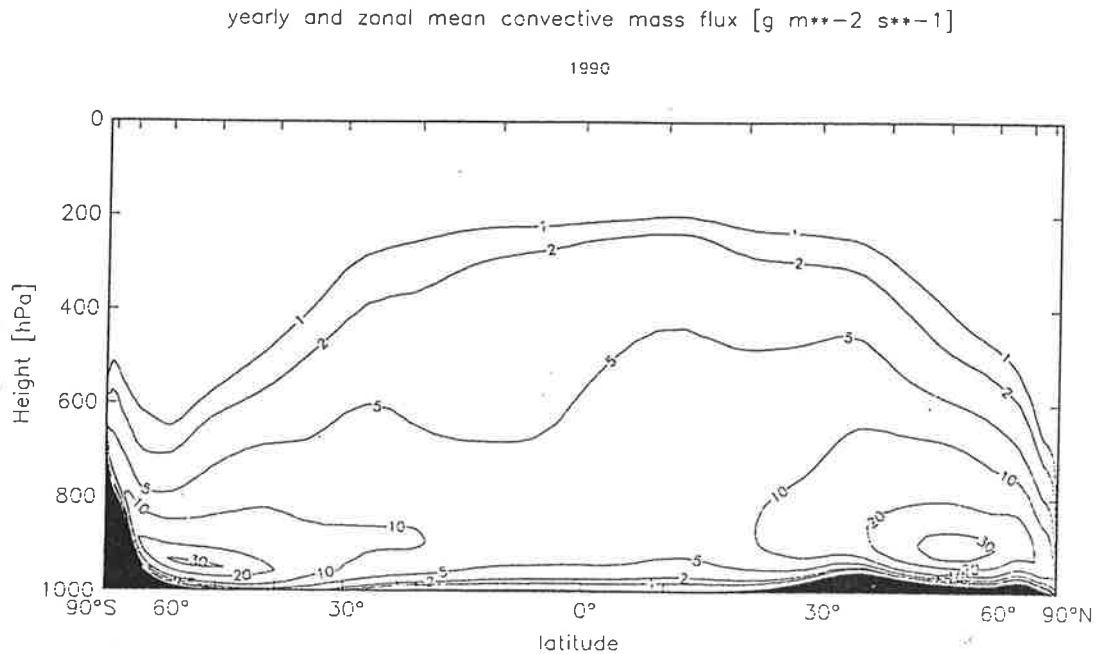


Abb.4 Meridionalschnitt des jährlich und zonal gemittelten konvektiven Massenflusses [$\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$] im Transportmodell.

renstoffkonzentration im untersten Modellniveau multipliziert. Dieser einfache Ansatz erscheint aufgrund der im Vergleich zur nassen Deposition relativ geringen Bedeutung der trockenen Deposition für radioaktive, atmosphärische Spurenstoffe gerechtfertigt (siehe Kapitel 2.1). Ferner ist die Abhängigkeit der Depositionsgeschwindigkeit vom Partikelradius für den hier interessierenden Größenbereich (Radien der die radioaktiven Isotope anbindenden Aerosole) weniger stark ausgeprägt (Sehmel, 1980).

Für die nasse Deposition wird das Parameterisierungsschema von Kasibhatla et. al. (1991) verwendet. Die Parameterisierung von Mahlman und Moxim (1978) wird nur punktuell zur Darstellung bestimmter Sachverhalte vergleichend herangezogen (siehe Kapitel 5). Beide Schemata werden im folgenden näher erläutert.

Kasibhatla et. al. (1991) betrachten eine Säule der Grundfläche A und Höhe H aus der auf einen Teilbereich $F \leq A$ Niederschlag fällt. Im Falle hochgradig wasserlöslicher Substanzen wird angenommen, daß F auch den Anteil eines Tracers in einer Box beschreibt, der während eines Niederschlagsereignisses ausgewaschen wird. Die nasse Depositionsrate einer solchen Substanz für jeden Zeitschritt und jede Gitterbox läßt sich dann durch

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\frac{Fc}{\Delta t} \quad (6)$$

beschreiben, wobei c [kg kg^{-1}] das Mischungsverhältnis des Tracers in der Luft ist. F gilt es nun zu bestimmen.

Sei L [kg m^{-3}] der Flüssigwassergehalt der Wolke und R [m s^{-1}] die über die Grundfläche A gemittelte Niederschlagsrate, dann ist das Volumen der Wolke V_c gleich

$$V_c = \frac{AR\Delta t\rho_w}{L}$$

wobei ρ_w [kg m^{-3}] die Dichte des Flüssigwassers ist. Der Begriff "Wolke" bezieht sich auf den Teil der Säule, wo Niederschlag erzeugt wird (Giorgi und Chameides, 1986). Der Teilbereich F , über dem Niederschlag fällt, und somit nasse Deposition auftritt, ist dann

$$F = \frac{V_c}{HA} = \frac{R\Delta t\rho_w}{LH} \quad (7)$$

Die Gleichungen (6) und (7) bilden das Parameterisierungsschema der nassen Deposition. Es wird zwischen stratiformen und konvektivem Niederschlag unterschieden und dementsprechend unterschiedliche Werte für die Parameter L und H benutzt. Die von Kasibhatla et. al. (1991) vorgeschlagenen Werte von $L \equiv L_c = 2 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$ (konvektiver Niederschlag) und $L \equiv L_s = 0.5 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$ (stratiformer Niederschlag) lieferten in ersten Testläufen zu hohe Auswaschraten. Die hier benutzten Werte sind

$$L_s = 1.5 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$$

$$L_c = 2.5 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$$

welche im Rahmen von Beobachtungsdaten liegen (Warneck, 1988 ; Mason, 1957).

Die Höhe der Säule H beträgt bei einem stratiformen Niederschlagsereignis 3170 m, bei konvektivem Niederschlag 8680 m. Diese Werte entsprechen in etwa der Höhe der 7. bzw. 11. Modellschicht. Dadurch trägt man der Tatsache Rechnung, daß der konvektive Niederschlag größere Bereiche der Troposphäre beeinflusst.

Mahlman und Moxim (1978) definieren die nasse Depositionsrate einer Substanz, für jeden Zeitschritt und jede Gitterbox, wie folgt :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\frac{1}{L_T} \left(\frac{R}{\bar{R}_G} \right) c \quad (8)$$

wobei R [m s^{-1}] die über die Grundfläche einer Modellgittersäule gemittelte Niederschlagsrate, \bar{R}_G [m s^{-1}] der globale Mittelwert von R , c [kg kg^{-1}] das Mischungsverhältnis des Tracers in der Luft und L_T [s] die Tracerlebensdauer in der Gitterbox ist.

Diese Tracerlebensdauer variiert nur mit der Höhe und bleibt horizontal und zeitlich konstant. Eine horizontale und zeitliche Abhängigkeit der Auswaschrates $\frac{\partial c}{\partial t}$ wird durch

den Faktor $\frac{R}{\bar{R}_G}$ eingebracht. Die in dieser Arbeit benutzten Werte von L_T [Tagen] für die unteren 11 Modellschichten sind :

$$L_T(1) = 3.86$$

$$L_T(2) = 4.17$$

$$L_T(3) = 4.74$$

$$L_T(4) = 5.39$$

$$L_T(5) = 5.88$$

$$L_T(6) = 6.84$$

$$L_T(7) = 8.03$$

$$L_T(8) = 9.05$$

$$L_T(9) = 10.02$$

$$L_T(10) = 10.99$$

$$L_T(11) = 11.87$$

Durch Zunahme der Werte von L_T mit der Höhe berücksichtigt man die Abnahme der Niederschlagsmenge aus der Gitterbox. Oberhalb des 11. Modellniveaus tritt keine nasse Deposition mehr auf. Das Schema unterscheidet nicht zwischen stratiformen und konvektivem Niederschlag und benutzt für R bzw. \bar{R}_G die Gesamtniederschlagsrate.

Die im Transportmodell benutzten Niederschlagsfelder müssen eine möglichst gute räumliche wie zeitliche Auflösung besitzen, um der hohen Variabilität des Niederschlags und damit auch den stark schwankenden Depositionsraten eines Spurenstoffs Rechnung zu tragen. Niederschlagsklimatologien, die auf Monatsmittelwerten beruhen, sind hierfür deshalb weniger geeignet. Brauchbarer ist die Verwendung von Niederschlagsfeldern aus einem atmosphärischen Zirkulationsmodell oder aber die Verwendung von ECMWF-Vorhersagen.

Die auf täglicher Basis durchgeführten, 36-stündigen Vorhersagen für das Jahr 1990 werden in dieser Arbeit benutzt. Sie bieten die optimale Möglichkeit speziell die Niederschlagsverhältnisse im hier untersuchten Jahr 1990 widerzuspiegeln. Vom Deutschen Wetterdienst werden zur Zeit aus allen Niederschlagsbeobachtungen eines bestimmten Jahres globale Niederschlagsfelder erarbeitet. Zum Zeitpunkt des Erstellens dieser Arbeit stand der Datensatz für das Jahr 1990 jedoch noch nicht zur Verfügung, so daß die ECMWF-Vorhersagen für das Jahr 1990 zur Zeit für die Zielsetzung dieser Arbeit am besten geeignet sein dürften.

Diese Vorhersagen liegen getrennt für den stratiformen und den konvektiven Niederschlag vor. Mit Hilfe der Trapezregel werden sie vom ECMWF - Gitter ($1.125^\circ \times 1.125^\circ$

horizontale Auflösung) auf das Transportmodellgitter integriert. Die Qualität dieser Vorhersagen wird in Arpe (1991) näher untersucht.

Abbildung 5 zeigt für Januar und Juli ein meridionales Profil des zonal gemittelten Niederschlags, sowohl für die ECMWF - Vorhersage (durchgezogene Linie) als auch für die klimatologischen Datensätze von Legates (Legates und Willmott, 1990 ; gestrichelte Linie) und Jaeger (Jaeger, 1976 ; kurz-lang gestrichelte Linie).

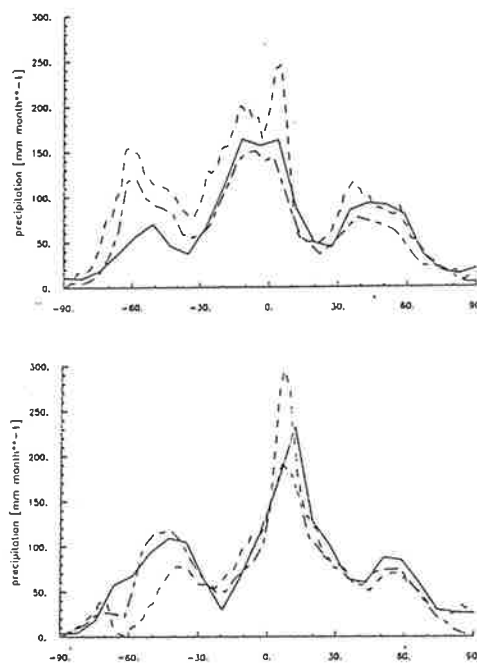


Abb.5 Meridionalprofil der zonal gemittelten Niederschlagsrate [$mm\text{Monat}^{-1}$] für den Januar (oben) und Juli (unten). Die durchgezogene Linie beschreibt die ECMWF - Vorhersage, die gestrichelte die Klimatologie nach Legates und Willmott (1990), die kurz-lang gestrichelte die von Jaeger (1976)

Die grundlegenden Charakteristika der Niederschlagsverteilung geben die Vorhersagen recht gut wieder. Die Tropen werden hauptsächlich vom konvektiven Niederschlag beeinflusst, während die Maxima in den mittleren Breiten, insbesondere im Winter, vom stratiformen Niederschlag herrühren. Durch die Integration auf das grobe Transportmodellgitter gehen räumliche Informationen verloren. Eine deutliche Diskrepanz zwischen den Vorhersagen und den beiden klimatologischen Datensätzen scheint im Bereich der Südhemisphäre zwischen 40° und 60° im Januar zu existieren. Die Vorhersagewerte sind hier deutlich geringer (Arpe, 1991).

4.6 Chemische Prozesse

Das hier vorgestellte globale Transportmodell der Atmosphäre erlaubt prinzipiell Simulationen mit einer beliebigen Anzahl von Tracern. Entsprechend deren chemischer Zerfallskonstante (radioaktiver Zerfall) bzw. ihrer Umwandlungsrate (z.B. ^{222}Rn zu ^{210}Pb) wird zu jedem Modellzeitschritt von zwei Stunden an jedem Gitterpunkt die Tracermasse und ihr räumlicher Gradient dementsprechend korrigiert.

5 Die Modellsimulationen

Im folgenden Kapitel werden die Resultate der Modellläufe vorgestellt. Wenn nicht ausdrücklich anders angegeben, beruhen alle im folgenden gezeigten Ergebnisse auf Simulationen mit Verwendung des Parameterisierungsschemas der nassen Deposition nach Kasibhatla et. al. (1991) und den in Kapitel 4.5 angegebenen Parametern. Dieser Modellauf wird als Referenzlauf bezeichnet. Als Sensitivitätstest werden die Parameter im Schema von Kasibhatla et. al. (1991) variiert bzw. wird das Schema von Mahlman und Moxim (1978) benutzt (siehe Kapitel 4.5). Abschnitt 5.1 befaßt sich mit dem troposphärischen ^{210}Pb , Kapitel 5.2 behandelt die Isotope ^7Be und ^{10}Be , und abschließend werden in Kapitel 5.3 die Ergebnisse der ^{90}Sr - Simulationen präsentiert.

5.1 Natürliche radioaktive Tracer aus Bodenemissionen (Radon-222 und Blei-210)

Wie in Abschnitt 3.1 erläutert wurde, schwankt die ^{222}Rn - Emissionsrate des Erdbodens stark mit seinem Gehalt an ^{226}Ra , seiner Porosität und den meteorologischen Gegebenheiten. Wie erwähnt, werden diese saisonalen und lokalen Variationen vernachlässigt und eine konstante ^{222}Rn - Emissionsrate von $1 \text{ atom cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ aus allen eisfreien Landoberflächen verwendet (Heimann und Feichter, 1990). Als eisfrei gelten im Transportmodell die geographischen Breiten von 62.61°S bis 70.43°N . Dieser recht einfache Ansatz basiert auf der Annahme, daß sich lokale Differenzen über die große Grundfläche einer Gitterbox herausmitteln (Feichter et. al., 1991). Da die Tochterprodukte des ^{222}Rn bis hin zum ^{210}Pb sehr kurzlebig sind (Tabelle 1), zerfällt das ^{222}Rn innerhalb des Modellzeitschritts von zwei Stunden direkt zu ^{210}Pb . Ein Atom ^{222}Rn bildet dabei ein Atom ^{210}Pb . Es wird eine zweijährige Simulation durchgeführt, die mit einer Anfangskonzentration von null für ^{222}Rn und ^{210}Pb startet. Die hier gezeigten Resultate basieren auf dem zweiten Modelljahr. Pro Jahr und Tracer benötigt das Transportmodell ca. 950 CPU - Sekunden auf einer CRAY-2S.

Nach einer kurzen Vorstellung des Beobachtungsdatensatzes (Kapitel 5.1.1), wird die Lebensdauer der ^{210}Pb - Atome tragenden Aerosole in der Atmosphäre untersucht (Abschnitt 5.1.2). Nach einer Analyse der globalen Konzentrations- und Depositionsverteilung (Kapitel 5.1.3), befaßt sich der Abschnitt 5.1.4 mit den daraus abzuleitenden Transportprozessen und ihrer jahreszeitlichen Variabilität.

5.1.1 Der Beobachtungsdatensatz

Die verfügbaren Beobachtungen bestehen sowohl aus Monats- bzw. Jahresmittelwerten der bodennahen Konzentration, als auch aus Messungen der jährlichen Deposition. Abbildung 6 zeigt die geographische Verteilung der Depositionsmeßstationen, Abbildung 7

die Lage der Konzentrationsmeßstationen.

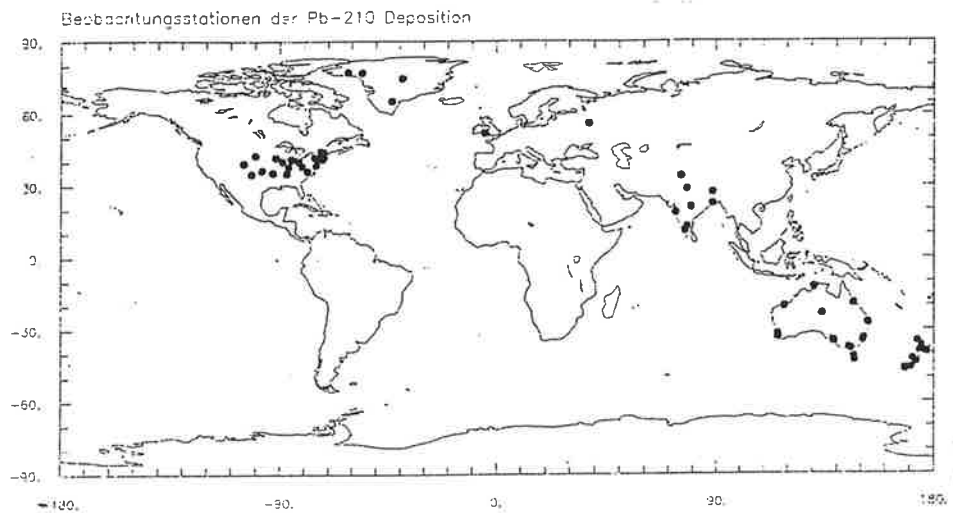


Abb.6 Geographische Verteilung der ^{210}Pb - Depositionsmeßstationen. Die Stationen sind als schwarze Punkte gekennzeichnet.

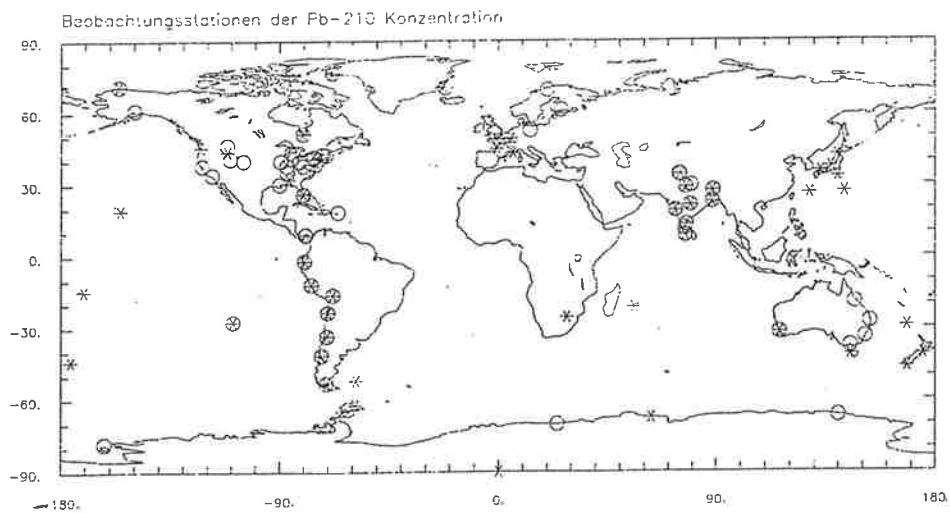


Abb.7 Geographische Verteilung der Meßstationen der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration. Meßorte mit Monatsmittelwerten sind mit einem Stern, Meßorte mit Jahresmittelwerten mit einem Kreis gekennzeichnet.

^{210}Pb - Konzentrationen in der Luft erhält man, indem spezielle Filter für eine bestimmte Zeit den atmosphärischen Luftmassen ausgesetzt werden, und die Radioaktivität der von ihnen aufgenommenen Aerosole gemessen wird. Monatsmittel für das Jahr 1990 existieren an insgesamt 33 Stationen des Meßnetzes des Environmental Measurements

Laboratory (EML, U.S. Department of Energy) in New York (Larsen und Sanderson, 1991), an sechs französischen Stationen (Commissariat a l'Energie Atomique, 1990a,b,c) sowie an der Georg-von-Neumayer Station in der Antarktis (Wagenbach, 1993 ; private Mitteilung). Ferner existieren Meßreihen aus den 60er Jahren für neun indische Stationen (Gopalakrishnan et. al., 1973) sowie monatliche Mittelwerte von März 1981 bis Juni 1983 an sechs Orten im westlichen Nordpazifik (Tsunogai et. al., 1988).

Die mittleren Jahreskonzentrationen wurden aus mehr oder weniger langen Beobachtungsreihen von einem bis hin zu 19 Jahren gewonnen (Lambert et. al., 1982 ; Graustein und Turekian, 1986 ; Kolb, 1984, 1986, 1988, 1990). Insgesamt stehen 61 Stationen zur Verfügung. Wie Abbildung 7 zeigt, existieren viele Meßorte in Nord- und Südamerika. Sehr gering ist die Meßdichte in Afrika und weiten Teilen Asiens.

Die ^{210}Pb - Depositionsrates kann man einerseits durch Messung der ^{210}Pb - Konzentration im Niederschlag ermitteln. Damit erfaßt man zwar nur die nasse Deposition, welche jedoch den Hauptanteil an der gesamten Deposition besitzt (siehe Kapitel 2). Andererseits werden natürliche Kollektoren, wie z.B. Schneeoberflächen, Sedimente von Seen oder verschiedene Bodentypen ausgewählt. Dies erfordert die Abwesenheit jeglicher tierischer bzw. menschlicher Aktivitäten, wie z.B. Ackerbau, in den letzten ca. 100 Jahren (Graustein und Turekian, 1986). Diese Methode liefert zuverlässige Resultate der jährlichen ^{210}Pb - Deposition, erlaubt jedoch keine Aussagen über deren jahreszeitliche Variabilität. Durch Wiederaufwirbelung bereits deponierter ^{210}Pb - Aerosole kann diese Methode zu einer Unterschätzung der Deposition an einer Meßstation führen und Diskrepanzen beim Vergleich mit den Transportmodellresultaten verursachen. Durch die Mittelung über ein größeres Gebiet und mehrere Stationen läßt sich diese etwaige Mißdeutung reduzieren (Feichter et. al., 1991). Depositionsmessungen speziell für das Jahr 1990 existieren nicht.

Wie Abbildung 6 zeigt, ist die Meßdichte in den USA und Australien / Neuseeland besonders groß. Für die Antarktis, Südamerika, Afrika, weite Teile Asiens und die Ozeane existieren jedoch überhaupt keine Meßwerte. Insgesamt liegen 58 Beobachtungsstationen vor (Turekian et. al, 1977 ; Graustein und Turekian, 1986 ; Nijampurkar und Clausen, 1990).

5.1.2 Lebensdauer der Aerosole in der Atmosphäre

Die Absorption der ^{210}Pb - Atome durch Aerosole der Größenordnung 0.05 bis 0.25 μm im Radius (Turekian et. al., 1977 ; Graustein und Turekian, 1986) eröffnet die Möglichkeit, die mittlere Lebenszeit dieser Aerosole in der Atmosphäre zu untersuchen. Diese Analyse ist auch für das Studium des atmosphärischen Schwefelkreislaufes von Bedeutung, da die Sulfataerosole eine ähnliche Größe und Quellverteilung besitzen (Tsunogai et. al., 1988).

Eine mittlere Lebensdauer kann definiert werden als das Verhältnis der in der Atmosphäre befindlichen Tracermasse zu ihrer Depositionsrates (Ehhalt, 1973). Dies ist die

Zeit innerhalb derer die Tracermasse auf $1/e$ ihres Anfangswerts reduziert würde, wenn keine Quellen existierten (Feichter et. al., 1991).

Abbildung 8 zeigt zwei Vertikalprofile der global und jährlich gemittelten Lebenszeit der ^{210}Pb - Aerosole im Transportmodell. Die durchgezogene Kurve beschreibt das Resultat des Referenzlaufes (Schema von Kasibhatla et. al. (1991)), während die gestrichelte das Ergebnis bei Verwendung des Depositionsschemas von Mahlman und Moxim (1978) bezeichnet (Kapitel 4.5). Die Aerosollebensdauer nimmt kontinuierlich mit der Höhe zu. Im untersten Modellniveau beträgt sie nur ca. einen Tag, da sowohl trockene als auch nasse Deposition wirken. In etwa 8 km Höhe ist sie auf 20 Tage angewachsen. Im Falle des Schemas von Mahlman und Moxim (1978) (gestrichelte Linie) ergeben sich im Bereich der mittleren Troposphäre (2 bis 6 km Höhe) um ca. ein bis drei Tage höhere Lebenszeiten als im Schema von Kasibhatla et. al. (1991), d.h. das Schema von Mahlman und Moxim (1978) wäscht weniger aus.

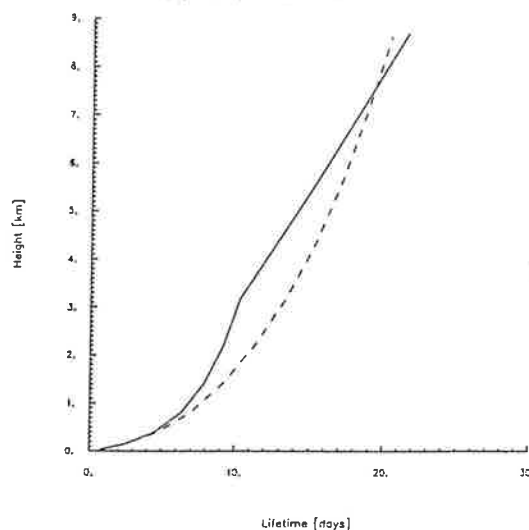


Abb.8 Vertikalprofile der global und jährlich gemittelten Lebenszeit der ^{210}Pb - Aerosole [Tage] im Transportmodell. Die durchgezogene Kurve bezeichnet den Referenzlauf (Parameterisierungsschema von Kasibhatla et. al. (1991)), die gestrichelte Linie beschreibt den Verlauf bei Verwendung des Schemas von Mahlman und Moxim (1978).

Die Ursache für diese Differenz zwischen den beiden Schemata ist in den a priori getroffenen Annahmen über die Vertikalverteilung des Niederschlags zu suchen. Die im Schema von Mahlman und Moxim (1978) jeder Modellschicht zugeordnete mittlere Tracerlebensdauer verursacht den gleichmäßigen Anstieg der Aerosollebenszeit mit der Höhe. Im Schema von Kasibhatla et. al. (1991) werden hingegen für den stratiformen bzw. konvektiven Niederschlag vertikale Mächtigkeiten vorgeschrieben (Kapitel 4.5). Unter-

halb von ca. 3.1 km bewirken stratiformer und konvektiver Niederschlag die nasse Deposition, oberhalb davon nur noch konvektiver. Diese Annahme spiegelt sich auch im Verlauf der Lebensdauer (durchgezogene Kurve) wider. Unterhalb von 3 km Höhe nimmt die Lebenszeit nur sehr langsam zu, oberhalb davon dann schneller.

Die vom Transportmodell gelieferten Lebenszeiten von einem bis zehn Tagen in der unteren Troposphäre sind in guter Übereinstimmung mit den von Poet et. al. (1972) (vier Tage) und Moore et. al. (1973) (sieben Tage) aus Messungen des ^{222}Rn und seiner Tochterprodukte erhaltenen. Blifford et. al. (1952) geben einen Wert von zehn Tagen an. Für die obere Troposphäre konstatieren Moore et. al. (1973) Werte von 14 bis 18 Tagen, welche etwas niedriger als im Transportmodell sind.

Von Interesse ist ferner die Abhängigkeit der Aerosollebensdauer von der geographischen Breite und der Jahreszeit. Abbildung 9 zeigt hierzu Meridionalprofile der modellierten, zonal und vertikal gemittelten, mittleren Verweilzeit der Aerosole in der Atmosphäre für den Januar (durchgezogene Kurve) und den Juli (gestrichelte Kurve). Diese Lebensdauer zeigt einen konträren Verlauf zur Niederschlagsverteilung (siehe Abbildung 5, Abschnitt 4.5). Die Subtropen (20 bis 40°) und Polarregionen beider Hemisphären zeichnen sich aufgrund ihrer geringen Niederschlagsraten durch hohe Aerosolverweilzeiten (13 bis 30 Tage) aus. Die trockene Deposition gewinnt in diesem Bereich an Bedeutung. Ihre sehr einfache Parameterisierung im Modell (siehe Kapitel 4.5) macht sich in diesen trockenen Gebieten möglicherweise verstärkt nachteilig bemerkbar und beeinflusst auch das Ergebnis der Aerosollebenszeiten. Hohe Niederschlagsraten im Bereich der ITCZ (5°N) und in den mittleren Breiten (40 bis 60°) verursachen Lebenszeiten der Aerosole von nur 5 bis 10 Tagen. Diese Struktur besteht sowohl im Januar als auch im Juli, ist aber im Sommer entsprechend zu höheren Breiten hin verschoben.

Abbildung 10 zeigt einen Meridionalschnitt der zonal und jährlich gemittelten ^{210}Pb - Aerosollebenszeit im Transportmodell. Auch in dieser Darstellung kristallisieren sich hohe Lebenszeiten in den Subtropen und Polarregionen sowie niedrige im Bereich der ITCZ und den mittleren Breiten heraus. Die hohen Niederschlagsraten der Tropen und mittleren Breiten verursachen Aerosollebenszeiten von unter 10 Tagen im gesamten Bereich der Troposphäre. Die Variation mit der geographischen Breite ist in der mittleren und oberen Troposphäre stärker ausgeprägt als in den unteren Atmosphärenschichten. Sehr hohe Lebenszeiten existieren in der mittleren und oberen antarktischen Troposphäre. Sie werden wahrscheinlich durch einen Aerosoltransport aus den mittleren Breiten verursacht (Lambert et. al., 1990b ; siehe auch Kapitel 5.1.4).

Abbildung 11 zeigt den Jahresmittelwert der ^{210}Pb - Aerosollebenszeit in der untersten Modellschicht (unteres Bild) und im 320 hPa - Niveau (oberes Bild). Im untersten Modellniveau liegt die Lebenszeit generell unterhalb von einem Tag, da sowohl trockene als auch nasse Deposition wirken. Die Verhältnisse sind sehr homogen, wobei sich jedoch

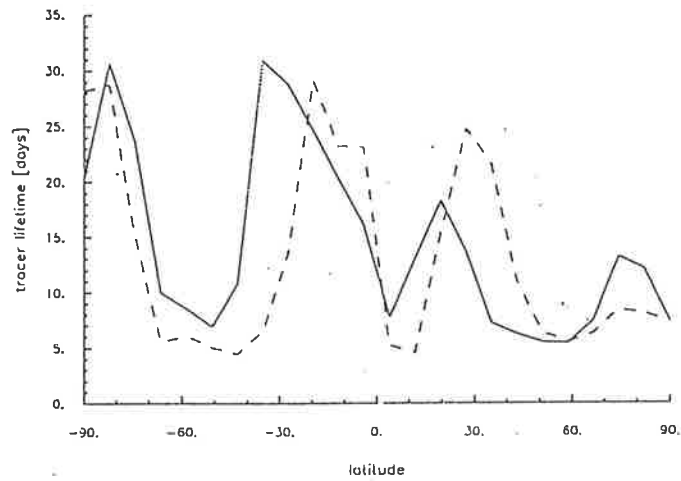


Abb.9 Zonal und vertikal gemittelte, mittlere Lebenszeit [Tage] der ^{210}Pb - Atome absorbierenden Aerosole in Abhängigkeit von der geographischen Breite für den Januar (durchgezogene Kurve) und den Juli (gestrichelte Kurve) im Transportmodell.

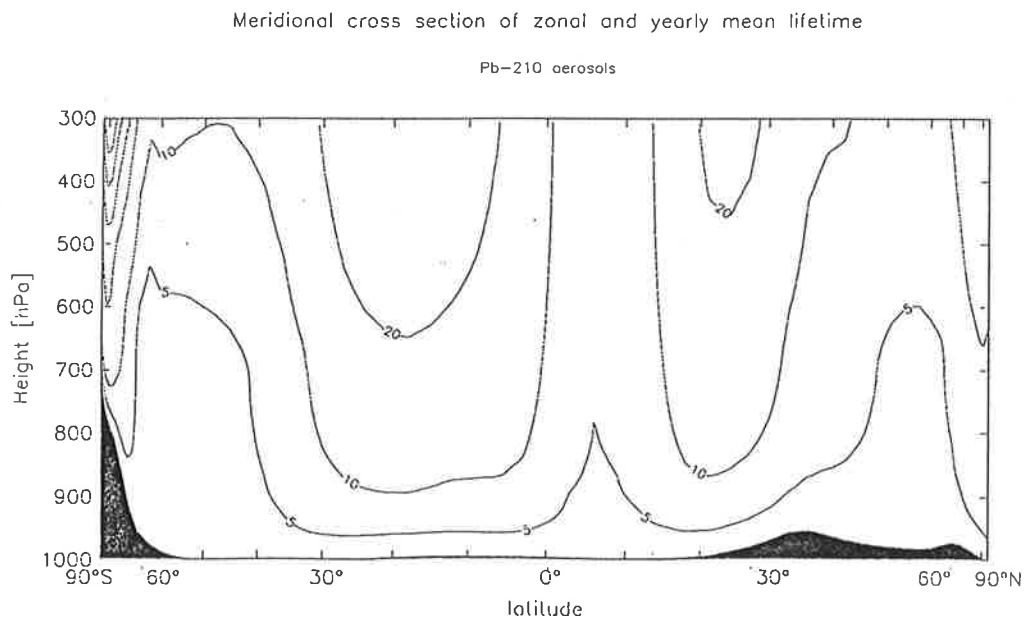


Abb.10 Meridionalschnitt der zonal und jährlich gemittelten Lebenszeit der ^{210}Pb - Aerosole [Tage] im Transportmodell.

bereits Minimalwerte in der asiatischen Monsunregion und Maxima im Bereich der Subtropen westlich der Kontinente andeuten. Im 320 hPa - Niveau hat sich diese Struktur deutlich verstärkt. Die Verhältnisse in den mittleren Breiten beider Hemisphären sind zonal sehr homogen mit Lebenszeiten von unter 10 Tagen. Minimalwerte von unter 5 Tagen existieren im Monsungebiet Südostasiens und im Bereich der ITCZ. Maximalwerte von 30 bis 100 Tagen ergeben sich in der Sahara, im subtropischen Hochdruckgürtel der Südhemisphäre westlich der Kontinente sowie in der Antarktis.

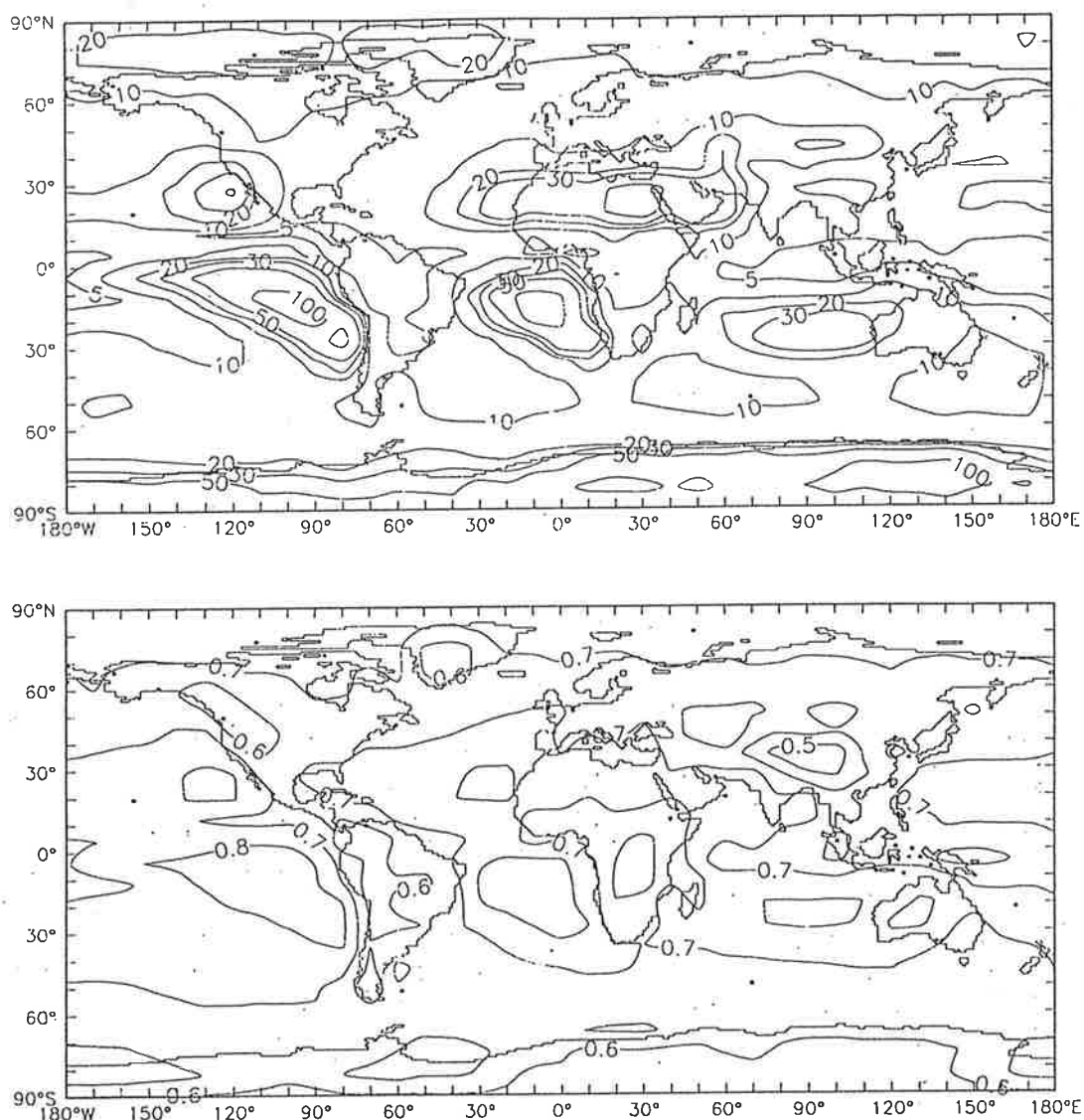


Abb.11 Jahresmittelwert der ^{210}Pb - Aerosollebenszeit [Tage] in der untersten Modellschicht (unteres Bild) sowie im 320 hPa - Niveau (oberes Bild).

5.1.3 Globale Charakteristika der Konzentrations- und Depositionsverteilung

Abbildung 12 zeigt den Jahresmittelwert der ^{222}Rn - Konzentration in der untersten Modellschicht. Diese ^{222}Rn - Konzentrationsverteilung spiegelt die Quellverteilung wider. Die höchsten Konzentrationswerte sind über den kontinentalen Landmassen zu finden, die niedrigsten in der Antarktis. Hohe Konzentrationsgradienten kennzeichnen den Übergang von einer Land- in eine Wasseroberfläche.

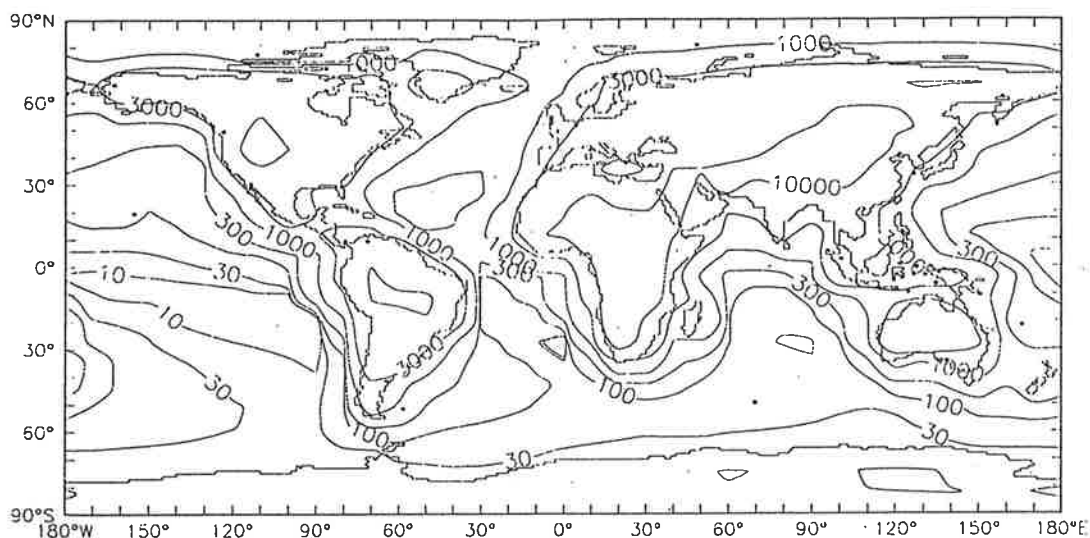


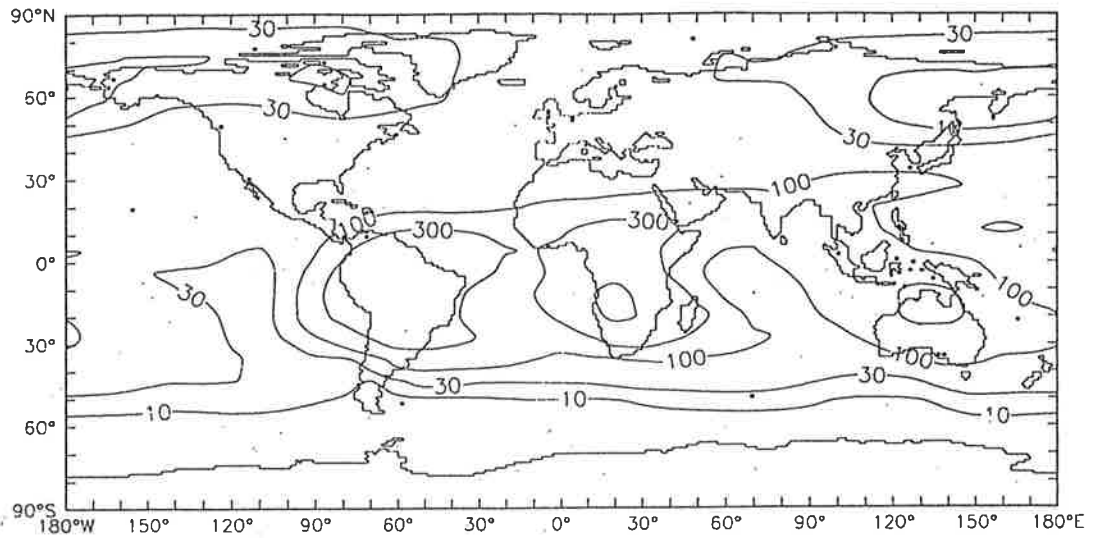
Abb.12 Jahresmittelwert der ^{222}Rn - Konzentration [mBq m^{-3}] in der untersten Modellschicht.

Abbildung 13 beschreibt die modellierte ^{222}Rn - Konzentrationsverteilung im 200 hPa - Niveau für den Januar (oberes Bild) und den Juli (unteres Bild). Die höchsten Konzentrationswerte befinden sich im Bereich der Tropen, wo durch hohe konvektive Aktivität verstärkt ^{222}Rn aus der planetarischen Grenzschicht in die obere Troposphäre und untere Stratosphäre befördert wird (Lambert et. al., 1990a). Der intensivere vertikale Massenaustausch im Sommer verursacht das erhöhte Konzentrationsniveau in der Nordhemisphäre im Juli.

Abbildung 14 zeigt den Jahresmittelwert der ^{210}Pb - Konzentration in der untersten Modellschicht (oberes Bild) sowie die modellierte ^{210}Pb - Jahresdeposition (unteres Bild). Die Quellverteilung und kurze Lebenszeit des ^{222}Rn verursacht die hohen Konzentrationen (500 bis $1000 \mu\text{Bq m}^{-3}$) seines Tochterprodukts ^{210}Pb über den Kontinenten (siehe Abbildung 12). Die Konzentrationswerte über den Ozeanen liegen in der Nordhemisphäre im Bereich von 100 bis $500 \mu\text{Bq m}^{-3}$, in der südlichen Hemisphäre unterhalb von $100 \mu\text{Bq m}^{-3}$.

monthly average concentration of Rn-222 [mBq m⁻³] (in 200 hPa)

January 1990



monthly average concentration of Rn-222 [mBq m⁻³] (in 200 hPa)

July 1990

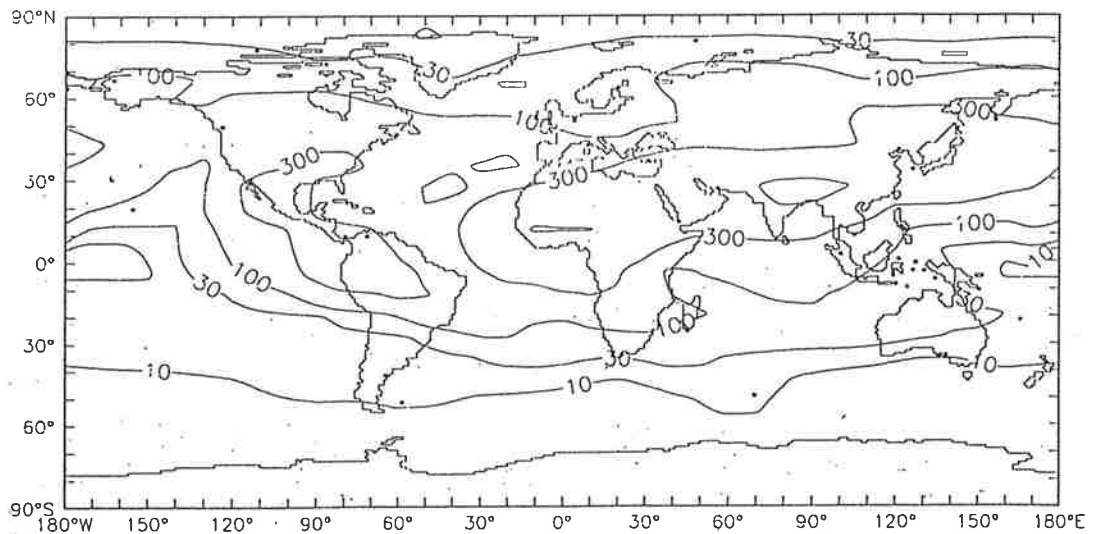
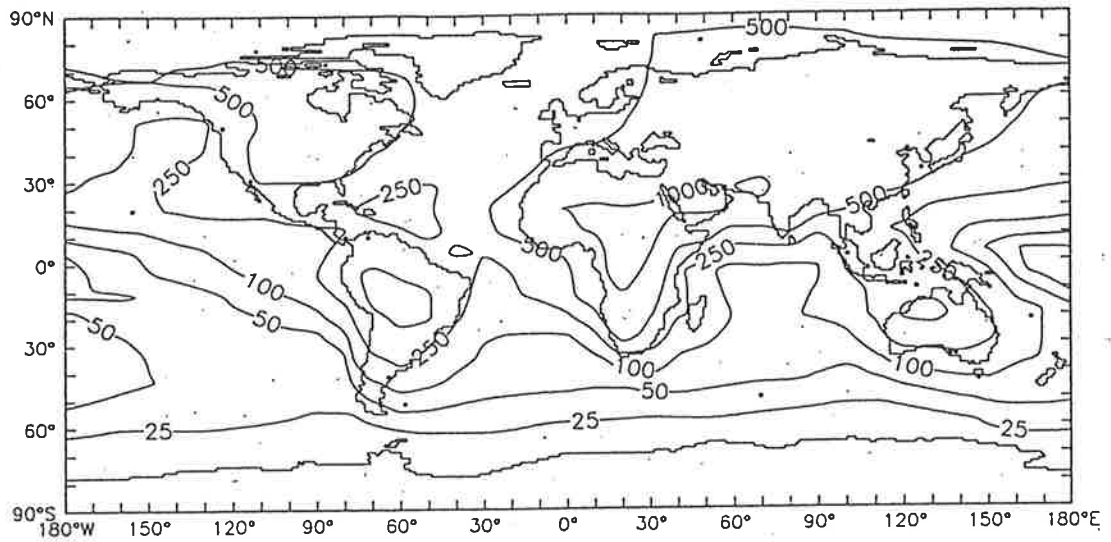


Abb.13 Modellierter ²²²Rn - Konzentrationsverteilung im 200 hPa - Niveau für den Januar (oberes Bild) und den Juli (unteres Bild).

Yearly mean concentration of Pb-210 [mikroBq m⁻³]

1990



Yearly deposited Pb-210 [Bq m⁻² yr⁻¹]

1990

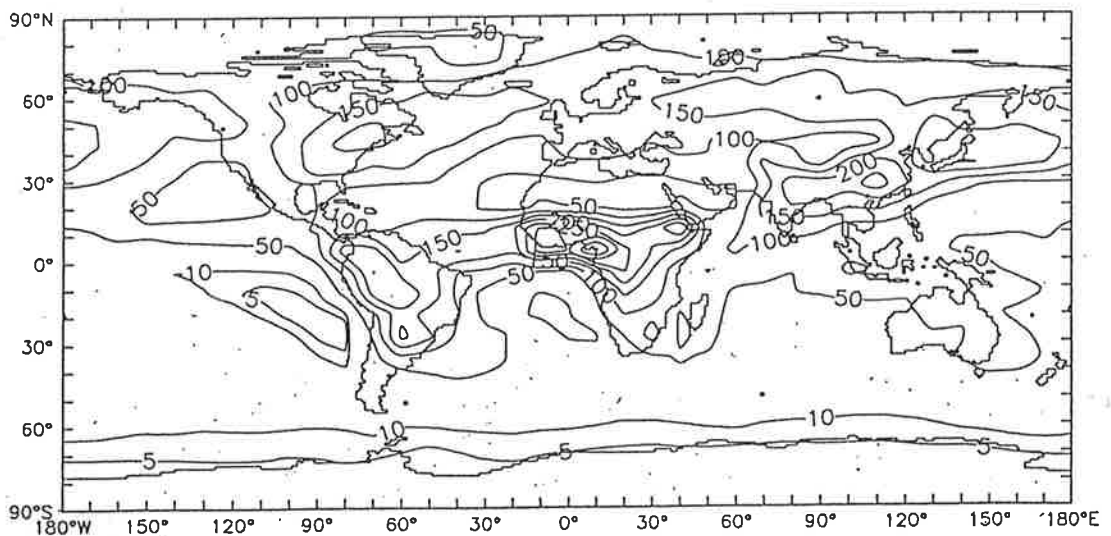


Abb.14 Jahresmittelwert der ²¹⁰Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] in der untersten Modellschicht (oberes Bild) sowie die modellierte ²¹⁰Pb - Jahresdeposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{Jahr}^{-1}$] (unteres Bild).

Maxima der Deposition von über $200 \text{ Bq m}^{-2} \text{ Jahr}^{-1}$ existieren im Bereich der intertropischen Konvergenzzone (ITCZ) über Afrika und Südamerika sowie im Bereich der asiatischen Monsunregion. Ein weiteres Maximum findet man im Gebiet der mittleren Breiten der Nordhemisphäre. Minima existieren im Bereich der trockenen subtropischen Hochdruckgürtel und in den Polarregionen. Die geringsten Werte von unter $5 \text{ Bq m}^{-2} \text{ Jahr}^{-1}$ findet man in der von den Quellregionen weit entfernt liegenden Antarktis. Die trockene Deposition hat im Modell global nur einen Anteil von ca. 12.6% an der gesamten Deposition.

Tabelle 5 zeigt die globale trockene und nasse Depositionsrate im Transportmodell für verschiedene Parametereinstellungen. Die Ergebnisse der ersten Zeile beziehen sich auf den Referenzlauf (Schema von Kasibhatla et. al. (1991), siehe Kapitel 4.5). In der zweiten Zeile stehen die Resultate einer Simulation mit reduzierten Flüssigwasserwerten ($L_s = 0.5 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$, $L_c = 2 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$), so wie sie ursprünglich von Kasibhatla et. al. (1991) verwendet wurden (siehe Kapitel 4.5). In der dritten Zeile wurde die Skalenhöhe des stratiformen Niederschlags auf $H_s = 5.63 \text{ km}$ und die des konvektiven Niederschlags auf $H_c = 12.16 \text{ km}$ angehoben (Abschnitt 4.5). M-75 bezeichnet die Resultate des Modellaufes mit um 75% reduzierten subskaligen, vertikalen Massenflüssen (Kapitel 4.4). In der letzten Zeile sind die Ergebnisse bei Verwendung des Parameterisierungsschemas von Mahlman und Moxim (1978) zu sehen (Kapitel 4.5).

	Trockene Deposition	Nasse Deposition
Referenzlauf	3.79	26.41
Reduzierter Flüssigwassergehalt	2.77	27.78
Größere Skalenhöhe	4.24	26.47
M-75	4.61	25.81
Mahlman und Moxim (1978)	4.33	25.89

Tab.5 Globale trockene und nasse Depositionsrate [$10^{18} \text{ Bq Jahr}^{-1}$] im Transportmodell. Neben dem Referenzlauf (1. Zeile) werden die Ergebnisse einer Simulation mit reduzierten Flüssigwasserwerten ($L_s = 0.5 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$, $L_c = 2 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$) bzw. vergrößerten Skalenhöhen ($H_s = 5.63 \text{ km}$, $H_c = 12.16 \text{ km}$) präsentiert (siehe Kapitel 4.5). M-75 bezieht sich auf einen Modellauf mit um 75% reduzierten subskaligen, vertikalen Massenflüssen (Abschnitt 4.4), und in der letzten Zeile werden die Resultate bei Verwendung des Parameterisierungsschemas von Mahlman und Moxim (1978) vorgestellt (Kapitel 4.5).

Es zeigt sich, daß die Modellresultate am empfindlichsten auf Variationen des Flüssigwassergehalts im Parameterisierungsschema von Kasibhatla et. al. (1991) reagieren. Die nasse Depositionsrate steigt bei Reduzierung der Flüssigwasserwerte global um 5.2% an, während eine Vergrößerung der Skalenhöhen lediglich ein Anwachsen der Auswaschrates um 0.2% verursacht. Die beiden Schemata von Kasibhatla et. al. (1991) und Mahlman

und Moxim (1978) differieren in der nassen Deposition nur um 2% voneinander. Die Reduktion der subskaligen Massenflüsse vermindert die nasse Deposition um 2.3%. Die Aerosole bleiben vermehrt in der unteren Troposphäre, so daß der hochreichende konvektive Niederschlag weniger zum Auswaschprozeß beiträgt. Die trockene Deposition nimmt dagegen zu.

Tabelle 6 zeigt Jahresmittelwerte der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration bzw. die gesamte jährliche ^{210}Pb - Deposition im Modell und in den Beobachtungen für größere geographische Regionen.

	Mittlere Jahreskonzentration			Gesamte Jahresdeposition		
	Anzahl Stationen	Beobachtungen	Modell	Anzahl Stationen	Beobachtungen	Modell
Grönland	2	240.13	341.13	4	12.57	62.26
Nordamerika	25	585.85	520.7	20	141.01	177.88
Europa	5	288.78	438.14	2	99.6	134.88
Indien	11	759.54	733.66	8	145.25	182.01
Südamerika	9	182.26	261.12	—	—	—
Australien	5	229.62	225.2	16	54.37	57.42
Neuseeland	—	—	—	8	53.33	41.67
Antarktis	4	21.83	16.42	—	—	—

Tab.6 Jahresmittelwerte der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] sowie die gesamte jährliche ^{210}Pb - Deposition [$\text{Bq m}^{-2}\text{ Jahr}^{-1}$] im Modell und in den Beobachtungen für verschiedene geographische Regionen. Zusätzlich ist die Anzahl der Stationen, über die die Mittelung erfolgt, angegeben.

Die größte Diskrepanz zwischen Modell und Beobachtungen besteht für Grönland. Das Transportmodell überschätzt die Konzentrationen und insbesondere die jährliche Deposition erheblich. Ähnliches gilt für die europäische Region und Südamerika, wobei die Messungen von Pereira et. al. (1988) jedoch andeuten, daß die ^{222}Rn - Emission über Südamerika wesentlich geringer ist als der vom Modell benutzte globale Mittelwert. Für alle anderen Kontinente, insbesondere Australien, ist die Übereinstimmung zwischen Beobachtungen und Modellresultaten gut.

Durch die Berechnung des "root mean square" - Werts RMS

$$\text{RMS} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (c_{m_i} - c_{b_i})^2}{n}}$$

wobei

- c_{mi} : Modellierte ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$]
- c_{bi} : Beobachtete ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$]
- RMS : "Root mean square" - Wert [$\mu\text{Bq m}^{-3}$]
- n : Anzahl der Beobachtungen

ist es möglich, die Güte der Modellresultate an einzelnen Beobachtungsstationen, für bestimmte geographische Regionen und global zu ermitteln. Tabelle 7 zeigt die Werte von RMS für verschiedene geographische Regionen und für verschiedene Simulationen (siehe Beschreibung in Tabelle 5). Für diese Analyse wurden alle verfügbaren monatlichen, bodennahen ^{210}Pb - Konzentrationsbeobachtungen des Jahres 1990 herangezogen.

	Arktis (n=33)	Nord- und Mittelamerika (n=74)	Südamerika (n=95)	Australien und Neuseeland (n=60)	Antarktis (n=54)	global (n=368)
Referenzlauf	243.7	292.8	178.2	42.4	12.1	177.8
Reduzierte Flüssigwasserwerte	292.1	345.5	194.4	51.5	18.4	207.6
Größere Skalenhöhe	268.2	288.6	182.7	45.2	13.4	180.9
M-75	256.8	360.8	290.9	42.6	15.3	235.7
Mahlman und Moxim (1978)	317.5	300.9	181.4	46.3	14.9	191.7

Tab.7 "Root Mean Square" - Wert RMS [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] für verschiedene geographische Regionen und global. Für diese Analyse wurden alle verfügbaren Beobachtungen der bodennahen, monatlichen ^{210}Pb - Konzentration des Jahres 1990 herangezogen. Vergleichend sind die Resultate der Sensitivitätsmodellläufe dargestellt. Für deren nähere Beschreibung sei auf Tabelle 5 verwiesen. n bezeichnet die Anzahl der Beobachtungen.

Die Ergebnisstruktur ist in allen fünf Modellläufen sehr ähnlich. Der Referenzlauf, also die Verwendung des nassen Depositionsschemas von Kasibhatla et. al. (1991), liefert sowohl global als auch für die einzelnen Regionen die besten Resultate, d.h. die kleinsten "root mean square" - Werte. Die einzige Ausnahme bildet Nord- und Mittelamerika, wo im Falle von größeren Skalenhöhen ein verbessertes Ergebnis erzielt wird. Das Parametrisierungsschema von Mahlman und Moxim (1978), welches nicht zwischen stratiformen und konvektivem Niederschlag unterscheidet, liefert, insbesondere in der Arktis, deutlich schlechtere Ergebnisse als das Schema von Kasibhatla et. al. (1991). Auffallend sind ferner die wesentlich schlechteren Resultate für Südamerika im Falle einer Reduktion der subskaligen Massenflüsse (M-75). Diese reduzierte Konvektion scheint den Verhältnissen in den südamerikanischen Tropen nicht gerecht zu werden.

Abbildung 15 zeigt einen Vergleich zwischen der modellierten und beobachteten, bodennahen, mittleren Jahreskonzentration für verschiedene Breitenkreise (0 bis 30°, 30 bis 60° und 60 bis 90°) beider Hemisphären. Abbildung 16 zeigt einen entsprechen-

den Vergleich der gesamten Jahresdeposition. Dreiecke bezeichnen Breiten von 0 bis 30°, Quadrate Regionen von 30 bis 60° und Sterne Breiten von 60 bis 90°. Schwarze Symbole kennzeichnen die Nordhemisphäre, weiße die Südhemisphäre.

In beiden Abbildungen sind deutlich die systematisch zu hohen Modellwerte in geographischen Breiten nördlich von 60°N zu erkennen. Für alle anderen Regionen ist die Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtungen gut, wobei in der nördlichen Hemisphäre die Streuung größer ist. Der Korrelationskoeffizient für die beobachtete und modellierte Jahresmittelkonzentration beträgt 0.85, der entsprechende für die Jahresdeposition ist 0.79.

Die Überschätzung der arktischen Konzentration und Deposition im Transportmodell kann auf eine Kombination der folgenden vier Prozesse zurückgeführt werden (Feichter et. al., 1991) :

- Zu hohe Niederschlagsraten in der Arktis
- Ein zu großer Transport von mittleren Breiten in die Polarregion
- Ein für die tiefen Temperaturen in der Arktis ungeeignetes Parameterisierungsschema der nassen Deposition
- Eine Vernachlässigung räumlicher und zeitlicher Variation in der ^{222}Rn - Emission

Um den Anteil des asiatischen, europäischen und nordamerikanischen Kontinents an den arktischen ^{210}Pb - Konzentrationen zu ermitteln, wurden drei separate Modellläufe durchgeführt. Hierzu wurde die ^{222}Rn - Emission des Erdbodens überall gleich Null gesetzt, mit Ausnahme im Bereich jeweils eines der drei Kontinente. Hierbei ergab sich, daß Nordamerika mit ca. 52% den Hauptanteil an den arktischen ^{210}Pb - Konzentrationen hat. Der asiatische Kontinent trägt zu ca. 34% bei, Europa mit etwa 14%.

Bei einer Berücksichtigung der Abhängigkeit der ^{222}Rn - Emission vom Bodentyp ergibt sich nach Feichter et. al. (1991) für Nordamerika eine geringere Emissionsrate als der von den Autoren benutzte globale Mittelwert von $0.72 \text{ atome cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Die Kombination dieser Überschätzung der ^{222}Rn - Emission, zusammen mit dem offenkundig relevanten Transport aus der nordamerikanischen in die arktische Region, könnte die große Diskrepanz zwischen Modell und Beobachtungen in der Arktis zumindest teilweise erklären. Einen großen Unsicherheitsfaktor bildet jedoch auch die räumliche und zeitliche Variation der asiatischen ^{222}Rn - Emission, insbesondere in der nördlichen Tundreregion. Für dieses Gebiet existieren keine Messungen der ^{222}Rn - bzw. ^{210}Pb - Konzentration, so daß die Modellresultate hier nicht verifiziert werden können. Die Möglichkeit einer Überschätzung der ^{222}Rn - Emission für diese Region, zusammen mit dem 34%igen Anteil der asiatischen Landmasse an den arktischen ^{210}Pb - Konzentrationen, kann ebenfalls mitverantwortlich für die Diskrepanz in der Arktis sein. Die Überschätzung der ^{210}Pb - Konzentration

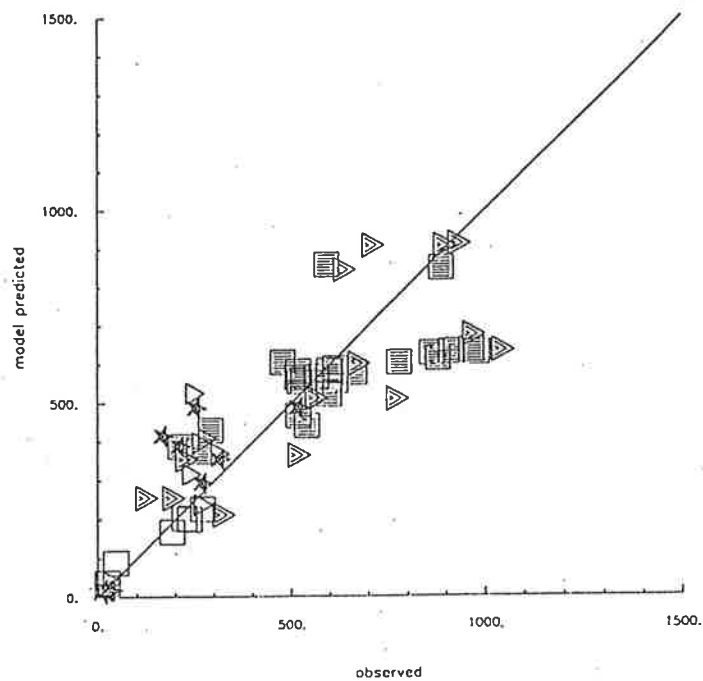


Abb.15 Vergleich zwischen modellierter und beobachteter, bodennaher ^{210}Pb - Jahresmittelkonzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] für verschiedene Breitenkreislagen beider Hemisphären. Dreiecke beziehen sich auf Breiten von 0 bis 30°, Quadrate auf solche von 30 bis 60° und Sterne auf die von 60 bis 90°. Schwarze Symbole kennzeichnen die Nordhemisphäre, weiße die Südhemisphäre.

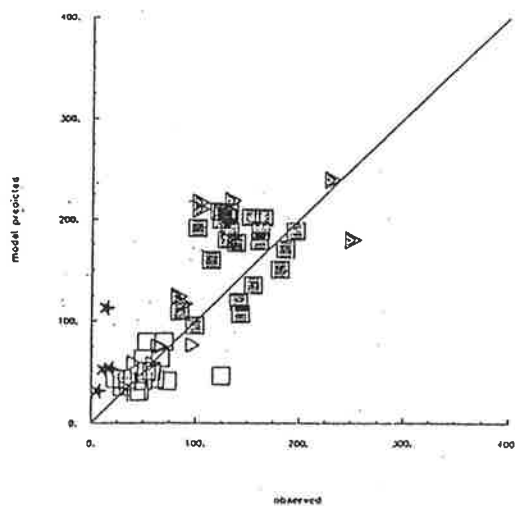


Abb.16 Vergleich zwischen modellierter und beobachteter ^{210}Pb - Jahresdeposition [$\text{Bq m}^{-2}\text{Jahr}^{-1}$] für verschiedene Breitenkreislagen beider Hemisphären. Dreiecke beziehen sich auf Breiten von 0 bis 30°, Quadrate auf solche von 30 bis 60° und Sterne auf die von 60 bis 90°. Schwarze Symbole kennzeichnen die Nordhemisphäre, weiße die Südhemisphäre.

in der europäischen Region im Modell dürfte für die zu hohen modellierten, arktischen Konzentrations- und Depositionswerte eine weniger große Rolle spielen, da die europäische Landmasse nur mit ca. 14% am Transport in die Arktis beteiligt ist (siehe oben).

Die recht simpel parameterisierte nasse Deposition wird möglicherweise dem Auswascheffekt durch gefrorenen Niederschlag (Schnee, Hagel, Graupel) in diesen Breiten nicht gerecht. Ferner wird die Bedeutung der trockenen Deposition gegenüber der nassen aufgrund der geringen Niederschlagsrate zunehmen. Die Verwendung einer konstanten, trockenen Depositionsgeschwindigkeit im Modell (Kapitel 4.5) stellt sich hier möglicherweise als eine zu starke Vereinfachung heraus.

Um die Modellresultate im arktischen Bereich zu verbessern, scheint eine Verfeinerung der Depositionsschemata der trockenen und nassen Deposition notwendig zu sein. Es muß für den speziellen Auswaschprozeß durch gefrorenen Niederschlag eine gesonderte Formulierung gefunden werden. Ebenso sollte bei der Beschreibung der trockenen Deposition eine Variation der Depositionsgeschwindigkeit mit den meteorologischen Gegebenheiten, den Tracereigenschaften und dem Zustand der Erdoberfläche zugelassen werden (Giorgi, 1986). Die Ersetzung der konstanten ^{222}Rn - Emissionrate durch eine dem Bodentyp und dessen Zustand (gefroren, schneebedeckt etc.) angepaßte, könnte ebenfalls eine Verbesserung der Modellergebnisse in der Arktis bewirken. Ferner dürften numerische Effekte aufgrund einer Verkleinerung der Gitterboxen in Polnähe ebenso mitverantwortlich für den Dissens in der Arktis sein.

Da die meisten ^{210}Pb - Beobachtungsdaten der Jahresdeposition bzw. mittleren Jahreskonzentration für Nordamerika existieren, sollen die Modellresultate im folgenden mit diesen verglichen werden. Abbildung 17 zeigt hierzu einen Zonalschnitt durch Nordamerika von 140°W bis 60°W für zwei Breitengürtel (31.3°N bis 39.13°N , linke Spalte und 39.13°N bis 46.96°N , rechte Spalte) des Modells. Die oberen beiden Bilder zeigen die mittlere Jahreskonzentration, die unteren zwei die Jahresdeposition. Die durchgezogenen Kurven beschreiben die Modellresultate, die Sterne kennzeichnen die Beobachtungen.

Die Konzentrationen an der Ostküste sind niedrig, da sich dort ^{210}Pb - reiche kontinentale mit ^{210}Pb - armen maritimen Luftmassen mischen. In westlicher Richtung nehmen die Konzentrationen aufgrund vorherrschend kontinentaler Luftmassen zu. Das Maximum wird zwischen 80 und 90°W erreicht. Der Einfluß pazifischer Luftmassen macht sich westlich davon durch eine Abnahme der Konzentration bemerkbar. Das Transportmodell vermag diesen Verlauf nachzuzeichnen, unterschätzt jedoch das Maximum zwischen 80 und 90°W . Hier macht sich die grobe horizontale Auflösung des Modells bemerkbar.

Die Deposition steigt ebenfalls von der Ostküste bis zu 90°W hin an, um dann in der trockenen Region westlich der Rocky Mountains wieder abzufallen. Das Transportmodell beschreibt ebenfalls diesen Verlauf, vermag jedoch nicht den Abfall von 90°W bis zur Ostküste hin korrekt wiederzugeben. Hier zeigt sich die grobe horizontale Auflösung des

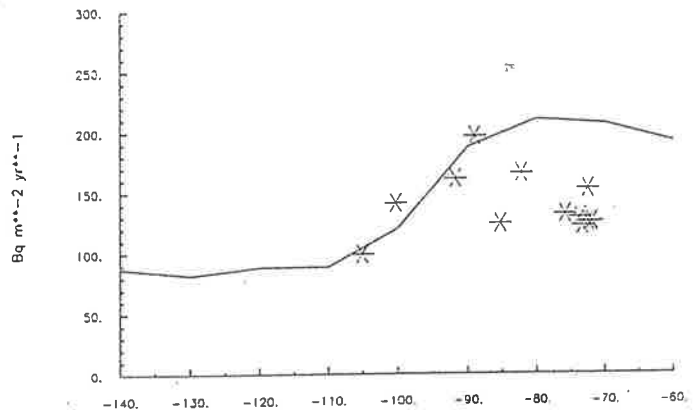
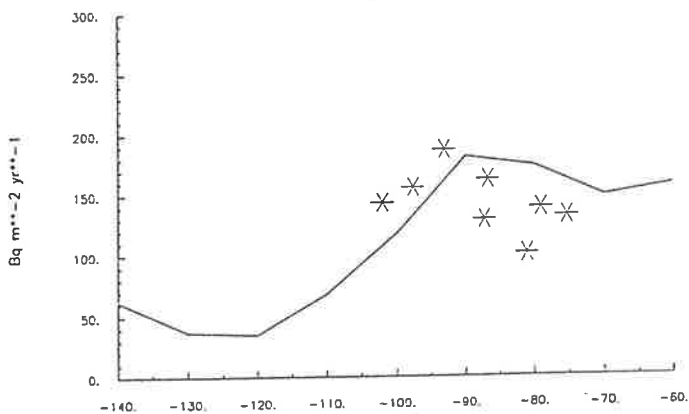
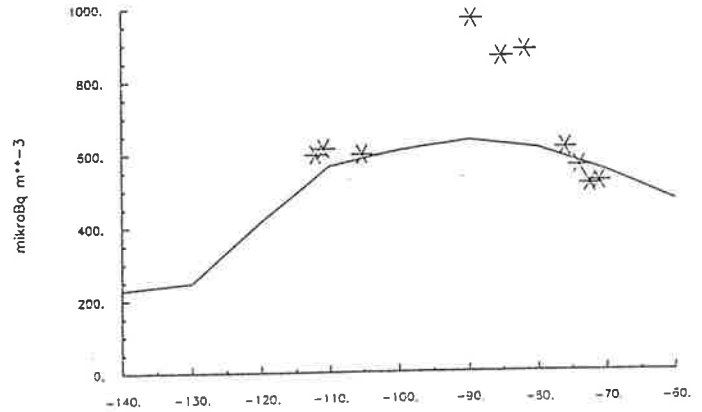
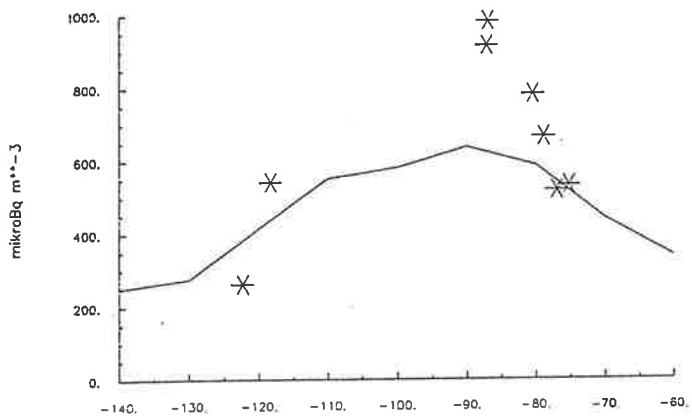


Abb.17 Zonalschnitt der mittleren ^{210}Pb - Jahreskonzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] (oben) und gesamten ^{210}Pb Jahresdeposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{Jahr}^{-1}$] (unten) über Nordamerika von 140°W bis 60°W für zwei Breitengürtel (31.3°N bis 39.13°N , linke Spalte und 39.13°N bis 46.96°N , rechte Spalte) des Modells. Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Sterne kennzeichnen die Beobachtungen.

Transportmodells, mit der der Kontrast bezüglich der ^{222}Rn - Emission zwischen Land- und Wasseroberflächen nur unzureichend wiedergegeben werden kann.

Abbildung 18 zeigt verschiedene modellierte Vertikalprofile der jährlich gemittelten ^{210}Pb - Konzentration über der westlichen, zentralen USA. Im linken Teil der Abbildung stellt die durchgezogene Kurve das Ergebnis des Referenzmodelllaufes dar (Schema von Kasibhatla et. al. (1991)), während die gestrichelte das Resultat der Simulation mit um 75% reduzierten subskaligen, vertikalen Massenflüssen repräsentiert. Im rechten Teil der Abbildung wird der Referenzlauf (durchgezogene Linie) mit dem Ergebnis bei Verwendung des Depositionsschemas von Mahlman und Moxim (1978) (gestrichelte Linie) verglichen. Die Kreuze mit Fehlerbalken von einer Standardabweichung bezeichnen das von Moore et. al. (1973) über der westlichen zentralen USA aus Messungen erhaltene Profil.

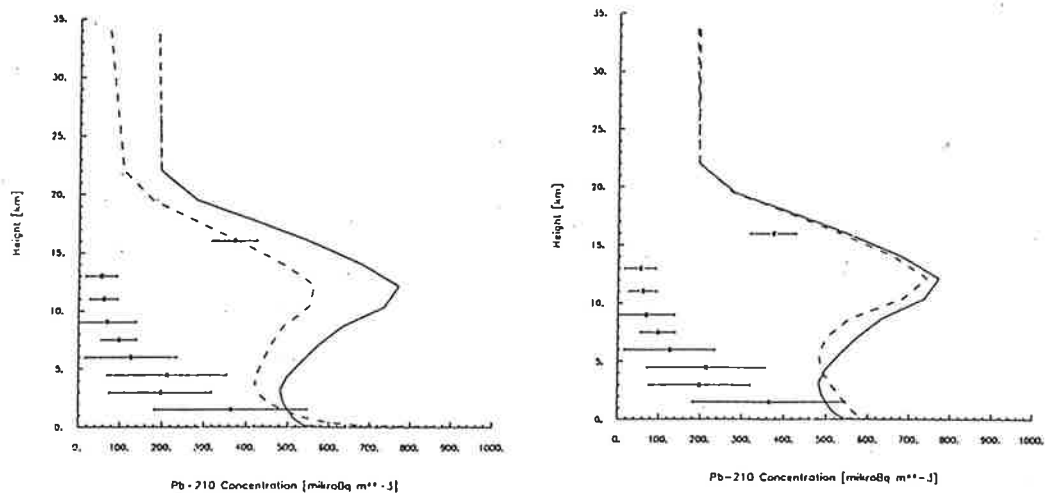


Abb.18 Modellierte Vertikalprofile der jährlich gemittelten ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] über der westlichen, zentralen USA. Die durchgezogene Kurve beschreibt das Resultat des Referenzlaufes (Schema von Kasibhatla et. al. (1991)), während die gestrichelte Linie im linken Teil der Abbildung das Ergebnis der Simulation mit um 75% reduzierten subskaligen, vertikalen Massenflüssen repräsentiert und im rechten Teil der Abbildung das Resultat bei Verwendung des Depositionsschemas von Mahlman und Moxim (1978). Die Kreuze mit Fehlerbalken von einer Standardabweichung bezeichnen das von Moore et. al. (1973) über der westlichen zentralen USA aus Messungen erhaltene Profil.

Alle drei Modellprofile zeigen zunächst eine Konzentrationsabnahme mit der Höhe sowie Maxima im Bereich der unteren Stratosphäre. Dieser Maximalwert beruht auf den langen Lebenszeiten stratosphärischer Tracer (siehe Kapitel 5.3). Dieses stratosphärische ^{210}Pb - Reservoir kann auch durch direkten Transport von ^{222}Rn aus der planetarischen Grenzschicht in die untere Stratosphäre mittels intensiver konvektiver Massenflüsse (Tro-

pen) gespeist werden (Lambert et. al, 1990a). Die 75%ige Reduktion der subskaligen Massenflüsse verursacht in den unteren 1.5 Kilometern der Atmosphäre deutlich höhere Konzentrationen als im Referenzlauf und oberhalb davon entsprechend geringere. Das Schema von Kasibhatla et. al. (1991) wäscht in den unteren fünf Kilometern der Troposphäre offenkundig stärker aus als das Schema von Mahlman und Moxim (1978) (linkes Bild). Oberhalb davon ist es umgekehrt. In Höhen von über neun Kilometern nehmen beide Schemata keinen Niederschlag mehr an, so daß die Kurven synchron zueinander verlaufen.

Die Beobachtungen von Moore et. al. (1973) zeigen bis in 13 km Höhe eine kontinuierliche Abnahme der Konzentration und dann einen prägnanten Anstieg in der unteren Stratosphäre. In der mittleren und oberen Troposphäre zeigt das Modell einen dazu konträren Verlauf. Allerdings basiert das hier gezeigte Profil von Moore et. al. (1973) nur auf zwölf einzelnen, über der westlichen, zentralen USA erhaltenen Profilen. Diese zeitliche Beschränkung in der Datenaufnahme erschwert einen Vergleich mit Modellresultaten.

5.1.4 Troposphärische Transporte und ihre jahreszeitliche Variabilität

Abbildung 19 zeigt einen Meridionalschnitt der zonal und jährlich gemittelten ^{210}Pb - Konzentration im Transportmodell. Die Nordhemisphäre zeichnet sich durch eine gute vertikale Durchmischung aus, mit einem Maximalwert in der unteren Stratosphäre, wie schon in Kapitel 5.1.3 erläutert wurde. Das Regenband der ITCZ verursacht eine deutliche Konzentrationsabnahme südlich von 10°N . Die Südhemisphäre zeichnet sich durch einen prägnanten, mit wachsender geographischer Breite zunehmenden, vertikalen Konzentrationsgradienten aus. Der lokale ^{222}Rn (bzw. ^{210}Pb) Eintrag ist südlich von 60°S aufgrund der Eis- und Wasserflächen gering. Stattdessen werden mit ^{210}Pb - Aerosolen angereicherte Luftmassen aus den mittleren Breiten im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre südwärts transportiert (Lambert et. al, 1990b) und verursachen die hohen antarktischen Aerosollebenszeiten (siehe Abbildung 10).

Abbildung 20 zeigt ergänzend hierzu Meridionalschnitte der zonal gemittelten ^{210}Pb - Monatskonzentration im Januar (oben) bzw. Juli (unten). Aufgrund des verstärkten vertikalen Massenaustausches im Sommer über den Kontinenten erhöhen sich die Konzentrationen in der oberen Troposphäre bzw. verringern sich in Bodennähe (siehe Juli für die Nordhemisphäre bzw. Januar für die Südhemisphäre). In der Südhemisphäre gilt dies aber nur bis zu einer geographischen Breite von ca. 30°S . Südlich davon zeigt sich immer der oben erläuterte prägnante vertikale Konzentrationsgradient. Er ist im Januar größer, da zu dieser Zeit das nun vermehrt in mittleren Breiten in die obere Troposphäre beförderte ^{210}Pb die oberen Schichten der Antarktis erreicht.

Zur Untersuchung der jahreszeitlichen Variabilität der bodennahen ^{210}Pb - Konzen-

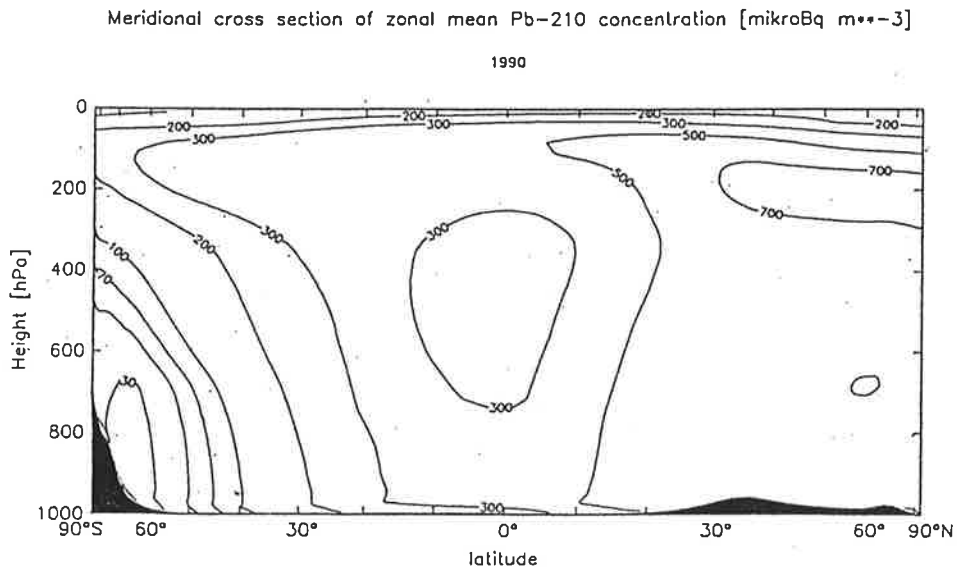


Abb.19 Meridionalschnitt der zonal und jährlich gemittelten ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] im Transportmodell

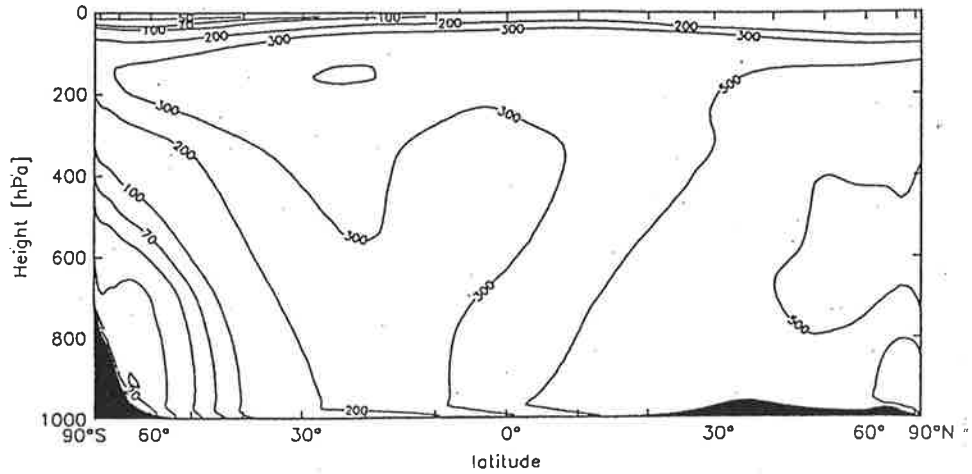
trationen werde ein Größe S (Saisonalität) definiert mit $S = (-) \frac{\text{DJF} - \text{JJA}}{\text{DJF} + \text{JJA}}$, wobei DJF den Mittelwert der Konzentrationen über die Monate Dezember, Januar und Februar (nordhemisphärischer Winter) und JJA denjenigen über die Monate Juni, Juli und August (nordhemisphärischer Sommer) bezeichnet. Das Minuszeichen in der obigen Definition für S gilt für die Südhemisphäre, d.h. positive Werte von S bedeuten immer Konzentrationsmaxima im Winter und Minima im Sommer.

Abbildung 21 zeigt einen Vergleich der Saisonalität S zwischen Beobachtungen (Abszisse) und Modell (Ordinate) für alle Stationen mit ^{210}Pb - Konzentrationsbeobachtungen im Jahre 1990. Sterne kennzeichnen Stationen in geographischen Breiten von 60 bis 90°, Quadrate solche zwischen 30 und 60° und Dreiecke bezeichnen Stationen in Breiten zwischen 0 und 30°. Schwarze Symbole kennzeichnen die Nordhemisphäre, weiße Symbole die Südhemisphäre.

Die Streuung ist sehr groß und dementsprechend hat der Korrelationskoeffizient nur einen Wert von 0.1. Besonders große Diskrepanzen zeigen sich nördlich von 30°N und in den mittleren Breiten der Südhemisphäre (30 bis 60°S). Der schwarze Stern bezeichnet die Station Barrow in Alaska. Die beobachtete Saisonalität zeigt mit $S = 0.84$ hohe winterliche und niedrige sommerliche Konzentrationen an und spiegelt das Phänomen des arktischen Dunstes wider (siehe unten). Das Transportmodell unterschätzt diesen Jahresgang erheblich ($S = 0.2$). Die beiden schwarzen Quadrate unterhalb der Geraden kennzeichnen die Stationen Beaverton (an der US - Pazifikküste) und Rexburg (in den Rocky Mountains). Die Beobachtungen zeigen mit Werten von $S = 0.41$ bzw. $S = 0.18$

Meridional cross section of zonal mean Pb-210 concentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$]

January 1990



Meridional cross section of zonal mean Pb-210 concentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$]

July 1990

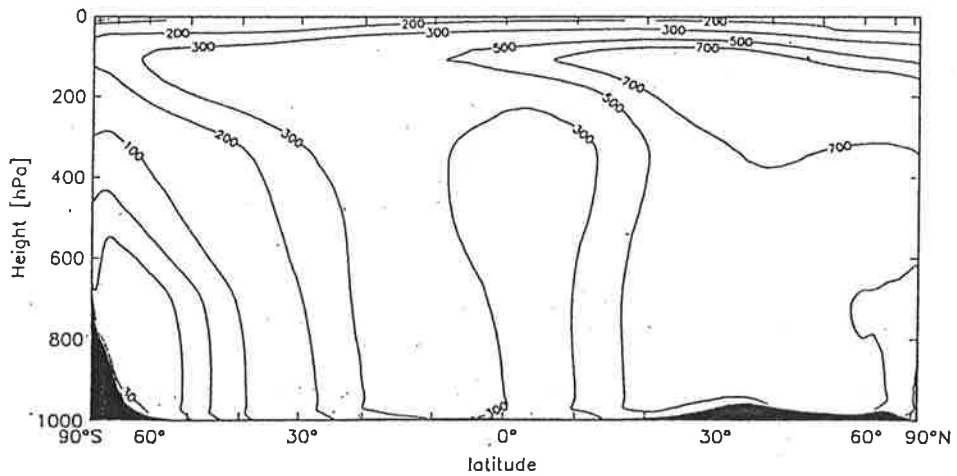


Abb.20 Meridionalschnitte der zonal gemittelten ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] im Januar (oben) und Juli (unten) im Transportmodell.

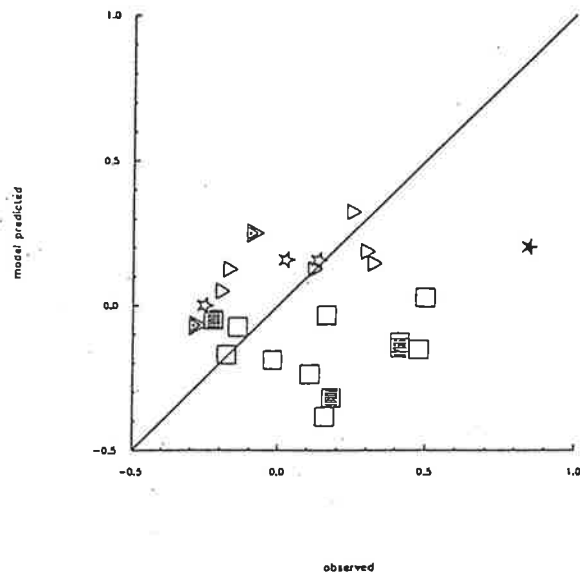


Abb.21 Vergleich der Saisonalität der bodennahen ^{210}Pb - Konzentrationen im Transportmodell und in den Beobachtungen für das Jahr 1990. Die Saisonalität S ist definiert als $S = (-) \frac{\text{DJF} - \text{JJA}}{\text{DJF} + \text{JJA}}$, wobei DJF den Mittelwert der Konzentrationen über die Monate Dezember, Januar und Februar (nordhemisphärischer Winter) und JJA den Mittelwert über die Monate Juni, Juli und August (nordhemisphärischer Sommer) bezeichnet. Das Minuszeichen in der Beziehung für S gilt für die Südhemisphäre. Sterne bezeichnen Stationen in geographischen Breiten von 60 bis 90°, Quadrate solche zwischen 30 und 60° und Dreiecke bezeichnen Stationen in Breiten zwischen 0 und 30°. Schwarze Symbole kennzeichnen die Nordhemisphäre, weiße Symbole die Südhemisphäre.

hohe winterliche und niedrige sommerliche Konzentrationen. Der verstärkte vertikale Massenaustausch im Sommer über den Kontinenten trägt zu diesem Verlauf bei. Das Transportmodell hingegen prognostiziert einen genau entgegengesetzten Verlauf. Hier macht sich möglicherweise wieder die grobe horizontale Auflösung des Modells bemerkbar, mit der lokale Einflüsse (Rexburg) bzw. die Kontraste zwischen Land und Meer (Beaverton) nur unzureichend wiedergegeben werden können. Auch für einige Stationen der mittleren Breiten der Südhemisphäre kann diese Tatsache mit eine Ursache für die großen Diskrepanzen zwischen Modellresultaten und Beobachtungen sein. Viele südamerikanische Stationen liegen an der Pazifikküste am Fuße der Anden (siehe Abbildung 7), so daß auch vermehrt lokale Einflüsse (Orographie, Niederschlagsrate) eine Rolle spielen, die das Transportmodell nicht erfassen kann. Beispielsweise liefert die Station Puerto Montt in Chile einen Wert von $S = 0.16$ in den Beobachtungen und $S = -0.38$ im Modell; in Punta Arenas (Chile) erhält man $S = 0.11$ (Beobachtungen) bzw. $S = -0.24$ (Modell) und in Santiago (Chile) $S = 0.48$ (Beobachtungen) bzw. $S = -0.15$ (Modell).

Im folgenden werden im Jahre 1990 (sofern nicht ausdrücklich anders angegeben) an einzelnen Meßstationen beobachtete Monatsmittelwerte der ^{210}Pb - Konzentration mit

Modellmittelwerten verglichen. Zusätzlich erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsraten an den Stationen. Der modellierte Niederschlag wird, sofern es möglich ist, mit dem direkt an der Station oder an einer benachbarten Station im Jahre 1990 beobachteten Niederschlag verglichen. Sind keine entsprechenden Daten vorhanden, werden die Klimatologien von Legates und Willmott (1990) bzw. Jaeger (1976) herangezogen.

Abbildung 22 zeigt mit Thule an der grönländischen Küste und Barrow in Alaska zwei Stationen in den hohen nördlichen Breiten.

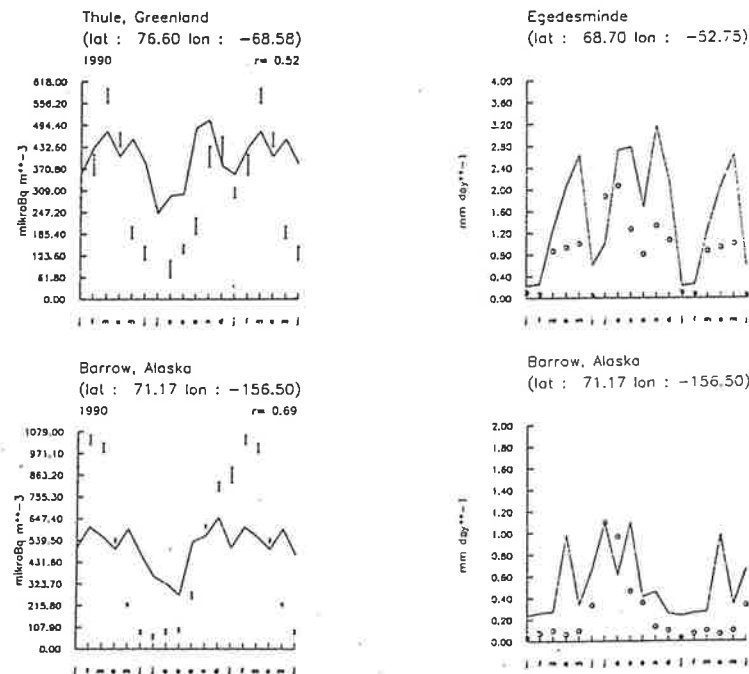


Abb.22 Vergleich zwischen monatlichen Mittelwerten der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] des Jahres 1990 an zwei Stationen in den hohen nördlichen Breiten (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte die Beobachtungswerte. Die Fehlerbalken an den Beobachtungspunkten stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. In der rechten Spalte erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an der betreffenden Station bzw. an einem ihr nahegelegenen Ort. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die Kreise stellen die beobachtete Niederschlagsrate im Jahre 1990 dar.

Beide Stationen zeigen Maximalwerte der Konzentration im Winter und Frühjahr sowie Minima während des Sommers. Dieser Verlauf ist konsistent mit dem Auftreten des winterlichen arktischen Dunstes. Dieser entsteht durch die Emission von anthropogenen Aerosolen in mittleren Breiten (Nordamerika, Europa, Asien) und ihrem Transport in die Arktis (Rahn, 1981). Er verschwindet im Frühsommer aufgrund von Veränderungen in

den horizontalen Transportprozessen und einem vermehrten Auswaschen der Aerosole auf ihrem Weg in die Polarregion (Barrie et. al., 1981). Der Konzentrationsverlauf des ^{210}Pb deutet darauf hin, daß viele der in mittleren Breiten emittierten Aerosole ^{210}Pb - Atome aufnehmen und dann in die Arktis transportiert werden.

Das Transportmodell vermag diesen Jahresgang in Ansätzen wiederzugeben, unterschätzt jedoch die Saisonalität, wie oben bereits erwähnt wurde. Abweichungen zwischen der modellierten und beobachteten Niederschlagsrate können diesen Dissens nicht erklären. In Barrow ist z.B. der Modellniederschlag meist höher als der beobachtete, die Konzentration aber nicht dementsprechend meistens zu niedrig. Es spielen also andere Faktoren eine Rolle, welche in Kapitel 5.1.3 in Zusammenhang mit dem Dissens zwischen Modell- und Beobachtungswerten in der Arktis bereits erläutert wurden.

Abbildung 23 zeigt mit Beaverton eine Station in mittleren Breiten an der Westküste der USA. Winde vom Pazifik verursachen die niedrigen Konzentrationswerte, während die Konzentrationsmaxima im September und Dezember auf Luftmassentransporte aus südlicher und östlicher Richtung zurückzuführen sind (Feichter et. al., 1991). Das Transportmodell überschätzt die sommerlichen Konzentrationsminima und unterschätzt das Maximum im Dezember, prognostiziert jedoch den Maximalwert im September. Die gute Übereinstimmung zwischen der modellierten und beobachteten Niederschlagsrate an der nahegelegenen Station Portland spricht gegen den Niederschlag als Ursache dieser Diskrepanz. Ein Vergleich der Resultate des grob auflösenden Transportmodells mit Beobachtungen am Rande einer Quellregion ist aufgrund des großen horizontalen Konzentrationsgradienten kritisch (Feichter et. al., 1991).

Diese Problematik tritt bei einem Vergleich an ozeanischen Stationen nicht auf. Abbildung 24 zeigt vier Meßstationen im nordwestlichen Pazifik (Tsunogai et. al., 1988). Die Beobachtungen sind Mittelwerte über den Zeitraum von 1981 bis 1983.

Die Stationen Onna, Hachijojima und Chichijima liegen im Pazifik, während sich Okushiri nahe dem japanischen Festland befindet. Sowohl Beobachtungen als auch Modellergebnisse zeigen einen charakteristischen Jahresgang mit hohen Konzentrationen während des Winters und geringen im Sommer. Für diese Saisonalität ist die Monsunzirkulation verantwortlich. Im Winter werden mit ^{210}Pb - Aerosolen angereicherte Luftmassen vom asiatischen Kontinent in Richtung der Meßstationen befördert. Im Sommer hingegen bringt der Südwestmonsun durch Auswaschprozesse von ^{210}Pb - Aerosolen befreite Luftmassen zu der Meßregion.

Die Monsunzirkulation kristallisiert sich auch an den indischen Beobachtungsstationen heraus (Gopalakrishnan et. al., 1973). Abbildung 25 zeigt drei Meßorte auf dem indischen Subkontinent. Die Beobachtungen sind Mittelwerte über den Zeitraum von 1962 bis 1969.

Charakteristisch ist für alle Stationen wieder der Jahresgang mit hohen winterlichen

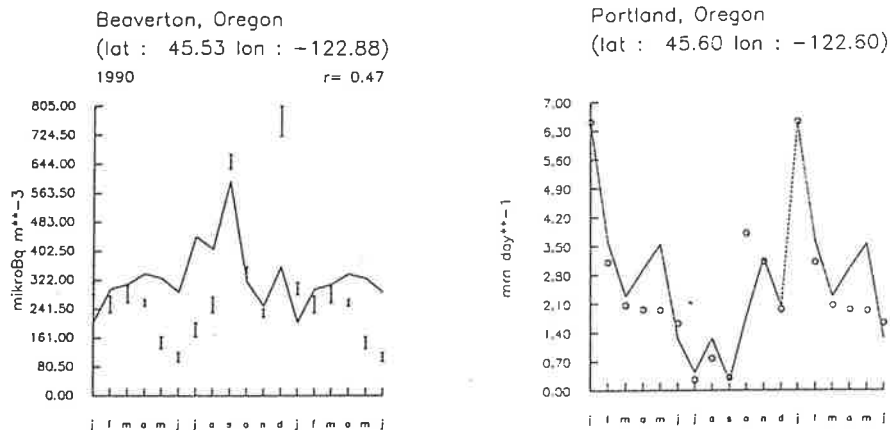


Abb.23 Vergleich zwischen monatlichen Mittelwerten der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] des Jahres 1990 an einer Station in mittleren Breiten an der US - Pazifikküste (linkes Bild). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte die Beobachtungswerte. Die Fehlerbalken an den Beobachtungspunkten stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. Im rechten Bild erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an einem der Meßstation nahegelegenen Ort. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die Kreise stellen die beobachtete Niederschlagsrate im Jahre 1990 dar.

und geringen sommerlichen Konzentrationen. Der Nordostmonsun bringt im Winter trockene, mit ^{210}Pb - Aerosolen angereicherte Luftmassen vom innerasiatischen Kontinent nach Indien. Die nasse Deposition ist gering und verursacht hohe Konzentrationswerte. Im Sommer hingegen befördert der Südwestmonsun ^{210}Pb arme Luftmassen in Richtung des indischen Subkontinents. Die mit ihm verbundenen hohen Niederschlagsmengen waschen das über Indien entstehende ^{210}Pb aus und vermindern die Konzentrationen. Einen markanten Jahresgang des Niederschlags zeigen sowohl die Klimatologien als auch die ECMWF - Vorhersage (rechte Spalte von Abbildung 25). In Bombay wird der sommerliche Maximalwert vom Modell unterschätzt und die Konzentration dementsprechend überschätzt.

Ein hierzu konträres Bild bietet die Station Mauna Loa auf Hawaii (Abbildung 26). Hier zeigen sich hohe Konzentrationswerte im Frühling und Sommer sowie niedrige im Herbst und Winter.

Die Ursache für diesen Konzentrationsverlauf ist in der Höhenlage dieser Station (3400m über dem Meeresspiegel) zu suchen. Sie spiegelt nicht die Verhältnisse in der bodennahen Grenzschicht, sondern die Zustände in der mittleren Atmosphäre wider. Der verstärkte vertikale Massenaustausch während des Sommers führt zu einer Verminderung der Konzentrationen in der bodennahen Grenzschicht, erhöht aber die Konzentrations-

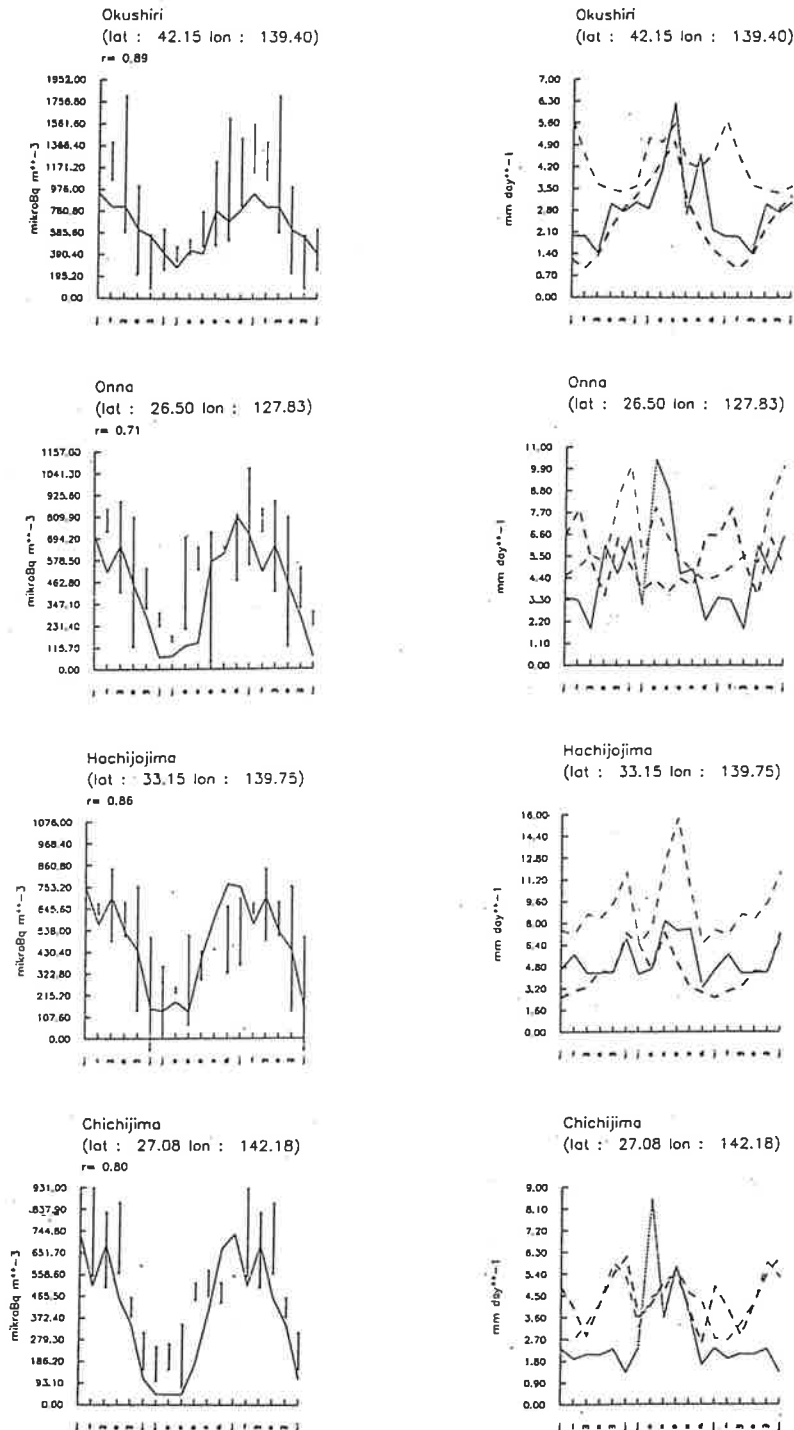


Abb.24 Vergleich zwischen monatlichen Mittelwerten der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] an vier Stationen im nordwestlichen Pazifik (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve bezeichnet die Modellresultate, die Punkte die Beobachtungswerte. Die Beobachtungen sind Mittelwerte über den Zeitraum von 1981 bis 1983. Die Fehlerbalken stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. In der rechten Spalte erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an den Stationen. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die gestrichelte die Klimatologie nach Legates (Legates und Willmott, 1990) und die fett gestrichelte die von Jaeger (Jaeger, 1976).

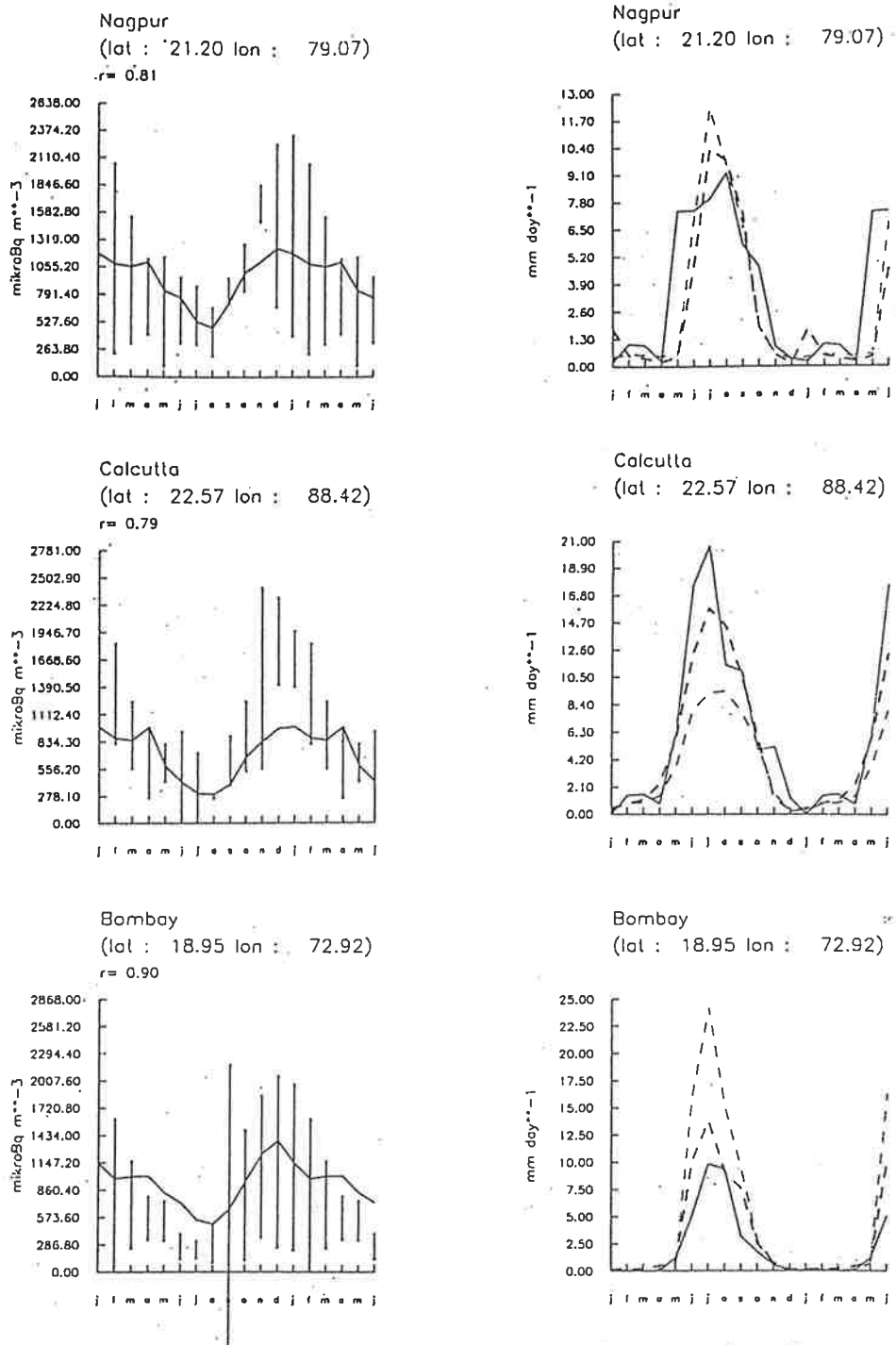


Abb.25 Vergleich zwischen monatlichen Mittelwerten der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] an drei Stationen auf dem indischen Subkontinent (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte die Beobachtungswerte. Die Messungen sind Mittelwerte über den Zeitraum von 1962 bis 1969. Die Fehlerbalken stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. In der rechten Spalte erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an den Stationen. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die gestrichelte die Klimatologie nach Legates (Legates und Willmott, 1990) und die fett gestrichelte die von Jaeger (Jaeger, 1976).

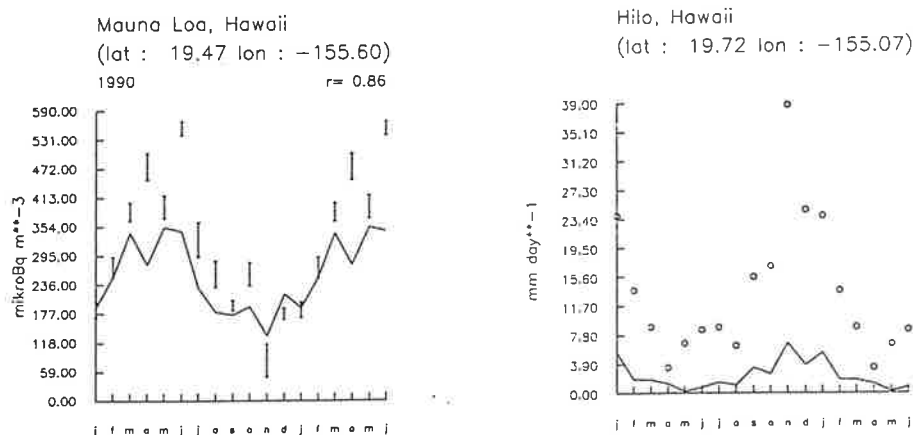


Abb.26 Vergleich zwischen monatlichen Mittelwerten der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] im Jahre 1990 an der Station Mauna Loa auf Hawaii (linkes Bild). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte die Beobachtungswerte. Die Fehlerbalken stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. Im rechten Bild erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an einem der Meßstation nahegelegenen Ort. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die Kreise stellen die beobachtete Niederschlagsrate im Jahre 1990 dar.

werte in der mittleren und oberen Troposphäre. Durch schwächere Mischungsprozesse im Winter werden höher gelegene Stationen von den ^{210}Pb - Aerosolen abgeschirmt. Die modellierte Niederschlagsrate an der nahegelegenen Station Hilo liegt erheblich unter der beobachteten (rechtes Bild). Die modellierte Konzentration ist aber nicht entsprechend zu hoch, sondern ebenfalls niedriger als beobachtet, d.h. der Niederschlag scheint für den Konzentrationsverlauf an dieser Station nicht der relevante Prozeß zu sein.

Abbildung 27 zeigt drei Stationen auf bzw. in der Umgebung des australischen Kontinents. Alle drei gezeigten Stationen besitzen negative Werte der Saisonalität S (siehe oben, Abbildung 21), d.h. die sommerlichen Konzentrationswerte sind höher als diejenigen im Winter. Das Transportmodell zeigt ebenfalls negative Werte für die Saisonalität an. Man würde zunächst aufgrund eines verstärkten vertikalen Massenaustausches im Sommer einen umgekehrten Konzentrationsverlauf erwarten. Diese Stationen werden jedoch vom Jahresgang des Niederschlags geprägt (siehe rechte Spalte der Abbildung 27). Er erreicht Maximalwerte während des Winters (niedrige Konzentrationen) und Minimalwerte im Sommer (hohe Konzentrationen).

Abbildung 28 zeigt eine antarktische Station. Der Jahresgang an antarktischen Stationen wird von der Saisonalität der Transporte aus den mittleren Breiten in die Antarktis bestimmt, da die Niederschlagsrate klein ist und aufgrund der Eis- und Wasserflächen

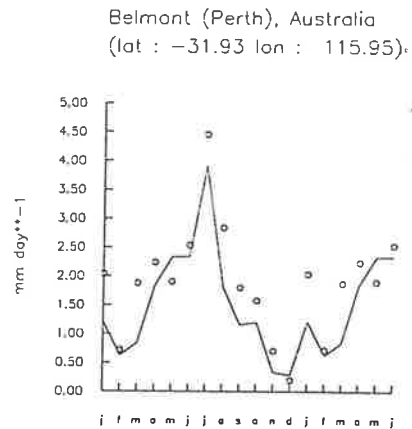
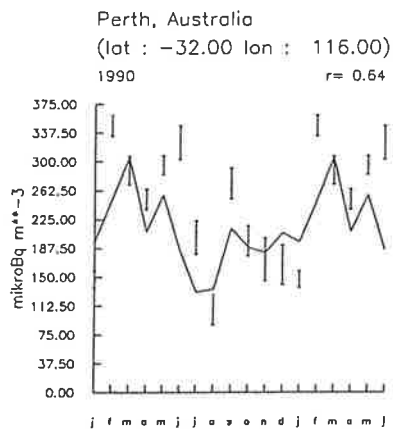
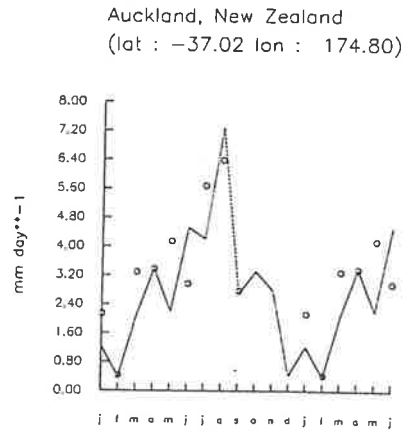
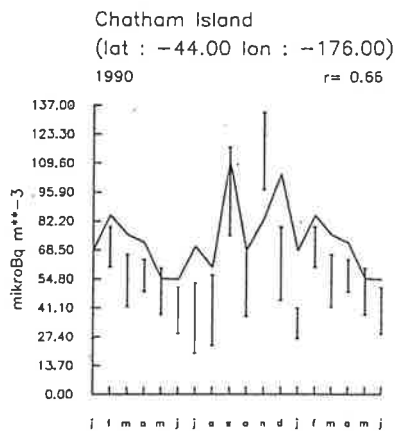
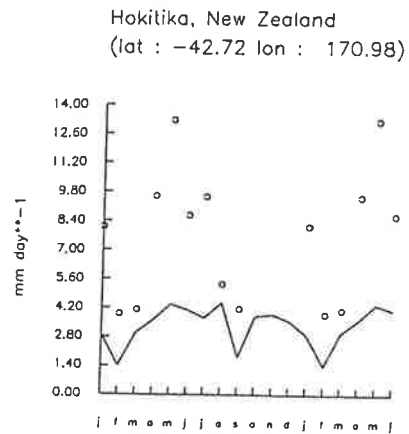
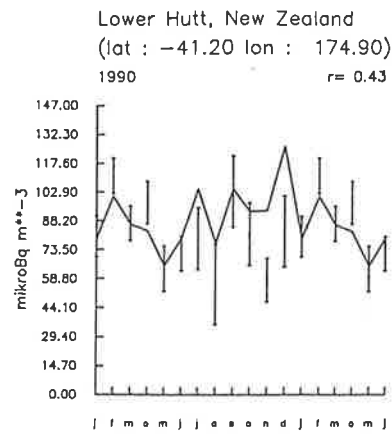


Abb.27 Vergleich zwischen monatlichen Mittelwerten der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] im Jahre 1990 an drei Stationen auf bzw. in der Umgebung des australischen Kontinents (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte die Beobachtungswerte. Die Fehlerbalken stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. In der rechten Spalte erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an einem der Meßstation nahegelegenen Ort. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die Kreise stellen die beobachtete Niederschlagsrate im Jahre 1990 dar.

kaum ein lokaler Eintrag von ^{222}Rn bzw. ^{210}Pb existiert (siehe oben). Lambert et. al. (1990b) konstatieren für die französische Antarktisstation Dumont d'Urville einen Jahresgang mit Maximalwerten der ^{210}Pb - Konzentration im Sommer (Dezember / Januar) und Minimalwerten im Winter (Juni / Juli).

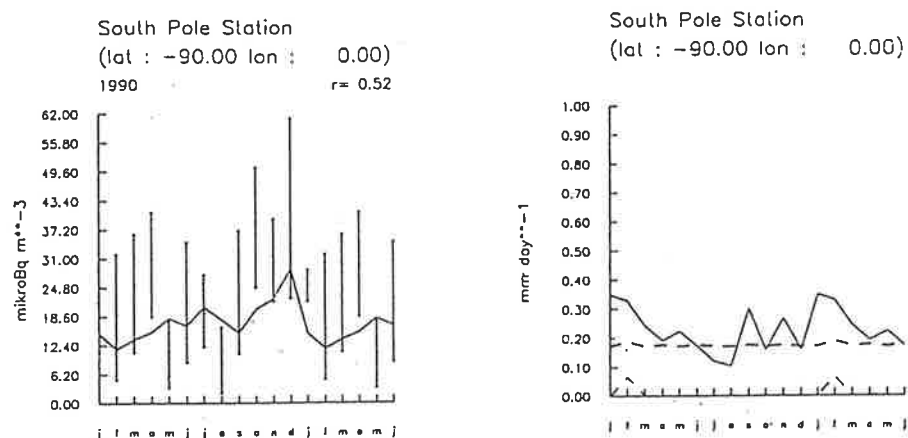


Abb.28 Vergleich zwischen monatlichen Mittelwerten der bodennahen ^{210}Pb - Konzentration [$\mu\text{Bq m}^{-3}$] im Jahre 1990 an einer antarktischen Station (linkes Bild). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte die Beobachtungswerte. Die Fehlerbalken stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. In rechten Bild erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an der Station. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die gestrichelte die Klimatologie nach Legates (Legates und Willmott, 1990) und die fett gestrichelte die von Jaeger (Jaeger, 1976).

Die hier gezeigte South Pole Station weist ebenfalls Konzentrationsmaxima im Dezember und ein Minimum im August auf. Wie oben bereits erläutert, lassen sich die sommerlichen Maximalwerte in der Antarktis dadurch erklären, daß in den mittleren Breiten der Südhemisphäre zu dieser Zeit vermehrt ^{210}Pb - Aerosole in die mittlere und obere Troposphäre gelangen und in diesen Höhen dann in Richtung der Antarktis transportiert werden (Lambert et. al., 1990b).

5.2 Natürliche radioaktive Tracer durch kosmische Strahlung (Beryllium-7 und Beryllium-10)

In diesem Abschnitt werden die Simulationen mit den durch kosmische Strahlung produzierten Isotopen ^7Be und ^{10}Be vorgestellt. Sofern nicht ausdrücklich anders angegeben, beruhen alle gezeigten Ergebnisse auf Modellrechnungen mit dem Parameterisierungsschema der nassen Deposition von Kasibhatla et. al. (1991) und den in Kapitel 4.5 angegebenen Parametern (Referenzlauf). Zunächst erfolgt eine Erläuterung der Quellverteilung und des Interpolationsverfahrens auf das Transportmodellgitter (Kapitel 5.2.1). Nach einer kurzen Vorstellung des Beobachtungsdatensatzes (Abschnitt 5.2.2), beschäftigt sich das Kapitel 5.2.3 mit der Lebensdauer der, die ^7Be - Atome anbindenden, Aerosole. Kapitel 5.2.4 befaßt sich mit den globalen Charakteristika der Konzentrations- und Depositionsverteilung. Die beiden danach folgenden Abschnitte sind den Konzentrationsverhältnissen $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ bzw. $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ gewidmet, welche zur Identifikation spezieller atmosphärischer Transportprozesse sehr gut geeignet sind.

Das Modell startet mit einer Anfangskonzentration von Null für ^7Be und ^{10}Be . Die sich nach einer achtjährigen Einschwingphase (aufgrund der sehr langen radiöaktiven Halbwertszeit des ^{10}Be) ergebende Gleichgewichtskonzentrationsverteilung wird abgespeichert und als Anfangskonzentrationsfeld für die einjährigen Modellsimulationen verwendet. Pro Jahr und Tracer benötigt das Modell ca. 950 CPU-Sekunden auf einer Cray-2S.

5.2.1 Die Quellverteilung

In der Literatur existieren zwei Arbeiten, die sich mit der ^7Be bzw. ^{10}Be - Quellstärke sowie ihrer räumlichen und zeitlichen Variation befassen. Es handelt sich dabei um die auf experimenteller Basis durchgeführte Studie von Lal und Peters (1967) sowie die auf theoretischen Überlegungen basierende Untersuchung von O'Brien (1979). Letztere liefert im Vergleich zu dem Resultat von Lal und Peters (1967) eine um 33% (^7Be) bzw. 44% (^{10}Be) kleinere Quellstärke.

In dieser Arbeit wird die Quellverteilung von Lal und Peters (1967) benutzt. Sie basiert auf dem Zeitraum 1948-1949, einer Periode hoher Sonnenfleckenaktivität, d.h. verminderter Quellstärke (siehe Kapitel 3.2). Auch im hier untersuchten Jahr 1990 erreichte der 11-jährige Zyklus der Sonnenfleckenaktivität einen Maximalwert (Hötzl et. al., 1991). Diskrepanzen zwischen den beobachteten und modellierten, bodennahen ^7Be - Konzentrationen aufgrund dieser Periodizität der Sonnenfleckenaktivität dürften sich deshalb auf ein Minimum reduzieren. Lediglich Unterschiede in der Intensität der Sonnenfleckenmaxima der Jahre 1948/49 bzw. 1990 beeinflussen in diesem Zusammenhang das Ergebnis.

Bei Verwendung von Beobachtungsdaten aus Zeiträumen mit geringer Sonnenfleckenaktivität sind größere Abweichungen von den Modellresultaten wahrscheinlich, insbeson-

dere in den mittleren und hohen Breiten sowie in größeren Höhen, da diese Regionen am stärksten von Variationen in der Sonnenfleckenaktivität beeinflusst werden (siehe Kapitel 3.2). Bei einer Modellsimulation über mehrere Jahre empfiehlt es sich, entsprechend der Intensität der Sonnenfleckenaktivität, die ^7Be - bzw. ^{10}Be - Quelle zeitlich zu variieren (Lal und Peters, 1967). Die Amplitude dieses 11-Jahreszyklus' ist aufgrund der Präsenz längerer Zeitskalen jedoch nicht konstant (Hötzl et. al., 1991).

Der Unterschied in der ^7Be bzw. ^{10}Be - Quellstärke von 33 bzw. 44% zwischen den Ableitungen von Lal und Peters (1967) und O'Brien (1979) läßt den Einfluß des 11-Jahreszyklus' der Sonnenfleckenaktivität auf die bodennahen ^7Be bzw. ^{10}Be - Konzentrationen als sekundären Prozeß erscheinen. Ebenso sollten kurzzeitige Fluktuationen der Sonnenfleckenaktivität in der Größenordnung von Stunden und Tagen wenig Einfluß auf die hier verwendeten Monats- bzw. Jahresmittel der ^7Be bzw. ^{10}Be - Konzentration besitzen.

Die aus Lal und Peters (1967) digitalisierte Quellverteilung beschreibt die "star" - Produktionsrate (Anzahl nuklearer Zerfälle pro Zeiteinheit und Kilogramm Luft, siehe Kapitel 3.2) für 13 Druckniveaus (0, 50, 100, 200, 300, 400, 500, 600, 700, 800, 900, 1000, 1013 hPa) und 10 geomagnetische Breiten (0, 10, 20, ..., 90°). Die Verhältnisse sind symmetrisch zwischen den beiden Hemisphären. Dieser Datensatz wird bilinear auf die Druckflächen und geographischen Längen bzw. Breiten des Transportmodells interpoliert, wobei die geographischen Ortskoordinaten auf die geomagnetische Breite konvertiert werden. Der geomagnetische Nordpol liegt nahe Thule in Grönland (Matsushita und Campbell, 1967).

Abbildung 29 zeigt einen Meridionalschnitt der zonal gemittelten, auf das Transportmodellgitter interpolierten "star" - Produktionsrate. Man erkennt die in Kapitel 3.2 erläuterten Charakteristika der Quellverteilung, d.h. mit der geographischen Breite und der Höhe zunehmende Produktionsraten. Die ^7Be bzw. ^{10}Be - Produktionsrate erhält man durch Multiplikation der "star" - Produktionsrate mit dem Faktor $4.5 \cdot 10^{-2}$ bzw. $2.5 \cdot 10^{-2}$ (Lal und Peters, 1967).

5.2.2 Der Beobachtungsdatensatz

Es existieren wesentlich mehr Konzentrations- als Depositionsmessungen. Abbildung 30 zeigt die geographische Verteilung der Stationen mit monatlichen, bodennahen ^7Be - Konzentrationsbeobachtungen des Jahres 1990. Der Großteil der Stationen gehört zum Meßnetz des Environmental Measurements Laboratory in New York (Larsen und Sanderson, 1991), die europäischen Messungen stammen aus Frankreich (Commissariat à l'Énergie Atomique, 1990a,b,c). Ferner existiert eine Meßreihe einer japanischen Station (Abe et. al., 1993) sowie eine der Georg-von-Neumayer Station in der Antarktis (Wagenbach, 1993 ; private Mitteilung). Für die Georg-von-Neumayer Station liegt außerdem ein über mehrere Jahre (1983 bis 1986) gemittelter Datensatz des monatlichen Konzen-

Anzahl nuklearer Zerfaelle [$10^{**5} \text{ s}^{**1} \text{ g}^{**1}$]

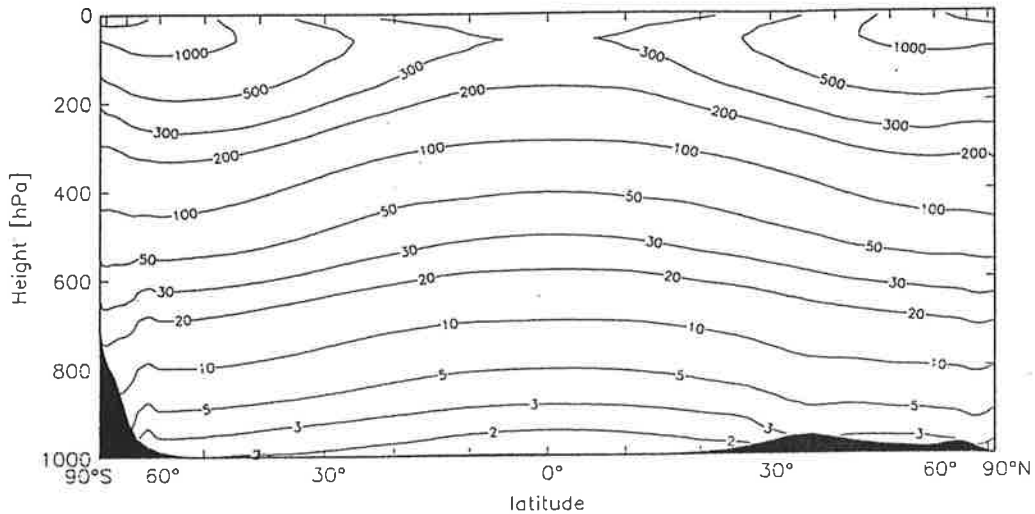


Abb.29 Meridionalschnitt der zonal gemittelten "star" - Produktionsrate im Transportmodell. Die ^7Be bzw. ^{10}Be - Produktionsrate ergibt sich hieraus durch Multiplikation mit dem Faktor $4.5 \cdot 10^{-2}$ bzw. $2.5 \cdot 10^{-2}$.

trationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ vor (Wagenbach, 1993 ; private Mitteilung).

^7Be - Konzentrationsmessungen in größeren Höhen gibt es nur wenige. Diese Beobachtungen sind ferner keine monatlichen bzw. jährlichen Mittelwerte, sondern basieren auf wesentlich kürzeren Meßperioden. Bleichrodt (1978) zeigt ^7Be als Funktion der Höhe über den Niederlanden. Dutkiewicz und Husain (1979) haben mit Hilfe von Meßflugzeugen die ^7Be und O_3 - Konzentration zwischen 10 und 12 km und 21 und 55°N bestimmt. Drevinsky et. al. (1964) ermitteln die ^7Be - Konzentration, zusammen mit der Konzentration anderer radioaktiver Isotope, in 20 km Höhe über der zentralen USA. Weitere Daten der oberen Troposphäre bzw. unteren Stratosphäre präsentieren Bhandari et. al. (1966) sowie Bhandari (1970).

Die ^7Be - Depositionsrate über dem Ozean haben Young und Silker (1980) aus Messungen der ^7Be - Masse in der ozeanischen Deckschicht abgeleitet. Diese GEOSECS - Meßkampagne erstreckte sich im Pazifik von 30°S bis 60°N und im Atlantik von 10°N bis 55°N. Etwa 30 ^7Be - Konzentrationsprofile bis zu einer Tiefe von 100 m wurden gewonnen. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit des ^7Be (53 Tage) nimmt die Konzentration von ihrem Maximalwert an der Wasseroberfläche sehr rasch mit der Tiefe ab und erreicht in 100 m praktisch den Wert Null. Lediglich in zwei Fällen bewirkten hohe Umwälzraten in

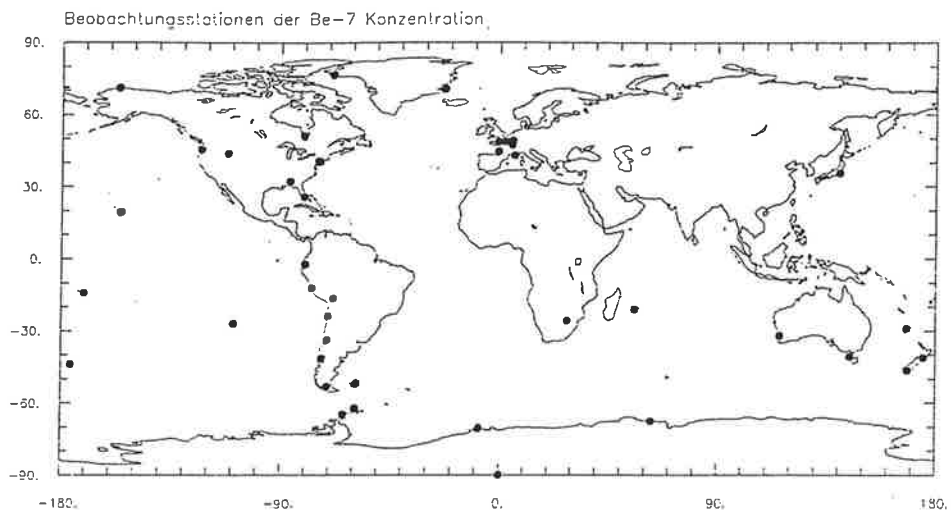


Abb.30 Geographische Verteilung der Stationen mit monatlichen, bodennahen ^7Be - Konzentrationsbeobachtungen des Jahres 1990 (gekennzeichnet als schwarze Punkte)

der ozeanischen Deckschicht eine praktisch gleichförmige Konzentrationsverteilung bis in 100 m Tiefe. In diesen Fällen wurde eine lineare Abnahme auf den Wert Null in 150 m Tiefe angenommen. Aus der beobachteten Variation der Mächtigkeit der ozeanischen Deckschicht mit der geographischen Breite parameterisieren Young und Silker (1980) die ^7Be - Masse in der ozeanischen Deckschicht (und damit die Depositionsrate) in Abhängigkeit von der Konzentration an der Wasseroberfläche. Diese Parameterisierung wird auf die etwa 200 Messungen an der Wasseroberfläche angewandt und die daraus resultierende Deposition über 10° breite zonale Gürtel gemittelt.

^7Be eignet sich aufgrund seiner radioaktiven Halbwertszeit von 53 Tagen sehr gut für eine derartige Analyse. Es dringt nur bis zu Tiefen von ca. 100 m vor und wird auch horizontal nur in einem geringen Ausmaß transportiert. Lediglich in Gebieten mit starken ozeanischen Strömungen, wie dem Golfstrom, kann es sein, daß die an einem Ort gemessene ^7Be - Masse im Ozean zu einem Großteil an einer weit davon entfernt liegenden Stelle deponiert wurde (Young und Silker, 1980).

Abbildung 31 zeigt diese GEOSECS - Meßregion durch die schraffierte Fläche an. Zusätzlich sind die Orte von ^7Be - Depositionsmessungen über Land mit schwarzen Punkten gekennzeichnet (Commissariat a l'Énergie Atomique, 1990a,b,c ; Bleichrodt, 1978 ;

Dibb, 1989 ; Crecelius, 1981 ; Turekian et. al., 1983 ; Todd et. al., 1989).

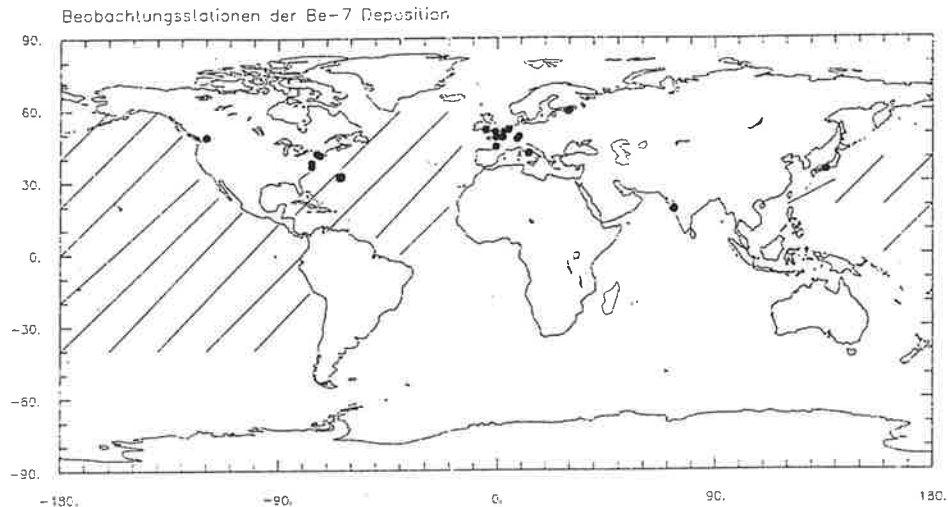


Abb.31 Geographische Lage der ^7Be - Depositionsbeobachtungen über Land (schwarze Punkte) und über Wasser (GEOSECS - Meßregion, dargestellt durch die schraffierte Fläche (Young und Silker, 1980)).

5.2.3 Lebensdauer der Aerosole in der Atmosphäre

Die Anbindung der ^7Be - Atome an Aerosole der Größenordnung 0.025 bis $1 \mu\text{m}$ im Radius (Brost et. al., 1991) ermöglicht, wie schon beim ^{210}Pb , das Studium der Lebensdauer dieser Aerosole in der Atmosphäre (siehe Abschnitt 5.1.2). Die Quellverteilung des ^7Be läßt höhere atmosphärische Verweilzeiten im Vergleich zu den ^{210}Pb - Aerosolen erwarten.

Abbildung 32 zeigt zwei Vertikalprofile der global und jährlich gemittelten Lebenszeit der ^7Be - Aerosole im Transportmodell. Die durchgezogene Kurve beschreibt das Ergebnis des Referenzmodelllaufes (Schema von Kasibhatla et. al. (1991), siehe Kapitel 4.5), während die gestrichelte das Resultat der Simulation mit dem Schema von Mahlman und Moxim (1978) repräsentiert. Das Aussehen beider Kurven ähnelt sehr dem Ergebnis für die ^{210}Pb - Aerosole (siehe Kapitel 5.1.2). Bis zu einer Höhe von ca. 3 km nimmt im Referenzlauf (durchgezogene Kurve) die Aerosollebensdauer wieder nur sehr langsam zu, da sowohl stratiformer wie konvektiver Niederschlag zur nassen Deposition beitragen. Oberhalb davon tritt im Schema nur noch konvektiver Niederschlag auf und die Lebenszeit wächst an. Das Schema von Mahlman und Moxim (1978) liefert zwischen einem und sechs Kilometern Höhe um ein bis zwei Tage höhere Lebenszeiten, es wächst also schwächer aus, und oberhalb davon um bis zu vier Tage kleinere Lebenszeiten, also höhere Auswaschraten.

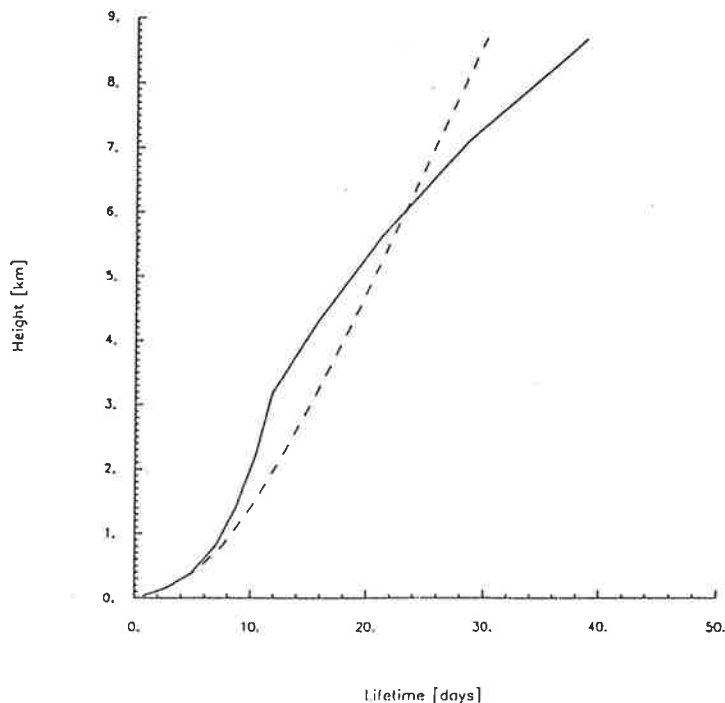


Abb.32 Vertikalprofile der global und jährlich gemittelten Lebenszeit der ^7Be - Aerosole [Tage] im Transportmodell. Die durchgezogene Kurve bezeichnet den Referenzlauf (Schema von Kasibhatla et. al. (1991)), die gestrichelte bezieht sich auf eine Simulation mit dem Schema von Mahlman und Moxim (1978).

Die unterschiedliche Quellverteilung vom ^{210}Pb und ^7Be beeinflusst die Aerosollebenszeit. Für ^7Be - Partikel beträgt sie im Bereich der unteren Troposphäre (bis ca. 3 km Höhe) ein bis elf Tage (^{210}Pb : ein bis zehn Tage) und in 8 km Höhe ca. 34 Tage (^{210}Pb : 20 Tage). Die ^{210}Pb - Partikel weisen geringere Lebenszeiten auf, weil sie relativ rasch ausgewaschen werden, wohingegen die ^7Be - Aerosole erst viel später nach ihrer Entstehung von oben in die Wolken eingemischt und ausgewaschen werden.

Die Abhängigkeit der Aerosollebensdauer von der geographischen Breite und der Jahreszeit ist in Abbildung 33 dargestellt. Gezeigt werden Meridionalprofile der modellierten, zonal und vertikal gemittelten, mittleren Lebenszeit der Aerosole in der Atmosphäre für den Januar (durchgezogene Linie) und den Juli (gestrichelte Linie). Der Verlauf der Kurven ähnelt wiederum sehr dem Resultat für die ^{210}Pb - Aerosole (siehe Abbildung 9 in Kapitel 5.1.2) bei entsprechend höheren Lebenszeiten. Die niederschlagsarmen Subtropen und Polarregionen weisen Aerosollebenszeiten von 30 bis 55 Tagen auf (^{210}Pb : 13 bis 30 Tage), während die Niederschläge im Bereich der ITCZ (5°N) und in den mittleren Breiten für wesentlich geringere Aerosolverweilzeiten (10 bis 20 Tage) sorgen (^{210}Pb : 5 bis 10 Tage). Dieses Muster verschiebt sich im Sommer zu höheren Breiten hin.

Abbildung 34 zeigt einen Meridionalschnitt der zonal und jährlich gemittelten ^7Be - Aerosollebenszeit im Transportmodell. Auch in dieser Darstellung kristallisieren sich die

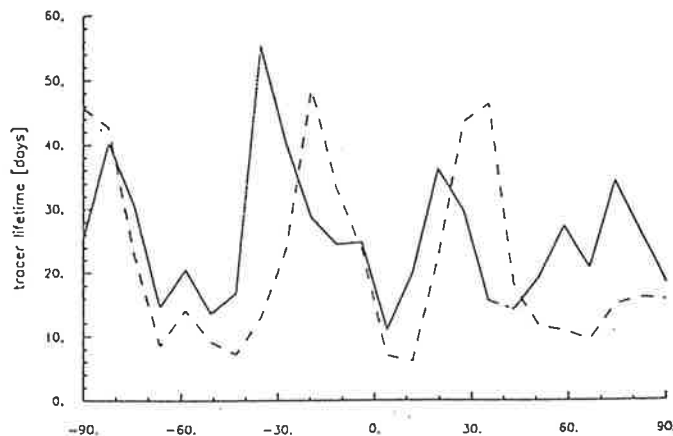


Abb.33 Zonal und vertikal gemittelte, mittlere Lebenszeit [Tage] der ^7Be - Atome absorbierenden Aerosole in Abhängigkeit von der geographischen Breite für den Januar (durchgezogene Linie) und den Juli (gestrichelte Linie) im Transportmodell.

Subtropen und Polarregionen durch hohe Lebenszeiten von 30 bis 100 Tagen heraus, während im Bereich der ITCZ und den mittleren Breiten die intensiven Niederschläge für Verweilzeiten von weit unter 20 Tagen in der gesamten Troposphäre sorgen. Das Muster ähnelt wieder dem für die ^{210}Pb - Aerosole (siehe Abbildung 10) bei einem entsprechend höheren Niveau der Lebenszeiten. Sehr viel höher im Vergleich zum ^{210}Pb - Aerosol sind die arktischen Aerosollebenszeiten der mittleren und oberen Troposphäre. Der Vertikaltransport aus der Quellregion in die untere Troposphäre scheint schwach zu sein.

Abbildung 35 zeigt den Jahresmittelwert der ^7Be - Aerosollebenszeit in der untersten Modellschicht (unteres Bild) und im 320 hPa - Niveau (oberes Bild). Im untersten Modellniveau liegt die Aerosollebensdauer unterhalb von einem Tag, da sowohl trockene als auch nasse Deposition wirken (siehe auch Abbildung 11 für die ^{210}Pb - Aerosole). Im 320 hPa - Niveau kristallisieren sich die trockenen Gebiete der Sahara, der Subtropen westlich der Kontinente, der Arktis und Antarktis durch hohe Lebenszeiten von 50 bis 200 Tagen heraus, während im Bereich der ITCZ und im Monsungebiet Südasiens teilweise Werte von unter 5 Tagen anzutreffen sind. Die mittleren Breiten weisen zonal homogene Verhältnisse mit Lebenszeiten von unter 20 Tagen auf.

5.2.4 Globale Charakteristika der Konzentrations- und Depositionsverteilung

Abbildung 36 zeigt den Jahresmittelwert der ^7Be - Konzentration in der untersten Modellschicht (oberes Bild) sowie die modellierte ^7Be - Jahresdeposition (unteres Bild).

Maximale Konzentrationswerte von über 10 mBq m^{-3} kennzeichnen das Tibetische

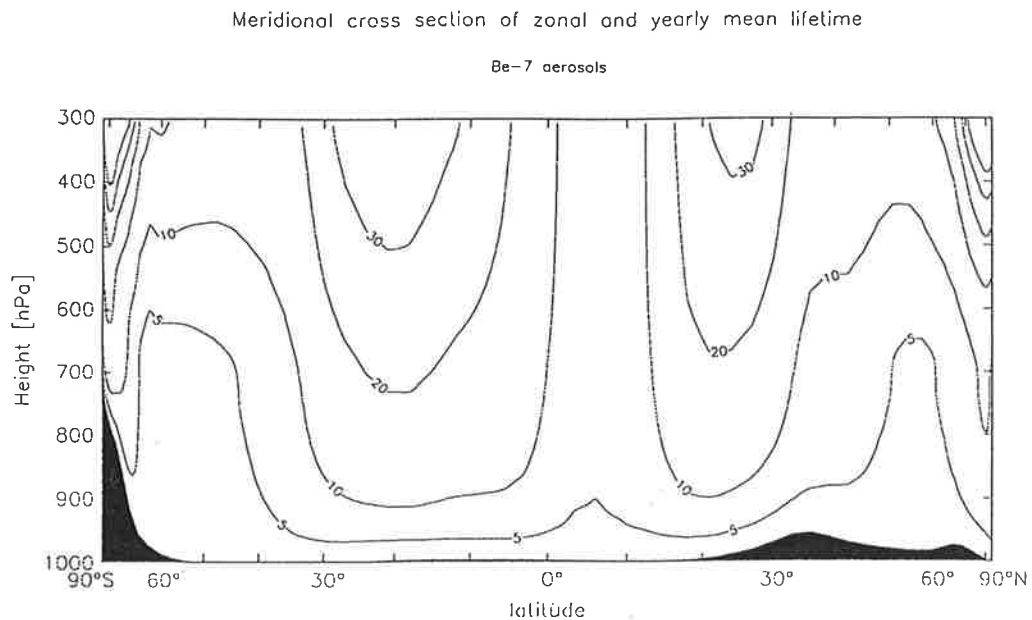


Abb.34 Meridionalschnitt der zonal und jährlich gemittelten Lebenszeit der ^7Be - Aerosole [Tage] im Transportmodell.

Hochplateau. Ebenso zeichnen sich die subtropischen Hochdruckgürtel, insbesondere über Afrika, durch hohe Konzentrationen aus. Die Kombination von absinkender Luftbewegung, wodurch verstärkt ^7Be - Aerosole zum Erdboden transportiert werden, und fehlendem Niederschlag ist hierfür verantwortlich. Minimalwerte der Konzentration, von 1 bis 2.5 mBq m^{-3} , zeigen sich im Bereich des Regenbandes der ITCZ, insbesondere im ostasiatischen Raum. Die Konzentrationsverteilung in den mittleren Breiten ist sehr homogen. Ein Minimalwert kristallisiert sich jedoch südlich des südamerikanischen Kontinents heraus; wahrscheinlich durch hohe stratiforme Niederschlagsraten im Bereich der Zyklogenese verursacht. Die Antarktis weist aufgrund ihrer größeren Höhenlage höhere Konzentrationen als die Arktis auf.

Maxima der Deposition von über $2 \text{ kBq m}^{-2} \text{ Jahr}^{-1}$ finden sich in Verbindung mit dem Regenband der ITCZ und über der asiatischen Monsunregion. Auch die mittleren Breiten weisen Depositionsmaxima, insbesondere über den Ozeanen, auf. Minima von unter $0.5 \text{ kBq m}^{-2} \text{ Jahr}^{-1}$ finden sich in der Polarregion, in der Sahara und im Bereich der subtropischen Hochdruckgebiete westlich des amerikanischen, afrikanischen und australischen Kontinents.

Einen Vergleich zwischen beobachteter und modellierter ^7Be - Deposition liefert Abbildung 37. Dargestellt ist ein Meridionalprofil der modellierten, zonal gemittelten Jahresdeposition (durchgezogene Kurve), zusammen mit Beobachtungen über dem Ozean (Quadrate; Mittelwerte über 10° breite zonale Gürtel der GEOSECS - Region, siehe Young und Silker (1980)) und über Land (Kreise; Mittelwerte über 10° breite zonale

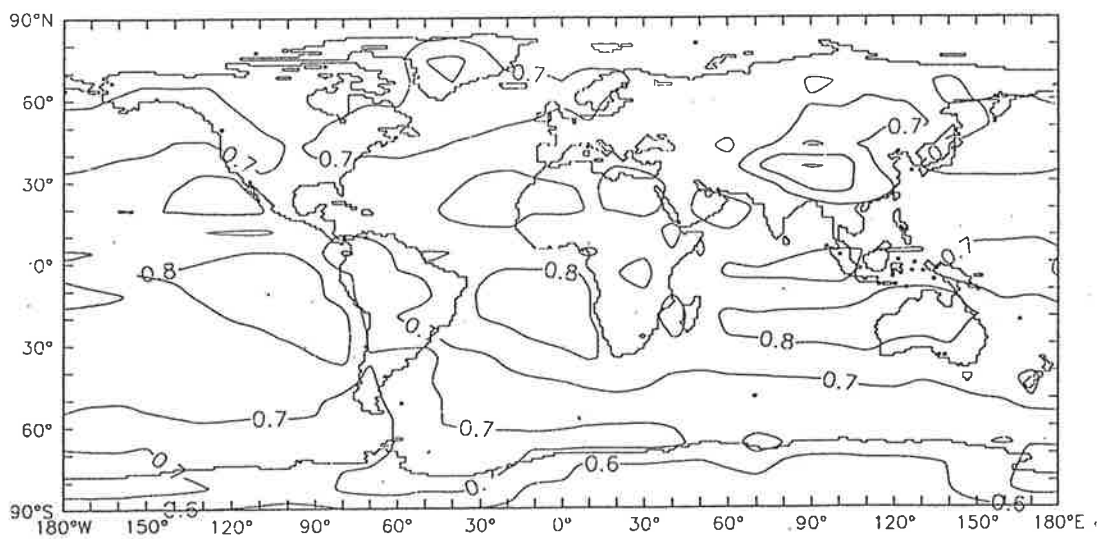
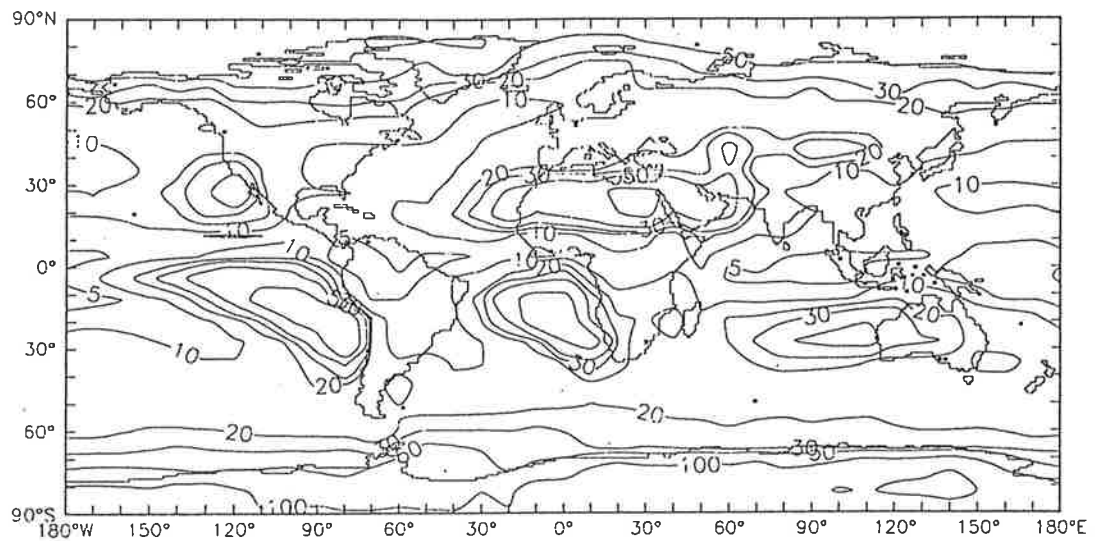
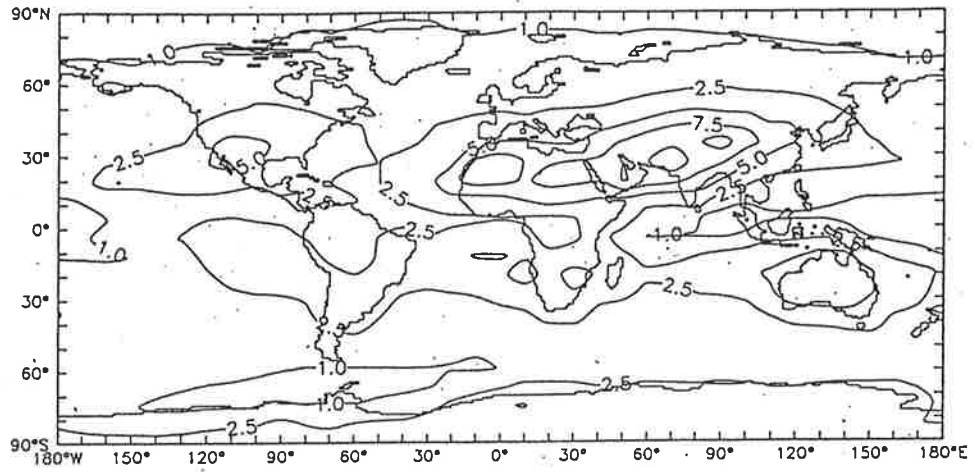


Abb.35 Jahresmittelwert der ^7Be - Aerosollebenszeit [Tage] in der untersten Modellschicht (unteres Bild) sowie im 320 hPa - Niveau (oberes Bild).

Yearly mean concentration of Be-7 [mBq m^{-3}]



Yearly deposited Be-7 [$\text{kBq m}^{-2} \text{yr}^{-1}$]

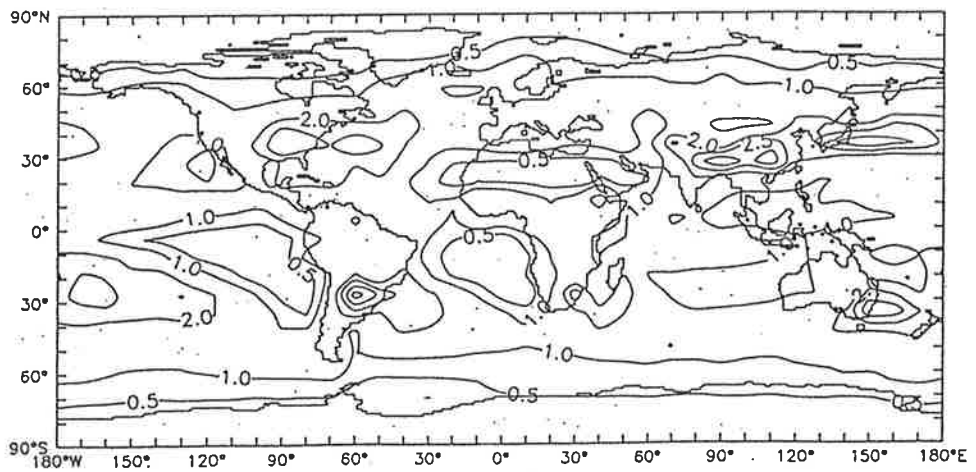


Abb.36 Jahresmittelwert der ^7Be - Konzentration [mBq m^{-3}] in der untersten Modellschicht (oberes Bild) sowie die modellierte ^7Be - Jahresdeposition [$\text{kBq m}^{-2} \text{Jahr}^{-1}$] (unteres Bild).

Gürtel). Die beobachteten Depositionsraten über Wasser und Land sind einander sehr ähnlich. Die Übereinstimmung zwischen den Modellresultaten und den Beobachtungen ist bemerkenswert gut. Beide sind charakterisiert durch Maxima in den mittleren Breiten beider Hemisphären, verursacht durch stratiforme Niederschläge in Verbindung mit den Zyklonen und einem verstärkten Einmischen von stratosphärischem ^7Be im Bereich der Frontalzone in die Troposphäre (Danielsen, 1968). Ein weiteres, schwächeres Maximum befindet sich bei 15°N , verursacht durch konvektiven Niederschlag im Bereich der ITCZ. Ein Minimum befindet sich zwischen 0 und 10°S . Der Anteil der trockenen an der gesamten Deposition beträgt im Modell nur ca. 6.7%. Sie spielt also für ^7Be -Aerosole, im Vergleich zum ^{210}Pb (12.6%, siehe Kapitel 5.1.3), eine noch geringere Rolle.

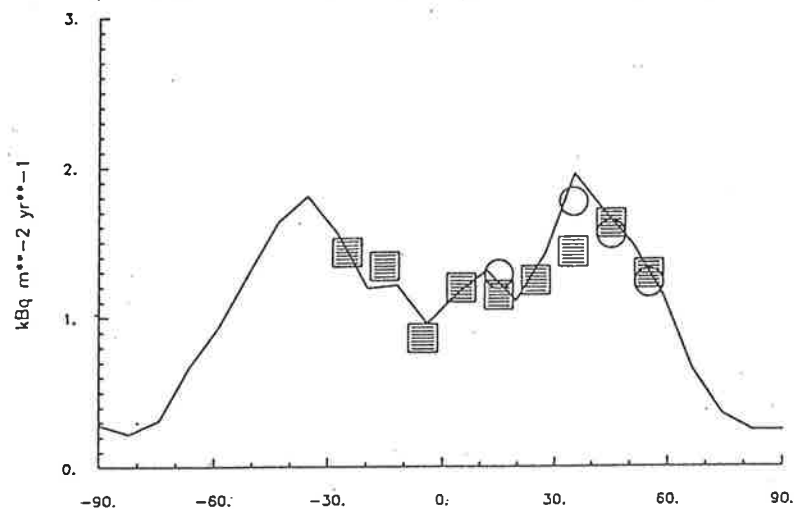


Abb.37 Vergleich zwischen modellierter und beobachteter ^7Be -Deposition. Die durchgezogene Kurve beschreibt den Verlauf der modellierten, zonal gemittelten Jahresdeposition [$\text{kBq m}^{-2} \text{ Jahr}^{-1}$]. Die Quadrate bezeichnen Beobachtungen über dem Ozean (Mittelwerte über 10° breite zonale Gürtel der GEO-SECS-Region, siehe Young und Silker (1980)), die Kreise solche über Land (Mittelwerte über 10° breite zonale Gürtel).

Tabelle 8 zeigt die globale trockene und nasse ^7Be -Depositionsrate im Transportmodell für verschiedene Parametereinstellungen. Die Ergebnisse in der ersten Zeile beziehen sich auf den Referenzlauf (Schema von Kasibhatla et. al. (1991), siehe Kapitel 4.5). In der zweiten Zeile stehen die Resultate einer Simulation mit reduzierten Flüssigwasserwerten ($L_s = 0.5 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$, $L_c = 2 \cdot 10^{-6} \text{ g cm}^{-3}$), so wie sie ursprünglich von Kasibhatla et. al. (1991) verwendet wurden (Kapitel 4.5). In der dritten Zeile wurde die Skalenhöhe des stratiformen Niederschlags auf $H_s = 5.63 \text{ km}$ und die des konvektiven Niederschlags auf $H_c = 12.16 \text{ km}$ angehoben (Abschnitt 4.5). M-75 bezeichnet die Resultate des Modellaufs mit um 75% reduzierten subskaligen, vertikalen Massenflüssen. In der letzten Zeile sind die Ergebnisse bei Verwendung des Parameterisierungsschemas von Mahlman und Moxim (1978) zu sehen (Kapitel 4.5).

	Trockene Deposition	Nasse Deposition
Referenzlauf	3.07	42.63
Reduzierter Flüssigwassergehalt	2.11	46.0
Größere Skalenhöhe	2.83	52.73
M-75	1.71	39.99
Mahlman und Moxim (1978)	3.16	45.65

Tab.8 Globale trockene und nasse ^7Be - Depositionsrate [10^{19} Bq Jahr $^{-1}$] im Transportmodell. Neben dem Referenzlauf (Verwendung des Schemas von Kasibhatla et. al. (1991), 1. Zeile) werden die Ergebnisse einer Simulation mit reduzierten Flüssigwasserwerten ($L_s = 0.5 \cdot 10^{-6}$ g cm $^{-3}$, $L_c = 2 \cdot 10^{-6}$ g cm $^{-3}$) bzw. vergrößerten Skalenhöhen ($H_s = 5.63$ km, $H_c = 12.16$ km) präsentiert (siehe Kapitel 4.5). M-75 bezieht sich auf einen Modellauf mit um 75% reduzierten subskaligen, vertikalen Massenflüssen (Abschnitt 4.4), und in der letzten Zeile werden die Resultate bei Verwendung des Parameterisierungsschemas von Mahlman und Moxim (1978) vorgestellt (Kapitel 4.5).

Es zeigt sich, daß die Resultate am empfindlichsten auf eine Vergrößerung der Skalenhöhen im Parameterisierungsschema von Kasibhatla et. al. (1991) reagieren. Die nasse Depositionsrate steigt hierbei um 23.7%, im Falle einer Reduzierung der Flüssigwasserwerte (2. Zeile) nur um 7.9%, an. Dieses Ergebnis ist einleuchtend, da vom ^7Be wesentlich mehr in der oberen Troposphäre als in der unteren Troposphäre produziert wird. Eine Vergrößerung der Skalenhöhen, d.h. eine Erhöhung der vertikalen Mächtigkeit des Niederschlagsereignisses, beeinflußt dann auch das in größeren Höhen erzeugte ^7Be .

Die beiden Schemata von Kasibhatla et. al. (1991) und Mahlman und Moxim (1978) differieren in der nassen Deposition um 7.1% voneinander, eine Reduzierung der subskaligen Massenflüsse (M-75) bewirkt eine Reduktion der nassen Deposition um 6.2%, da weniger ^7Be - Aerosole aus der Quellregion in die mittlere und untere Troposphäre transportiert werden. Ein Vergleich mit den entsprechenden Resultaten der ^{210}Pb - Simulationen (Tabelle 5, Abschnitt 5.1.3) offenbart eine erhöhte Sensitivität der ^7Be - Simulationen bezüglich Veränderungen in der Parameterisierung der nassen Deposition.

Tabelle 9 zeigt einen Vergleich zwischen modellierten und beobachteten Jahresmittelwerten der bodennahen ^7Be - Konzentration für größere geographische Regionen. Defizite des Transportmodells kristallisieren sich in der Arktis und Antarktis heraus, während sonst eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtungen besteht. Die Datenmenge für die Polarregionen ist allerdings wesentlich kleiner als für die anderen Kontinente.

Analog den ^{210}Pb - Analysen wird auch für die ^7Be - Simulationen eine "root mean square" - Berechnung durchgeführt, um die Güte der Modellresultate zu ermitteln (siehe Tabelle 7, Kapitel 5.1.3). Tabelle 10 zeigt die "root mean square" - Werte RMS für ver-

	Anzahl Stationen	Beobachtungen	Modell
Grönland	2	2.07	1.26
Nord- und Mittelamerika	9	3.29	2.90
Südamerika	9	2.73	2.70
Australien / Neuseeland	7	2.71	2.59
Antarktis	2	2.45	3.20

Tab.9 Jahresmittelwerte der bodennahen ^7Be - Konzentration [mBq m^{-3}] für größere geographische Regionen im Modell und in den Beobachtungen. Zusätzlich ist die Anzahl der Stationen über die die Mittelung erfolgt angegeben.

schiedene geographische Regionen und für verschiedene Simulationen (siehe Beschreibung in Tabelle 8). Für diese Analyse wurden alle verfügbaren monatlichen, bodennahen ^7Be - Konzentrationsbeobachtungen des Jahres 1990 herangezogen.

	Arktis (n=33)	Nord- und Mittelamerika (n=74)	Südamerika (n=94)	Australien und Neuseeland (n=59)	Antarktis (n=48)	global (n=371)
Referenzlauf	1.04	1.16	1.35	1.02	1.54	1.27
Reduzierte Flüssigwasserwerte	1.47	1.57	1.48	1.25	1.62	1.57
Größere Skalenhöhe	1.02	1.24	1.16	0.82	1.43	1.24
M-75	1.48	2.27	1.91	1.89	1.60	2.01
Mahlman und Moxim (1978)	0.90	1.32	1.43	1.02	1.53	1.36

Tab.10 "Root Mean Square" - Wert RMS [mBq m^{-3}] für verschiedene geographische Regionen und global. Für diese Analyse wurden alle verfügbaren Beobachtungen der bodennahen, monatlichen ^7Be - Konzentration des Jahres 1990 herangezogen. Vergleichend sind die Resultate der Sensitivitätsmodellläufe dargestellt. Für deren nähere Beschreibung sei auf Tabelle 8 verwiesen. n bezeichnet die Anzahl der Beobachtungen.

Der Referenzlauf, also das Schema von Kasibhatla et. al. (1991), liefert global kleinere RMS - Werte als das Schema von Mahlman und Moxim (1978), für die Polarregionen jedoch größere Werte, d.h. eine schlechtere Übereinstimmung mit den Beobachtungen. Eine Reduzierung der Flüssigwasserwerte im Schema von Kasibhatla et. al. (1991) und insbesondere die Reduzierung der subskaligen Massenflüsse (M-75) vermindert die Übereinstimmung mit den Beobachtungen deutlich. Im Gegensatz dazu verbessert die Vergrößerung der Skalenhöhen das Ergebnis, jedoch nicht für Nord- und Mittelamerika.

Bei Betrachtung der Saisonalität kristallisiert sich eine Diskrepanz zwischen Modell und Beobachtungen an tropischen und arktischen Stationen heraus. In Abbildung 38 er-

folgt ein Vergleich zwischen beobachteter und modellierter Saisonalität. Die Saisonalität S ist definiert als $S = (-) \frac{DJF - JJA}{DJF + JJA}$, wobei DJF den Mittelwert der Konzentrationen über die Monate Dezember, Januar und Februar (nordhemisphärischer Winter) und JJA denjenigen über die Monate Juni, Juli und August (nordhemisphärischer Sommer) bezeichnet. Das Minuszeichen in der obigen Definition für S gilt für die Südhemisphäre, d.h. positive Werte von S bedeuten immer Konzentrationsmaxima im Winter und Minima im Sommer.

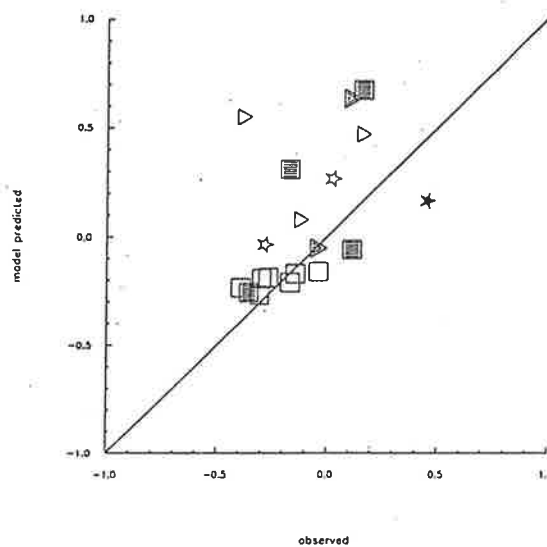


Abb.38 Vergleich der Saisonalität der bodennahen ^7Be - Konzentrationen im Transportmodell und in den Beobachtungen für das Jahr 1990. Die Saisonalität S ist definiert als $S = (-) \frac{DJF - JJA}{DJF + JJA}$, wobei DJF den Mittelwert der Konzentrationen über die Monate Dezember, Januar und Februar (nordhemisphärischer Winter) und JJA den Mittelwert über die Monate Juni, Juli und August (nordhemisphärischer Sommer) bezeichnet. Das Minuszeichen in der Beziehung für S gilt für die Südhemisphäre. Sterne bezeichnen Stationen in geographischen Breiten von 60 bis 90°, Quadrate solche zwischen 30 und 60°, und Dreiecke bezeichnen Stationen in Breiten zwischen 0 und 30°. Schwarze Symbole kennzeichnen die Nordhemisphäre, weiße Symbole die Südhemisphäre.

Die Saisonalität an Stationen in mittleren Breiten beider Hemisphären vermag das Transportmodell sehr gut zu simulieren. Die Saisonalität S zeigt leicht negative Werte, d.h. Konzentrationsmaxima im Sommer, die durch den verstärkten vertikalen Massenaustausch, insbesondere an kontinentalen Stationen, zustande kommen. Die beobachtete Saisonalität arktischer Stationen ist positiv, d.h. diese Meßorte weisen Konzentrationsmaxima im Winter auf. Dieser Jahrgang zeigt Parallelen zum Phänomen des arktischen Dunstes (Feely et. al., 1988). Wie auch schon bei der Vorstellung der ^{210}Pb - Simulationen (Kapitel 5.1) erwähnt, entsteht dieser durch die Emission anthropogener Aerosole in mittleren Breiten und ihrem Transport in die Arktis (Rahn, 1981). Durch Veränderungen in den horizontalen Transportprozessen und einem vermehrten Auswaschen der Aerosole

auf ihrem Weg in die Polarregion verschwindet er im Frühsommer (Barrie et. al., 1981). Der ^7Be - Konzentrationsverlauf untermauert die Vermutung, daß diese Aerosole ^7Be - Atome absorbiert haben. Wie Abbildung 38 zeigt, prognostiziert das Transportmodell keinen Jahresgang an den arktischen Stationen. Da dieses Defizit auch in den ^{210}Pb - Simulationen zum Vorschein kam, scheint sich hier ein Transportproblem des Modells herauszukristallisieren.

Die tropischen Stationsbeobachtungen weisen leicht negative oder positive Werte für S auf, während das Modell immer positive Werte berechnet. Der Jahresgang an tropischen Stationen ist oft eng mit der Niederschlagsrate gekoppelt (Feely et. al., 1988), so daß diese Diskrepanzen wahrscheinlich auf Abweichungen zwischen dem tatsächlichen und dem modellierten Niederschlag zurückzuführen sind. Die beiden folgenden Abschnitte werden die für die Saisonalität der bodennahen Konzentration verantwortlichen Prozesse näher beleuchten.

5.2.5 Das Konzentrationsverhältnis Beryllium-10 zu Beryllium-7 als Indikator stratosphärischer Luftmassen

Das Verhältnis $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ ist ein guter Indikator für die Herkunft, Verweilzeit und die Mischungsprozesse verschiedener Luftmassen. Insbesondere dient es zur Identifizierung stratosphärischer Luftmasseneinbrüche in die Troposphäre (Raisbeck et. al., 1981). Wie in Abschnitt 5.2.1 (Abbildung 29) erläutert wurde, ist die räumliche Quellverteilung des ^7Be bzw. ^{10}Be identisch. Das Produktionsverhältnis von $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ beträgt $2.5 \cdot 10^{-2}/4.5 \cdot 10^{-2} \approx 0.5$ (Kapitel 5.2.1). Die radioaktiven Halbwertszeiten beider Tracer sind mit 53 Tagen (^7Be) und $2.5 \cdot 10^6$ Jahren (^{10}Be) sehr verschieden (siehe Kapitel 3.2). Die Größe des Verhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ in einem isolierten Luftpaket ist daher ein Maß für die seit dem letzten Auswaschprozeß vergangene Zeit. Da die mittlere Aufenthaltszeit eines Tracers in der Stratosphäre ca. ein Jahr beträgt (Raisbeck et. al., 1981), ehe eine Substanz in die Troposphäre eingemischt und schließlich ausgewaschen wird, zeichnen sich stratosphärische Luftmassen durch hohe Werte des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ aus.

Dies verdeutlicht der in Abbildung 39 gezeigte Meridionalschnitt des zonal und jährlich gemittelten Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$. Die stratosphärischen Werte dieser Größe schwanken zwischen 3 (untere Stratosphäre) und 15 (obere Stratosphäre).

Ein starker vertikaler Gradient existiert im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre der Tropen. Nördlich von 30°N bzw. südlich von 30°S ist dieser Gradient wesentlich schwächer. Ferner sind die Werte von $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ hier erheblich größer. Dies manifestiert die bereits in Kapitel 3.2 erwähnte Tatsache eines maximalen Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre im Bereich des sehr prägnanten subtropischen Jetstreams. Die Verhältnisse in der unteren Troposphäre sind aufgrund der

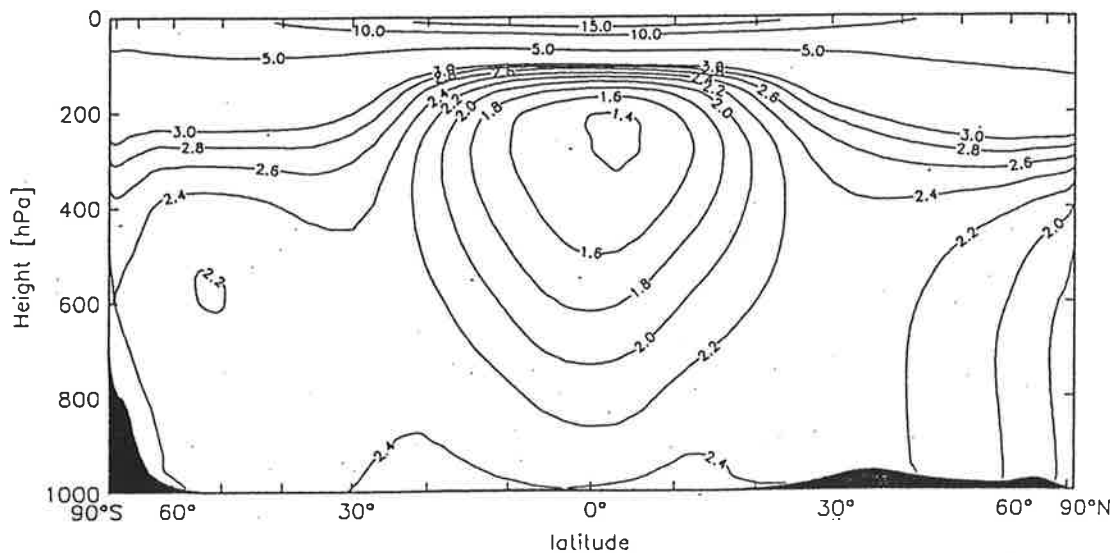


Abb.39 Meridionalschnitt des zonal und jährlich gemittelten Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$.

Mischungs- und Auswaschprozesse dagegen sehr homogen.

In Abbildung 40 ist die horizontale Verteilung des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ in der 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe) im Jahresmittel dargestellt. In zonaler Richtung variiert das Verhältnis, insbesondere im Bereich der mittleren Breiten, nur sehr wenig, d.h. der Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre beschränkt sich nicht nur auf bestimmte geographische Längen.

Von Interesse ist ferner die bereits einleitend in Kapitel 3.2 erwähnte jahreszeitliche Variabilität des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre. Abbildung 41 zeigt hierzu Meridionalschnitte des zonal und monatlich gemittelten Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ für den Januar, April, Juli und Oktober.

Das durch die nördliche Verschiebung der ITCZ, des subtropischen und polaren Jetstreams bei gleichzeitigem Anheben der Tropopause (siehe 3. Kapitel) verursachte, charakteristische Frühjahrsmaximum dieses Einmischens stratosphärischer Luftmassen kommt bei Betrachtung des Aprils und des Oktobers deutlich zum Vorschein. Der nordhemisphärische Frühling (April) ist durch hohe bodennahe Werte der Größe $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ (2.2 bis 2.8) charakterisiert, während im Herbst (Oktober) wesentlich kleinere Werte (1.6 bis 1.8) anzutreffen sind. Am intensivsten ist die jahreszeitliche Variabilität im Bereich des sehr prägnanten subtropischen Jetstreams um 30°N. Der polare Jetstream ist wesentlich schwächer und macht sich deshalb nicht so deutlich in diesen Resultaten bemerkbar. In der Südhemisphäre ist dieses Phänomen weniger stark ausgeprägt und für einen großen

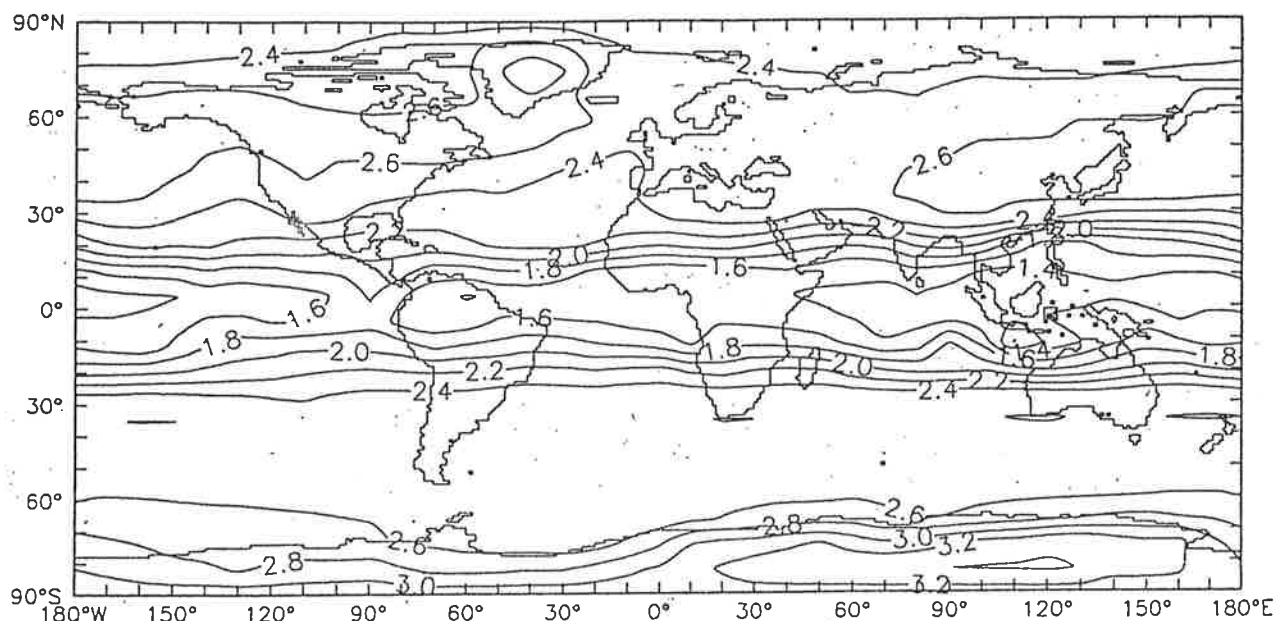


Abb.40 Horizontale Verteilung des jährlich gemittelten Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ in der 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe).

Bereich von 10°S bis ca. 60°S gleich intensiv.

Abbildung 42 verdeutlicht ebenfalls diesen Effekt. Dargestellt ist die Abhängigkeit des monatlich und zonal gemittelten Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ von der geographischen Breite für die unterste (unteres Bild) sowie die 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe ; oberes Bild).

Markant zeigen sich in der untersten Modellschicht die Frühjahrsmaxima und Herbstminima in beiden Hemisphären. Abweichend von diesem Muster existieren südlich von 60°S zwei Maximalwerte, einer im Juni (Winter) und einer im Oktober (Frühling). Dieser Verlauf ist völlig konträr zum an der Georg-von-Neumayer Station in der Antarktis gemessenen $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ - Jahresgang, wie unten noch gezeigt wird.

Bei Betrachtung der 11. Modellschicht (oberes Bild) fällt auf, daß das Maximum in der Nordhemisphäre in höheren Breiten (50 bis 80°N) einen Monat früher als in Bodennähe auftaucht. Hier im Bereich der Frontalzone von der Stratosphäre in die Troposphäre eingemischte Isotope benötigen etwa einen Monat, ehe sie von der oberen Troposphäre die unteren Atmosphärenschichten erreichen. Dies bestätigen die Beobachtungsanalysen von Raisbeck et. al. (1981).

Die Werte von $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ sind in mittleren und hohen Breiten in der 11. Modellschicht größer als in der untersten, da die hier verstärkt in die Troposphäre eindringenden ^{10}Be - reichen stratosphärischen Luftmassen noch nicht von Niederschlagsereignissen beeinflusst

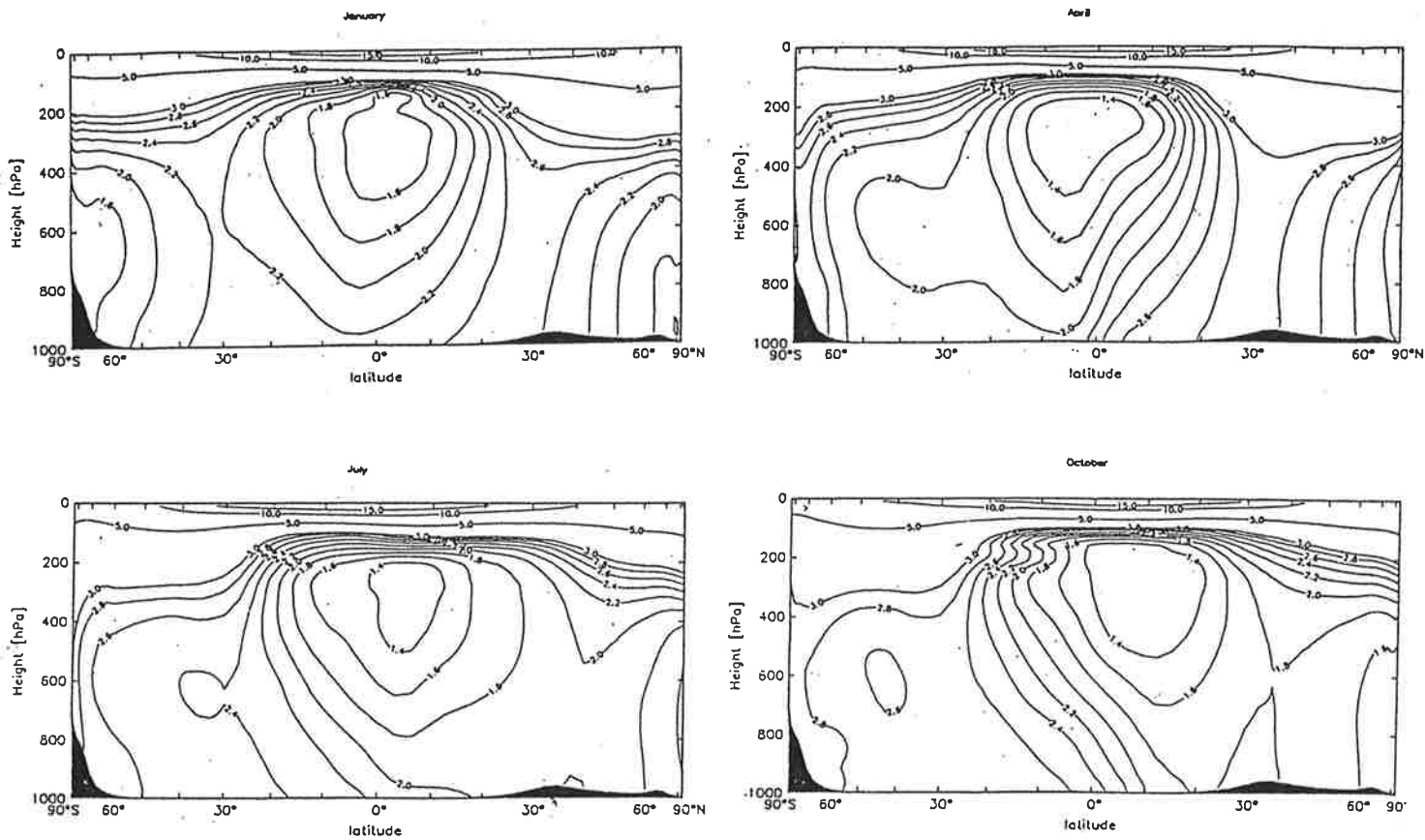


Abb.41 Meridionalschnitte des zonal und monatlich gemittelten Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ für den Januar, April, Juli und Oktober.

werden. In den Tropen und Subtropen liegen die Verhältnisse umgekehrt, d.h. es findet ein Transport von in mittleren Breiten eingemischten stratosphärischen Luftmassen in Richtung der Subtropen statt. Im Bereich der ITCZ setzen dann verstärkt Auswaschprozesse ein, wie es sich im scharfen tropischen $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ - Gradienten in der untersten Modellschicht manifestiert.

Im folgenden werden die Resultate an einzelnen Meßstationen vorgestellt und die für einen Jahresgang verantwortlichen Prozesse untersucht. Der modellierte Niederschlag wird, sofern es möglich ist, mit dem direkt an der Station oder an einer benachbarten Station im Jahre 1990 beobachteten Niederschlag verglichen. Sind keine entsprechenden Daten vorhanden, werden die Klimatologien von Legates und Willmott (1990) bzw. Jaeger (1976) herangezogen.

Abbildung 43 zeigt mit Barrow in Alaska eine Station der hohen nördlichen Breiten. Links wird der Jahresgang der modellierten ^7Be - Konzentration (durchgezogene Kurve) mit den Beobachtungen verglichen. Das mittlere Bild zeigt den modellierten Jahresgang

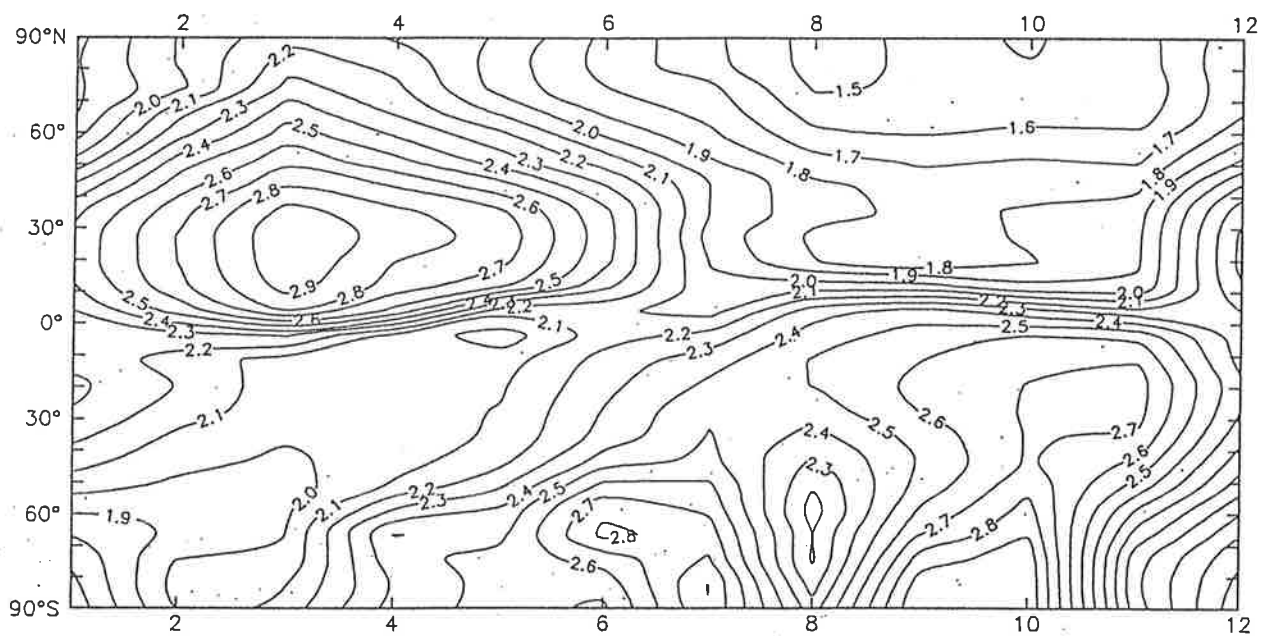
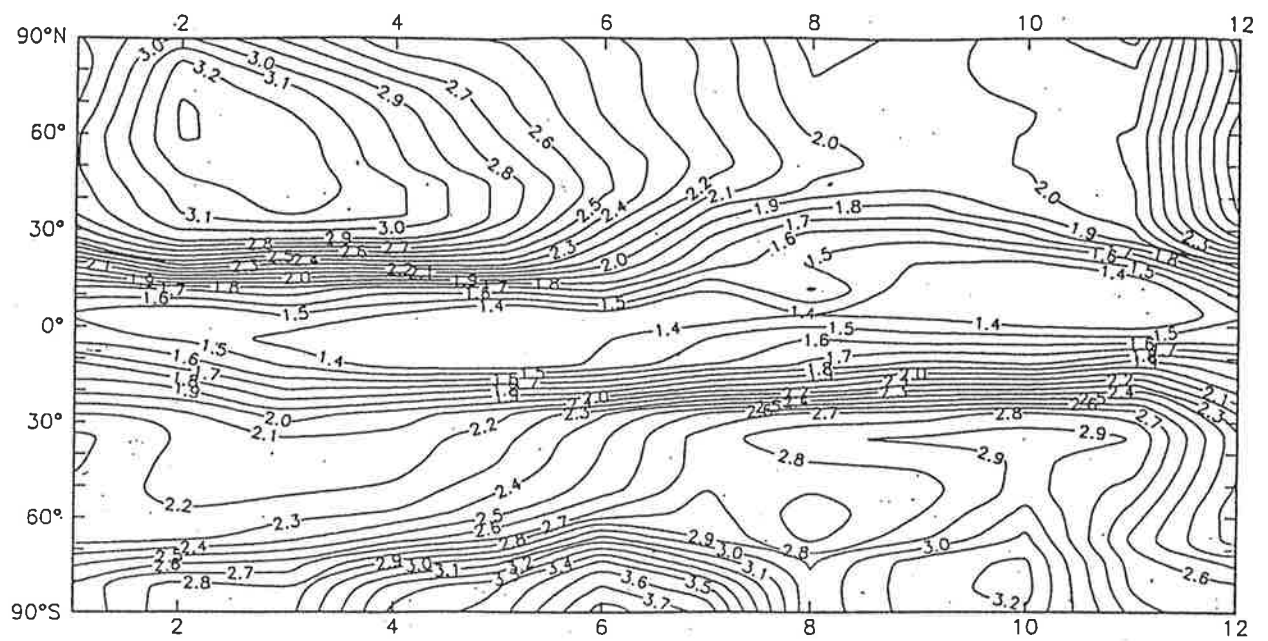


Abb.42 Abhängigkeit des monatlich und zonal gemittelten Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ von der geographischen Breite für die unterste (unteres Bild) und die 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe, oberes Bild).

des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ an diesem Ort. Rechts erfolgt ein Vergleich der modellierten mit der beobachteten Niederschlagsrate.

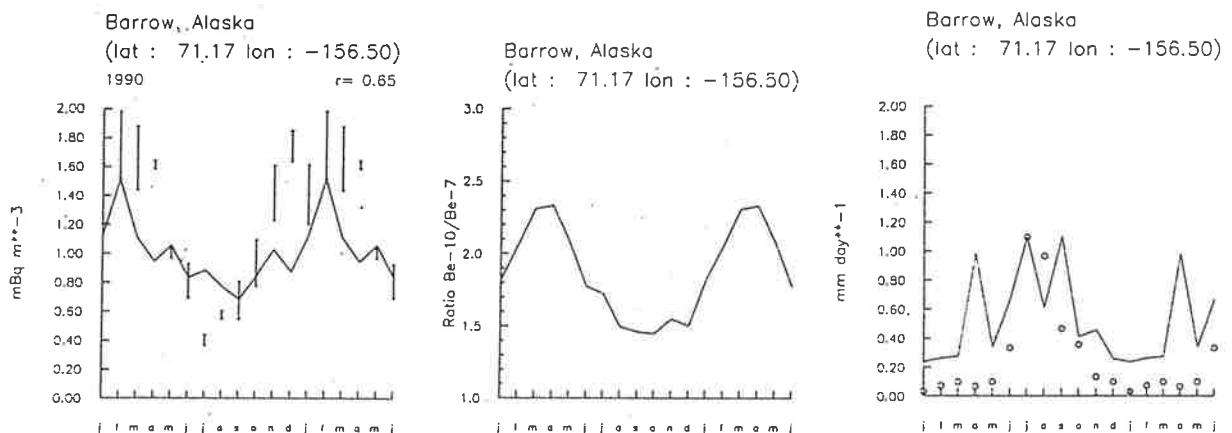


Abb.43 Vergleich zwischen Beobachtungen und Modellergebnissen an der Station Barrow in Alaska. Das linke Bild zeigt den Jahresgang der modellierten, bodennahen ^{7}Be - Konzentration [mBq m^{-3}] (durchgezogene Kurve) im Vergleich mit Beobachtungen. Die Fehlerbalken an den Beobachtungspunkten stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. Das mittlere Bild zeigt den modellierten Jahresgang des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$. Im rechten Bild erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die Kreise stellen die beobachtete Niederschlagsrate im Jahre 1990 dar.

Die ^{7}Be - Konzentrationsbeobachtungen (linkes Bild) weisen einen Jahresgang mit winterlichen Maxima und sommerlichen Minima auf, der vom Modell zu schwach wiedergegeben wird. Dieses Modelldefizit wurde in Kapitel 5.2.4 (Abbildung 38) bereits erwähnt, und auf einen zu geringen winterlichen advektiven Aerosoltransport aus den mittleren Breiten in die Polarregion zurückgeführt (arktischer Dunst, Rahn (1981)). Das modellierte Konzentrationsverhältnis $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ zeigt einen Jahresgang mit einem Maximum im April und einem Minimum im Oktober. Gegenüber den Extrema in der ^{7}Be - Konzentration gibt es also eine Verzögerung um ein bis zwei Monate. Dieses in mittleren Breiten aus der Stratosphäre eingemischte ^{7}Be und ^{10}Be wird in die Arktis transportiert.

Abbildung 44 zeigt mit Rexburg eine kontinentale, in mittleren Breiten gelegene, Station. Die modellierte ^{7}Be - Konzentration zeigt einen deutlichen Jahresgang mit einem sommerlichen Maximalwert im August und einem Minimum im Januar. Die Beobachtungen weisen einen analogen Verlauf auf, sind jedoch systematisch höher als die Modellwerte, was seine Ursache allerdings in der deutlich zu hohen Modellniederschlags-

rate haben könnte (rechtes Bild). Eine kontinentale Station wie Rexburg wird allerdings primär vom verstärkten vertikalen, troposphärischen Massenaustausch im Sommer beeinflusst, welcher für die höheren bodennahen ^7Be - Konzentrationen verantwortlich ist (Kapitel 3.2). Das kleinere Maximum der ^7Be - Konzentration im März scheint jedoch auf einen stratosphärischen Ursprung des ^7Be hinzudeuten (siehe mittleres Bild).

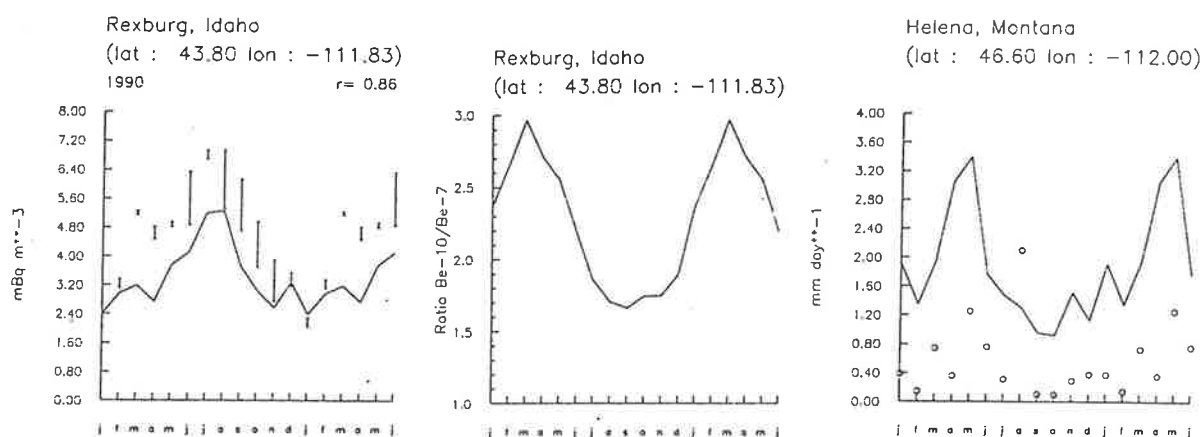


Abb.44 Vergleich zwischen Beobachtungen und Modellergebnissen an der Station Rexburg (USA). Das linke Bild zeigt den Jahresgang der modellierten, bodennahen ^7Be - Konzentration [mBq m^{-3}] (durchgezogene Kurve) im Vergleich mit Beobachtungen. Die Fehlerbalken an den Beobachtungspunkten stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. Das mittlere Bild zeigt den modellierten Jahresgang des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$. Im rechten Bild erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an einem der Meßstation nahegelegenen Ort. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die Kreise stellen die beobachtete Niederschlagsrate im Jahre 1990 dar.

Abbildung 45 zeigt mit Miami eine subtropische Station der nördlichen Hemisphäre, für die Feely et. al. (1988) eine inverse Proportionalität zwischen Niederschlagsrate und Konzentration errechnen.

Wie ein Vergleich des linken (^7Be - Konzentration) und rechten Bildes (Niederschlagsrate) zeigt, verlaufen beide Größen auch im Modell umgekehrt proportional zueinander (Korrelationskoeffizient von -0.83). Allerdings ist die Amplitude des Jahresgangs der modellierten ^7Be - Konzentration wesentlich größer als beobachtet, was jedoch nicht auf eine zu große Amplitude in der modellierten Niederschlagssaisonalität zurückzuführen ist. Das Transportmodell unterschätzt die Niederschlagsmenge im Frühling und Sommer, wie das rechte Bild der Abbildung 45 zeigt. Der Jahresgang im modellierten Konzentra-

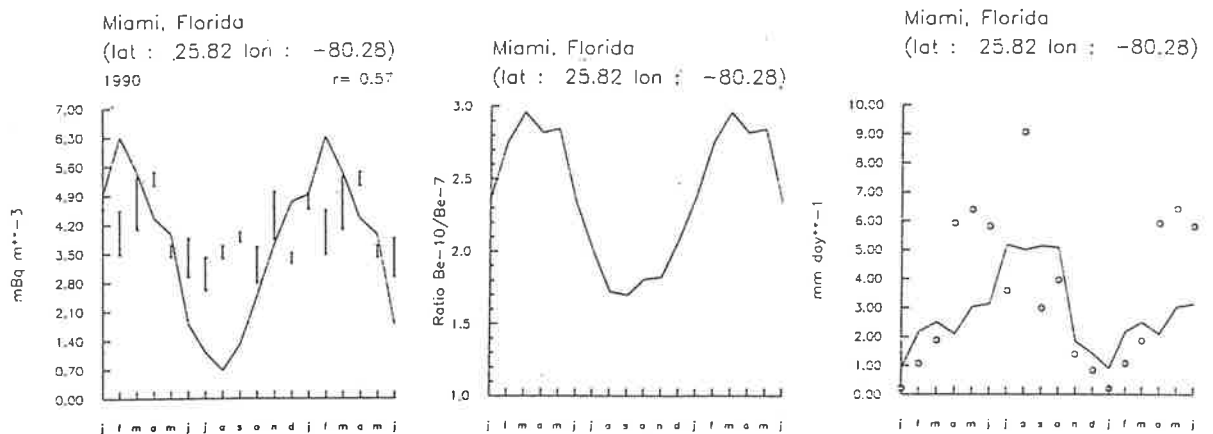


Abb.45 Vergleich zwischen Beobachtungen und Modellergebnissen an der Station Miami (USA). Das linke Bild zeigt den Jahresgang der modellierten, bodennahen ^7Be - Konzentration [mBq m^{-3}] (durchgezogene Kurve) im Vergleich mit Beobachtungen. Die Fehlerbalken an den Beobachtungspunkten stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. Das mittlere Bild zeigt den modellierten Jahresgang des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$. Im rechten Bild erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die Kreise stellen die beobachtete Niederschlagsrate im Jahre 1990 dar.

tionsverhältnis $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ verläuft analog zur ^7Be - Konzentration (Korrelationskoeffizient von 0.72). Die Überschätzung der ^7Be - Saisonalität im Modell kann ihre Ursache in einer Überschätzung des Jahresgangs von $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ haben. Wie oben in Zusammenhang mit Abbildung 42 angedeutet, findet ein horizontaler Transport von, in mittleren Breiten eingemischter, stratosphärischer Luftmassen in Richtung Subtropen statt, dessen Saisonalität möglicherweise überschätzt wird.

Abbildung 46 zeigt mit Guayaquil in Ecuador eine tropische Station in der südlichen Hemisphäre. Feely et. al. (1988) konstatieren für viele in den Tropen gelegene Stationen eine inverse Proportionalität zwischen der ^7Be - Konzentration und der Niederschlagsrate, nicht jedoch für die hier gezeigte Station Guayaquil.

Wie die ^7Be - Konzentrationsbeobachtungen (linkes Bild) zeigen, treten Minimalwerte in der Mitte des Jahres auf. Der Verlauf der Niederschlagsrate ist ähnlich. Etwa 90% des Jahresniederschlags fällt von Januar bis April (Feely et. al., 1988). Dieser Gleichklang deutet darauf hin, daß der Niederschlag nicht primär für die ^7Be - Konzentration verantwortlich ist.

Das Transportmodell prognostiziert einen genau entgegengesetzten Konzentrations-

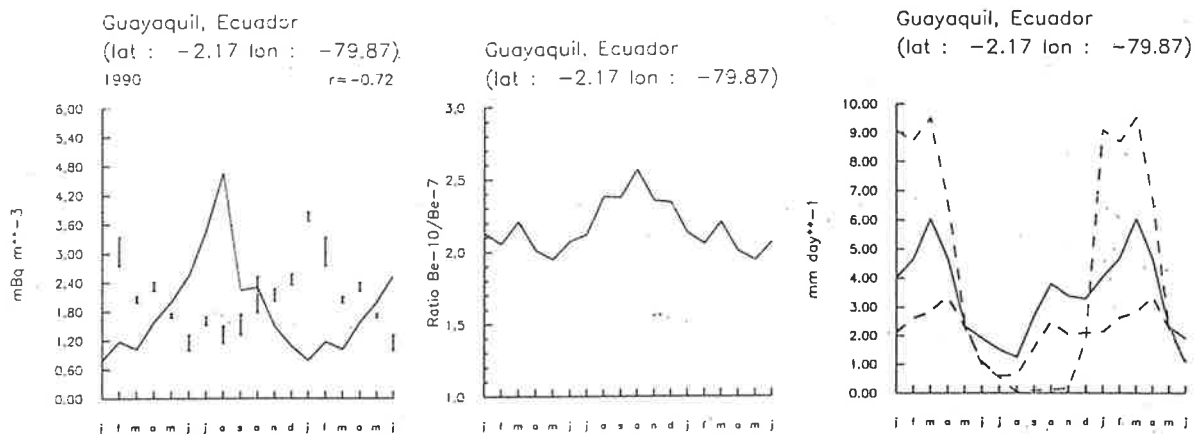


Abb.46 Vergleich zwischen Beobachtungen und Modellergebnissen an der Station Guayaquil (Ecuador). Das linke Bild zeigt den Jahresgang der modellierten, bodennahen ${}^7\text{Be}$ - Konzentration [mBq m^{-3}] (durchgezogene Kurve) im Vergleich mit Beobachtungen. Die Fehlerbalken an den Beobachtungspunkten stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. Das mittlere Bild zeigt den modellierten Jahresgang des Konzentrationsverhältnisses ${}^{10}\text{Be}/{}^7\text{Be}$. Im rechten Bild erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die gestrichelte die Klimatologie nach Legates (Legates und Willmott, 1990) und die fett gestrichelte die von Jaeger (Jaeger, 1976).

verlauf, der jedoch invers proportional zum Niederschlagsverlauf ist (Korrelationskoeffizient: -0.79). Betrachtet man ferner den Verlauf des Konzentrationsverhältnisses ${}^{10}\text{Be}/{}^7\text{Be}$ (Mitte) so ist zu erkennen, daß das Maximum der ${}^7\text{Be}$ - Konzentration in etwa mit dem Maximum des Verhältnisses ${}^{10}\text{Be}/{}^7\text{Be}$ zusammenfällt, d.h. das ${}^7\text{Be}$ dürfte zum Teil stratosphärischen Ursprungs sein.

An dieser Station spielen laut Feely et. al. (1988) in erheblichem Maße lokale Effekte (die Station ist zu einem Großteil von Mangrovensümpfen umgeben) eine Rolle. Das Transportmodell kann diese Effekte nicht auflösen und prognostiziert einen ${}^7\text{Be}$ - Jahresgang der primär von der Niederschlagssaisonalität beeinflusst wird.

Abbildung 47 zeigt mit Lower Hutt auf Neuseeland eine Station in den mittleren Breiten der Südhemisphäre. Der Jahresgang der ${}^7\text{Be}$ - Konzentration wird hauptsächlich vom Jahresgang im Niederschlag beeinflusst (Korrelationskoeffizient: -0.53). Maximale Niederschlagswerte im südhemisphärischen Winter (Juni bis August) entsprechen Minima in der Konzentration und umgekehrt. Ferner sorgt ein verstärkter vertikaler, troposphärischer Massenaustausch im Sommer für ein erhöhtes Konzentrationsniveau. Der

Verlauf des $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ - Konzentrationsverhältnisses zeigt das oben in Abbildung 42 bereits erwähnte doppelte Maximum im Juli und Oktober. Diese Struktur ist konträr zum ^{7}Be - Konzentrationsverlauf (Korrelationskoeffizient : -0.05).

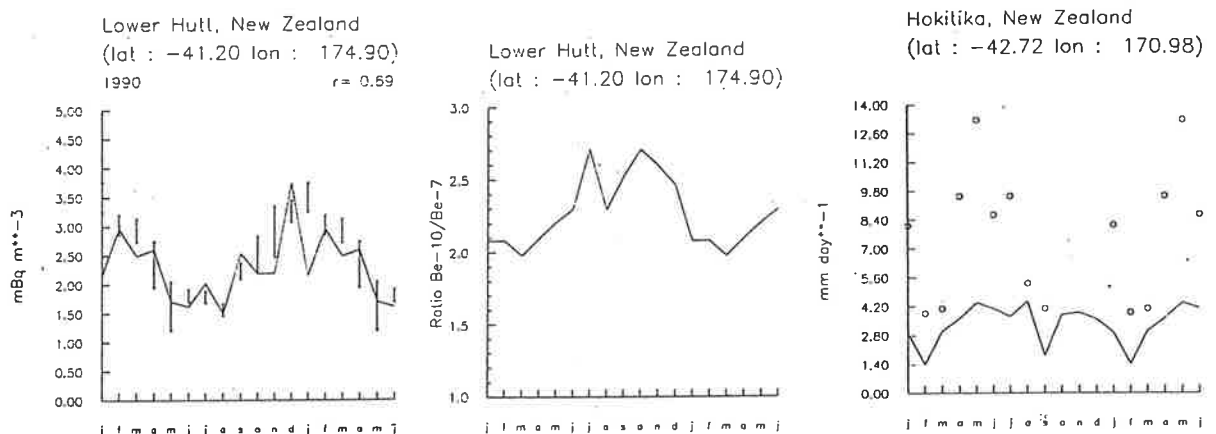


Abb.47 Vergleich zwischen Beobachtungen und Modellergebnissen an der Station Lower Hutt (Neuseeland). Das linke Bild zeigt den Jahrgang der modellierten, bodennahen ^{7}Be - Konzentration [mBq m^{-3}] (durchgezogene Kurve) im Vergleich mit Beobachtungen. Die Fehlerbalken an den Beobachtungspunkten stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten. Das mittlere Bild zeigt den modellierten Jahrgang des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$. Im rechten Bild erfolgt ein Vergleich der Niederschlagsrate an einem der Meßstation nahegelegenen Ort. Die durchgezogene Kurve bezeichnet die vom Modell benutzte ECMWF - Vorhersage des Jahres 1990, die Kreise stellen die beobachtete Niederschlagsrate im Jahre 1990 dar.

Die in Abbildung 48 gezeigte Georg-von-Neumayer Station in der Antarktis ist die einzige, für die zum Zeitpunkt des Erstellens dieser Arbeit ein vollständiger Datensatz des $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ - Konzentrationsverhältnisses vorlag.

Während die Beobachtungen ein Maximum von $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ im südhemisphärischen Sommer (Dezember bis Februar) sowie ein Minimum im Winter (Juli bis September) zeigen, prognostiziert das Modell zwei Maxima, eines im frühen Winter (Juni) und eines im Frühling (Oktober), wie oben in Abbildung 42 bereits gezeigt.

Im Transportmodell kristallisiert sich also eine Symmetrie zwischen den beiden Hemisphären bezüglich des Frühjahrsmaximums heraus, die für die Georg-von-Neumayer Station aber nicht beobachtet wird. Für eine nähere Analyse der Ursachen, zum Beispiel ob Defizite in den ECMWF - Analysen im Bereich der Antarktis existieren, ist es erforderlich, wesentlich mehr ^{10}Be - Meßreihen zur Verfügung zu haben, um die Modellresultate

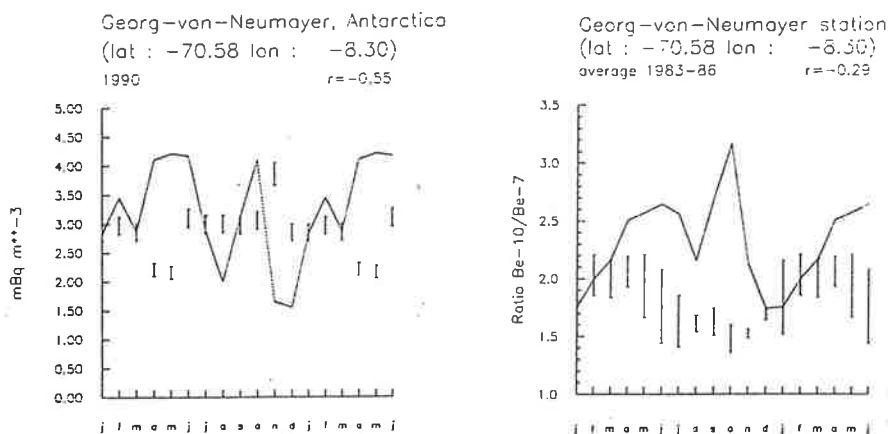


Abb.48 Vergleich zwischen Beobachtungen und Modellergebnissen an der Georg-von-Neumayer Station in der Antarktis. Das linke Bild zeigt den Jahresgang der modellierten, bodennahen ^7Be - Konzentration [mBq m^{-3}] (durchgezogene Kurve) im Vergleich mit Beobachtungen. Das rechte Bild zeigt den modellierten Jahresgang des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ (durchgezogene Kurve) im Vergleich mit den von 1983 bis 1986 gemittelten Beobachtungen. Die Fehlerbalken an den Beobachtungspunkten stellen zwei Standardabweichungen dar. r bezeichnet den Korrelationskoeffizienten.

verifizieren zu können.

5.2.6 Das Konzentrationsverhältnis Beryllium-7 zu Blei-210 als Indikator troposphärischer Mischungsprozesse

Todd et. al. (1989) haben über eine Periode von 29 Monaten die nasse und gesamte Deposition von ^7Be und ^{210}Pb in Norfolk im US-Bundesstaat Virginia gemessen. Hierbei ergab sich eine lineare Beziehung zwischen den ^{210}Pb und ^7Be - Depositionswerten mit einer hohen positiven Korrelation, insbesondere für die nasse Deposition. Das Konzentrationsverhältnis von $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ im Niederschlag variierte zwischen 6.4 und 27.2, mit einem Mittelwert von 15. Eine jahreszeitliche Variation dieser Größe wurde nicht festgestellt.

Todd et. al. (1989) führen dies darauf zurück, daß die troposphärischen Verweilzeiten von ^7Be und ^{210}Pb lang und die troposphärischen Mischungsprozesse stark genug sind, so daß etwaige Differenzen in den Depositionscharakteristika überdeckt werden. Die Auswaschprozesse haben somit einen größeren Einfluß auf zeitliche Veränderungen in der Deposition als die Quellprozesse. Den Autoren erscheint es daher zweifelhaft, daß es möglich ist, ^7Be und ^{210}Pb als zwei voneinander unabhängige Tracer zu benutzen ; den einen (^7Be) für Substanzen mit stratosphärischem Ursprung, den anderen (^{210}Pb) für

solche mit troposphärischer Quelle.

Die Modellresultate und im Prinzip auch alle hier zur Verfügung stehenden Beobachtungen bestätigen das Fehlen eines Jahresgangs im ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsverhältnis. Abbildung 49 zeigt die Abhängigkeit des monatlich und zonal gemittelten ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsverhältnisses von der geographischen Breite für die unterste (mittleres Bild) und 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe ; oberes Bild). Zusätzlich zeigt das untere Bild das aus den Beobachtungen gewonnene Resultat. Die Meßwerte aller Stationen innerhalb eines 10° breiten zonalen Gürtels wurden hierbei gemittelt und als repräsentativ für das entsprechende zonale Band angesehen.

Eine Saisonalität ist weder im untersten Modellniveau noch in der oberen Troposphäre feststellbar. Deutlich erkennbar ist ein meridionaler bzw. vertikaler Gradient. Die kontinuierliche Zunahme der Größe ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ vom Nord- zum Südpol beruht auf einer Abnahme der ${}^{210}\text{Pb}$ - Konzentration. Insbesondere in den unteren Schichten der Südhalbkugel macht sich dies durch eine Verstärkung des Gradienten bemerkbar (mittleres Bild), während in der oberen Troposphäre der Südhalbkugel (oberes Bild) die meridionale ${}^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsabnahme geringer ist (siehe Kapitel 5.1). Die vertikale Zunahme des Konzentrationsverhältnisses ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ beruht auf der Quellverteilung. Die ${}^7\text{Be}$ - Produktionsrate nimmt mit der Höhe zu, während gleichzeitig die Masse der aus der Grenzschicht nach oben beförderten ${}^{210}\text{Pb}$ - Aerosole abnimmt.

Auch die Bodenbeobachtungen (unteres Bild in Abbildung 49) weisen in den Subtropen bzw. mittleren Breiten keine Saisonalität des Konzentrationsverhältnisses ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ auf. Lediglich in den Tropen zeigt sich ein Jahresgang mit Minimalwerten im Frühling und Sommer (Mai bis August) und Maximalwerten im Winter (Oktober bis Februar). Ferner sind die tropischen Werte des Konzentrationsverhältnisses ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ in den Beobachtungen kleiner als im Transportmodell, während in den Subtropen und mittleren Breiten eine gute Übereinstimmung herrscht. Kleine Werte von ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ bedeuten hohe ${}^{210}\text{Pb}$ bzw. niedrige ${}^7\text{Be}$ - Konzentrationen, d.h. daß im Transportmodell die vertikalen Mischungsprozesse in den Tropen intensiver sind als beobachtet. Dies könnte auf zu kräftige subskalige, vertikale Massenflüsse hindeuten (siehe Abschnitt 4.4).

Abbildung 50 zeigt Meridionalschnitte des monatlich und zonal gemittelten ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsverhältnisses für die Monate Januar und Juli. Neben den oben bereits erwähnten meridionalen und vertikalen Gradienten erkennt man eine leichte Abnahme der Größe von ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ im Bereich der mittleren nordhemisphärischen Troposphäre vom Winter (Januar) zum Sommer (Juli). Ein verstärkter vertikaler Massenaustausch im Sommer, insbesondere über den Kontinenten, sorgt für eine Intensivierung des Transports von ${}^{210}\text{Pb}$ - Aerosolen aus der Grenzschicht in die freie Atmosphäre und umgekehrt von ${}^7\text{Be}$ - Aerosolen aus der oberen Troposphäre in die mittleren und unteren Atmosphärenschichten. Der ${}^{210}\text{Pb}$ - Aerosoltransport bewirkt eine Verkleinerung des

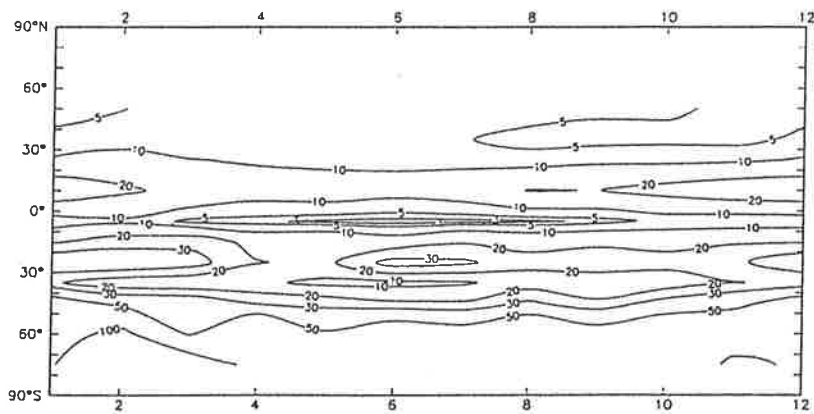
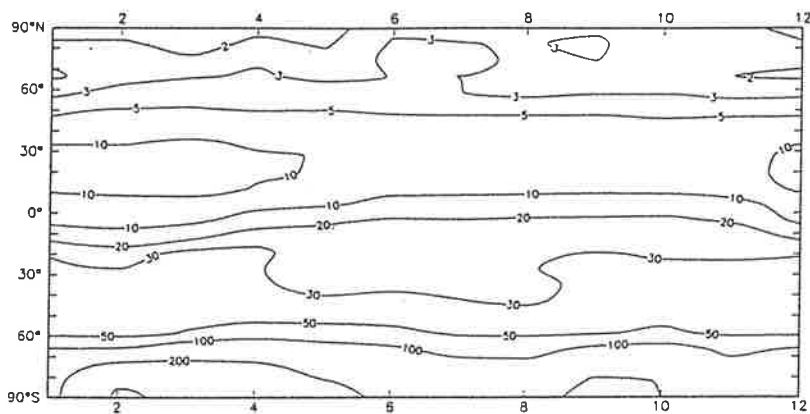
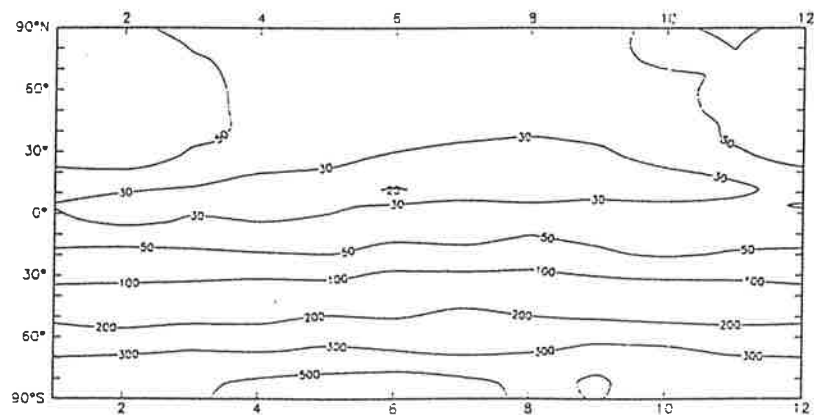


Abb.49 Abhängigkeit des monatlich und zonal gemittelten $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsverhältnisses von der geographischen Breite für die unterste (mittleres Bild) und 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe ; oberes Bild). Das untere Bild zeigt das aus den Beobachtungen gewonnene Resultat. Die Meßwerte aller Stationen innerhalb eines 10° breiten zonalen Gürtels wurden hierbei gemittelt und als repräsentativ für das entsprechende zonale Band angesehen.

$^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsverhältnisses in der mittleren Troposphäre, der ^7Be - Aerosoltransport eine Vergrößerung. Die Nettobilanz beider Transporte führt zu einer Verminderung des $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ - Verhältnisses, d.h. der ^{210}Pb - Transport aus der Grenzschicht in die mittlere Troposphäre ist intensiver als der ^7Be - Transport aus der oberen in die mittlere Troposphäre.

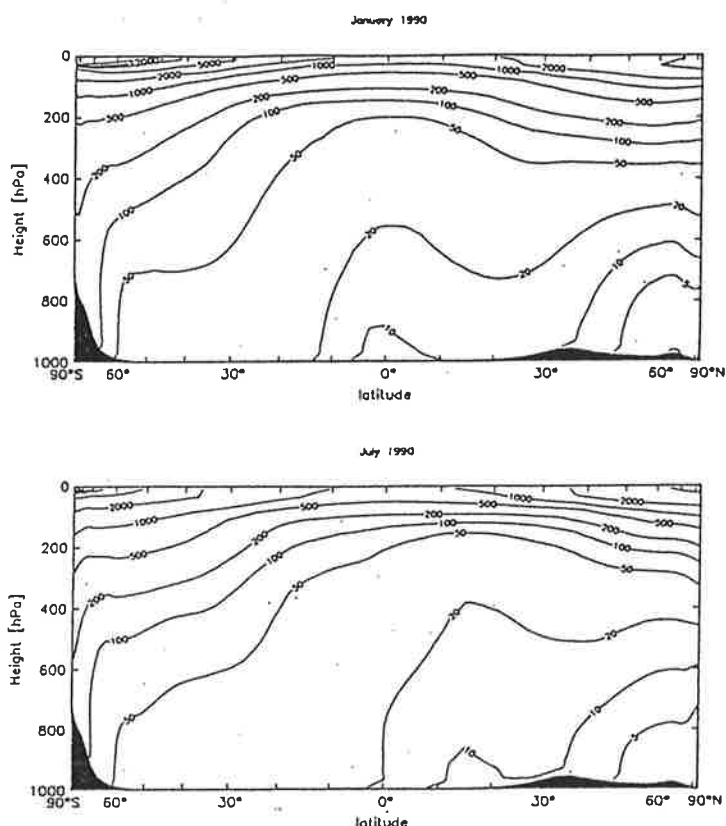


Abb.50 Meridionalschnitte des monatlich und zonal gemittelten $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsverhältnisses für die Monate Januar und Juli im Transportmodell.

Abbildung 51 zeigt die horizontale Verteilung des jährlich gemittelten $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsverhältnisses in der untersten (unteres Bild) und 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe ; oberes Bild).

Das Verhältnis ist zonal homogen. Lediglich im Bereich der ITCZ über Südamerika, Afrika und Südostasien fallen lokale Minima auf, die mit Werten von unter 2 denen in der Arktis entsprechen und eine Abweichung vom allgemeinen Nord-Süd-Gradienten darstellen (unteres Bild). Auch in der oberen Troposphäre (oberes Bild) sind diese Minimalwerte noch deutlich registrierbar. Die bodennahen ^{210}Pb - Konzentrationen sind in diesem Bereich maximal (siehe Abbildung 14, Kapitel 5.1.3) und verursachen die kleinen Werte des

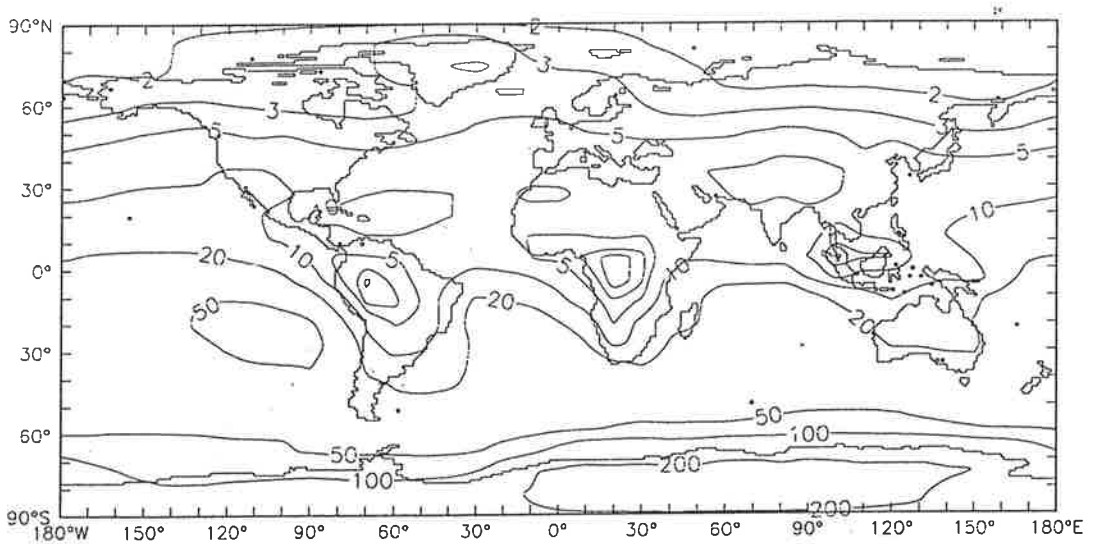
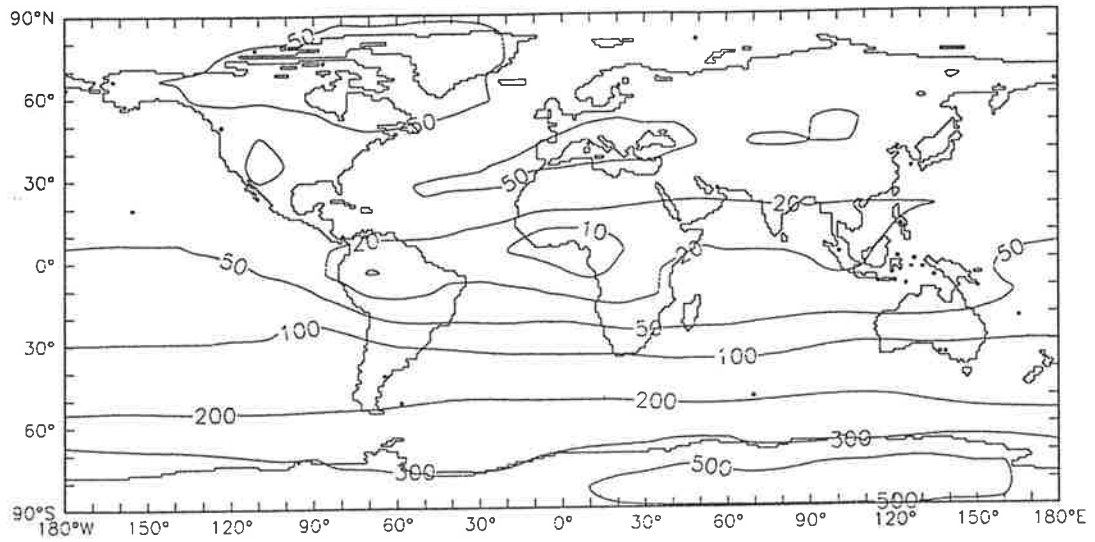


Abb.51 Horizontale Verteilung des jährlich gemittelten ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsverhältnisses in der untersten (unteres Bild) und 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe ; oberes Bild).

Verhältnisses ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$. Durch den intensiven Vertikaltransport von ${}^{210}\text{Pb}$ - Aerosolen bzw. des Vorgängers ${}^{222}\text{Rn}$ in tropischen Wolkenclustern (Lambert et. al., 1990a) wird dann das ${}^{210}\text{Pb}$ - Konzentrationsniveau in der oberen Troposphäre bzw. der Stratosphäre erhöht und gleichzeitig das Konzentrationsverhältnis ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ vermindert, wie aus dem oberen Bild in Abbildung 51 ersichtlich ist.

5.3 Künstliche Radioaktivität (Strontium-90)

Simulationen des stratosphärischen ^{90}Sr können Erkenntnisse bezüglich des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre im Transportmodell liefern. Wie in Abschnitt 3.3 erwähnt, eignet sich zu diesem Zweck am besten der von größeren Atombombenversuchen freie Zeitraum von 1963 bis 1966 (Staley, 1982). Das Modell wird mit einer aus stratosphärischen Messungen des Januar 1963 abgeleiteten Konzentrationsverteilung (siehe Abschnitt 5.3.1) initialisiert und simuliert vier Jahre lang den Abbau und die Verteilung dieser Tracermasse. Eine gewisse Einschränkung bei der Interpretation der Resultate ergibt sich aus der Tatsache, daß keine ECMWF - Massenfluß- und Niederschlagsfelder dieser Jahre existieren, und folglich, wie schon bei den obigen Simulationen, die ECMWF - Daten des Jahres 1990 benutzt werden müssen. Diese Tatsache kann unter Umständen zu Diskrepanzen an bestimmten Orten führen, jedoch sollten die allgemeinen Transportcharakteristika des Modells davon nicht berührt werden.

Nach einer kurzen Vorstellung des sehr umfangreichen Datensatzes von Depositions- und Konzentrationsbeobachtungen (Abschnitt 5.3.2) wenden sich die folgenden Kapitel den Transporteigenschaften des Modells zu. In Abschnitt 5.3.3 wird die zeitliche Entwicklung der stratosphärischen Tracermasse untersucht. Hieraus lassen sich typische Zeitskalen, z.B. für den Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre sowie den interhemisphärischen, stratosphärischen Massentransfer ableiten. Bei den troposphärischen ^{90}Sr - Transportprozessen (Kapitel 5.3.4) interessieren insbesondere die Faktoren, welche zum Frühjahrsmaximum der Konzentration in den niederen und mittleren Breiten führen (Abschnitt 5.3.5). Im letzten Kapitel wird die Deposition an einzelnen Meßstationen betrachtet und die für die Saisonalität verantwortlichen Prozesse untersucht.

5.3.1 Die Anfangskonzentrationsverteilung

Im Juni 1961 begann das von der U.S. Atomenergiebehörde initiierte Projekt "Stardust", welches auf monatlicher Basis Konzentrationsdaten künstlicher und natürlicher, radioaktiver Tracer in der Stratosphäre und Troposphäre gesammelt hat (Health and Safety Laboratory reports : HASL-153, 168, 169, 173, 174, 176, 181, 182, 183). Mitte 1967 wurde es vom Projekt "Airstream" abgelöst, welches vierteljährlich Konzentrationsdaten geliefert hat (HASL-193). Das Ziel dieser Projekte war es u.a. die stratosphärische Masse der künstlichen Isotope zu bestimmen. Zur Messung der stratosphärischen Konzentrationen wurden verschiedene Meßflugzeuge eingesetzt.

Zu Beginn des Jahres 1963 existierten die folgenden Meßkorridore : Von $70^{\circ}\text{N}/143^{\circ}\text{W}$ bis $49^{\circ}\text{N}/123^{\circ}\text{W}$, von $49^{\circ}\text{N}/112^{\circ}\text{W}$ bis $19^{\circ}\text{N}/95^{\circ}\text{W}$, von $20^{\circ}\text{N}/86^{\circ}\text{W}$ bis $10^{\circ}\text{S}/79^{\circ}\text{W}$ und von $15^{\circ}\text{S}/145^{\circ}\text{O}$ bis $37^{\circ}\text{S}/145^{\circ}\text{O}$. Zwischen 70°N und 31°N wurde in Höhen von 39000, 43000, 50000, 55000, 60000, 65000 und 70000 Fuß gemessen, zwischen 31°N und 37°S bei 55000, 60000, 65000 und 70000 Fuß. Ferner wurden in unregelmäßigen Abständen

Proben in 20000, 25000, 30000 und 35000 Fuß genommen (Health and Safety Laboratory report HASL-168). Aus diesen im Laufe des Januar 1963, hauptsächlich im Bereich der westlichen Hemisphäre, gewonnenen Daten muß nun eine Anfangskonzentrationsverteilung des ^{90}Sr zur Initialisierung des Transportmodells gefunden werden. Das Verfahren sei im folgenden kurz skizziert.

Alle Einzelmessungen des Januar 1963 werden in einem Koordinatensystem mit der geographischen Breite als Abszisse und der Höhe als Ordinate eingetragen. Eine Längenabhängigkeit wird ignoriert, d.h. es wird angenommen, daß die Zirkulation der Atmosphäre die durch die letzten Nuklearwaffenversuche im Jahre 1962 erzeugten zonalen Inhomogenitäten eliminiert hat (Junge, 1963).

Jede Hemisphäre wird in vier Breitengürtel unterteilt. Diese laufen von 0° bis 15.65° , von 15.65° bis 39.13° , von 39.13° bis 62.61° und von 62.61° bis 90° . Die Wahl dieser zonalen Gürtel orientiert sich an den geographischen Breiten der Gitterboxen des Transportmodells (Heimann und Keeling, 1989). Ein Breitengürtel umfaßt eine gewisse Anzahl von Gitterzellen. Alle Meßwerte in gleicher Höhe innerhalb eines zonalen Bandes werden gemittelt. Jedem Breitengürtel wird ferner eine mittlere Tropopausenhöhe zugeschrieben. Sie reicht von 8.8 km in der Polarregion bis zu 16.3 km in den Tropen (Holton, 1979). Für jedes zonale Band werden die Meßwerte nun an eine parabolische Funktion gefittet. Als Randbedingung wird angenommen, daß ihr Funktionswert und seine erste Ableitung gleich null in Tropopausenhöhe sind, d.h. die troposphärischen Konzentrationen werden beim Modellstart vernachlässigt. Dieser Ansatz erscheint aufgrund einer mittleren troposphärischen Lebensdauer der ^{90}Sr - Aerosole von 30 Tagen (Machta und List, 1959) gerechtfertigt. Die Funktionswerte an den mittleren Höhen der Modellschichten liefern dann eine ^{90}Sr - Anfangskonzentrationsverteilung für das Transportmodell. Die Konzentrationswerte der 18. und 19. Modellschicht werden denen der 17. Modellschicht gleichgesetzt. Diese beiden Modellniveaus liegen oberhalb des Meßbereichs von 20000 bis 70000 Fuß. Da für den Breitengürtel von 62.61°S bis 90°S keine Meßdaten vorliegen, werden die Resultate der Zone von 39.13°S bis 62.61°S entsprechend fortgesetzt.

5.3.2 Der Beobachtungsdatensatz

Eine sehr große Anzahl von Beobachtungen der ^{90}Sr - Deposition und bodennahen Konzentration steht zur Verifizierung des Transportmodells zur Verfügung. Abbildung 52 gibt einen Überblick über die geographische Verteilung der Depositionsmeßstationen, Abbildung 53 zeigt die Orte der Konzentrationsbeobachtungen. Im Falle der Deposition besteht das Meßnetz aus 204 Stationen, die mehr oder weniger kontinuierlich während des Untersuchungszeitraums von 1963 bis 1966 die monatlich bzw. vierteljährlich deponierte ^{90}Sr - Masse ermittelt haben. Monatliche Mittelwerte der ^{90}Sr - Konzentration wurden an insgesamt 33 Stationen gemessen, allerdings nur im Bereich der westlichen

Hemisphäre.

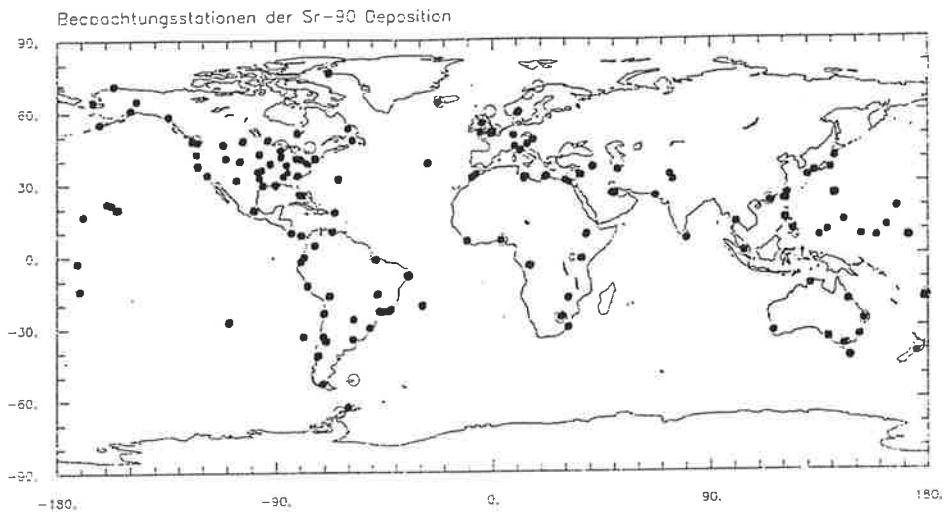


Abb.52 Geographische Verteilung der ^{90}Sr - Depositionsmeßstationen. Schwarze Punkte kennzeichnen Meßorte mit monatlichen, Kreise bezeichnen Meßstationen mit vierteljährlichen Depositionsbeobachtungen.

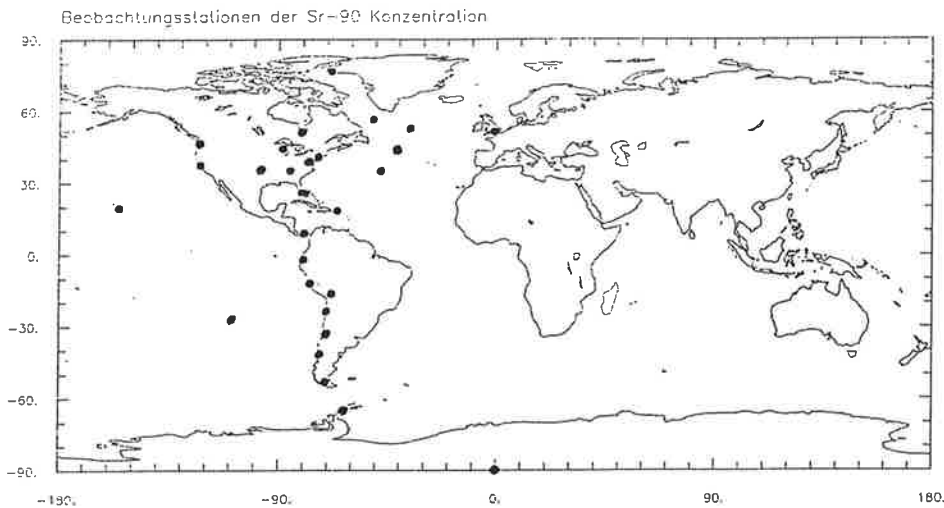


Abb.53 Geographische Verteilung der ^{90}Sr - Konzentrationsmeßstationen. Die Meßorte sind als schwarze Punkte gekennzeichnet.

Die Meßdaten stammen sowohl vom "Environmental Measurements Laboratory (EML), U.S. Department of Energy" in New York, als auch von der "United Kingdom Atomic Energy Authority (UKAEA)" in England. Die Depositionsbeobachtungen des EML liegen von 1954 bis 1976 in monatlicher Auflösung vor (Health and Safety Labora-

tory report HASL-329), danach (bis 1985) in vierteljährlicher (Larsen, 1985 ; Larsen und Juzdan, 1986 ; Juzdan, 1988). Die Depositionsmessungen der UKAEA haben meistens eine vierteljährliche Auflösung (Cambray et. al., 1963, 1964, 1965, 1966, 1967). Die monatlichen Konzentrationsmessungen des EML beginnen 1963 und enden 1985 (Feely et. al., 1981, 1985, 1988). Von der UKAEA existiert nur eine Meßstation (Cambray et. al., 1963, 1964, 1965, 1966, 1967).

5.3.3 Stratosphärische Tracermasse und Lebenszeit

Abbildung 54 zeigt die zeitliche Entwicklung der stratosphärischen ^{90}Sr - Masse im Transportmodell (durchgezogene Linie) über die simulierte Periode von 1963 bis 1966, sowohl für die nördliche (oben) als auch die südliche Hemisphäre (Mitte). Ferner wird die Entwicklung der Tracermassendifferenz zwischen beiden Stratosphären dargestellt (unten). Die Punkte stellen die von Staley (1982) aus Beobachtungen gewonnenen Resultate dar.

Anfang 1963 übersteigt die stratosphärische ^{90}Sr - Masse der Nordhemisphäre die der Südhemisphäre um mehr als eine Größenordnung. Die Tracermasse der nördlichen Stratosphäre nimmt dann im Laufe der vierjährigen Simulation durch Massentransfer in die Troposphäre und in die südliche Stratosphäre, zu einem geringen Ausmaß auch durch radioaktiven Zerfall, kontinuierlich ab.

Die Tracermasse der südlichen Stratosphäre nimmt in den ersten zehn Monaten zunächst noch zu, da der Massentransfer aus der nördlichen Stratosphäre den Verlust an die Troposphäre übersteigt. Danach fällt auch hier die Tracermasse ab. Allerdings zeigt das Modell keinen kontinuierlichen Abfall, sondern jeweils im Winter einen vorübergehenden Anstieg. Das deutet auf einen geringeren winterlichen Massenaustausch mit der Troposphäre hin (siehe unten). Die mit dem oben beschriebenen Verfahren abgeleitete Tracermasse der südlichen Stratosphäre, zu Beginn des Jahres 1963, ist geringer als die von Staley (1982) berechnete. Zu beachten ist in diesem Zusammenhang aber die geringere Meßdichte in der südlichen Hemisphäre (Health and Safety Laboratory report HASL-168) und die daraus resultierenden Unsicherheiten. Sowohl die Analysen als auch das Modell zeigen einen Maximalwert im Oktober 1963. Der darauffolgende Abfall verläuft im Modell langsamer als in den Analysen. Die Differenz der stratosphärischen Tracermassen nimmt kontinuierlich ab (Abbildung 54 unten) und nähert sich gegen Ende des Jahres 1966 dem Wert Null an.

Auch wenn die radioaktiven Zerfallsprodukte nicht homogen in der Stratosphäre und Troposphäre verteilt sind, so kann ein 4 - Box - Modell (Stratosphäre und Troposphäre der Nord- bzw. Südhemisphäre) die Verhältnisse vereinfacht beschreiben. Der Massenaustausch zwischen den Boxen wird proportional der Massendifferenz zwischen ihnen gesetzt (Staley, 1982). Seien B_N und B_S die stratosphärischen Tracermassen der nördlichen bzw. südlichen Hemisphäre, so kann der Massentransfer durch die folgenden zwei Bilanzglei-

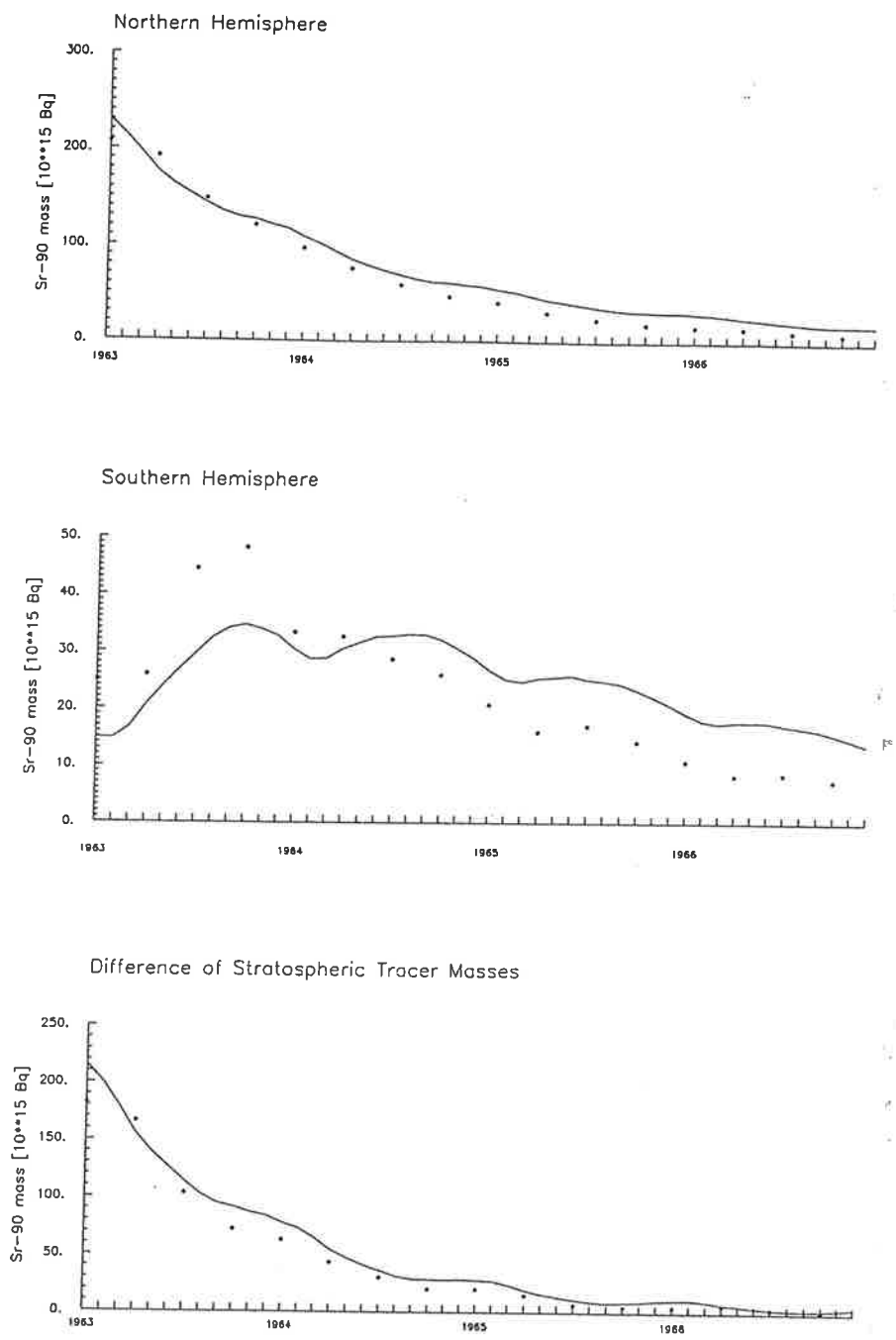


Abb.54 Zeitliche Entwicklung der stratosphärischen ^{90}Sr - Masse im Transportmodell (durchgezogene Linie) über die simulierte Periode von 1963 bis 1966 für die nördliche (oben) und südliche Hemisphäre (Mitte). Das untere Bild zeigt die Entwicklung der Tracermassendifferenz zwischen beiden Stratosphären. Die Punkte kennzeichnen die von Staley (1982) aus Beobachtungen gewonnenen Resultate.

chungen beschrieben werden :

$$\begin{aligned}\frac{dB_N}{dt} &= -\lambda_T(B_N - B_{N_T}) - \lambda_E(B_N - B_S) - \lambda_{Sr}B_N \\ &\approx -(\lambda_T + \lambda_{Sr})B_N - \lambda_E(B_N - B_S)\end{aligned}\quad (9)$$

$$\begin{aligned}\frac{dB_S}{dt} &= -\lambda_T(B_S - B_{S_T}) + \lambda_E(B_N - B_S) - \lambda_{Sr}B_S \\ &\approx -(\lambda_T + \lambda_{Sr})B_S + \lambda_E(B_N - B_S)\end{aligned}\quad (10)$$

Die troposphärischen Tracermassen der Nord- bzw. Südhemisphäre B_{N_T} und B_{S_T} werden gegenüber den stratosphärischen vernachlässigt (Staley, 1982). λ_T , λ_E und λ_{Sr} sind Zerfallskonstanten bezüglich des Transfers durch die Tropopause, über den Äquator bzw. bezüglich des radioaktiven Zerfalls.

Durch Addition bzw. Subtraktion der obigen zwei Gleichungen ist es möglich Aussagen über die Halbwertszeiten bestimmter Transportprozesse zu gewinnen (Staley, 1982). Es ist :

$$T_{1/2*} = \frac{0.693(t - t_0)}{\ln(D_0/D)} \quad (11)$$

$$T_{1/2T} = \frac{0.693T_{1/2Sr}(t - t_0)}{T_{1/2Sr}\ln(B_{T_0}/B_T) - 0.693} \quad (12)$$

$$T_{1/2E} = \frac{2T_{1/2*}T_{1/2T}T_{1/2Sr}}{T_{1/2Sr}T_{1/2T} - T_{1/2*}T_{1/2Sr} - T_{1/2*}T_{1/2T}} \quad (13)$$

mit

- $T_{1/2*}$: Halbwertszeit für den Abbau der stratosphärischen Tracermassendifferenz ($B_N - B_S$)
- $T_{1/2T}$: Halbwertszeit für den Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre
- $T_{1/2E}$: Halbwertszeit für den interhemisphärischen Massentransport zwischen den Stratosphären
- $T_{1/2Sr}$: Radioaktive Halbwertszeit des ^{90}Sr (27.7 Jahre)
- t : Zeit
- t_0 : Anfangszeitpunkt, z.B. Januar 1963
- D : $B_N - B_S$
- B_T : $B_N + B_S$
- D_0, B_{T_0} : D und B_T zum Zeitpunkt t_0

Für verschiedene Anfangszeiten t_0 (Januar 1963, Januar 1964, Januar 1965) und Zeiten

t (ein, zwei und drei Jahre) wurden die Größen $T_{1/2*}$, $T_{1/2T}$ und $T_{1/2E}$, sowohl aus den Analysen von Staley (1982) als auch aus den Resultaten des Transportmodells, berechnet. Tabelle 11 zeigt die im Mittel resultierenden Werte.

	Staley (1982)	Transportmodell
$T_{1/2*}$	0.59	0.69
$T_{1/2T}$	1.0	1.34
$T_{1/2E}$	2.77	2.75

Tab.11 Halbwertszeiten für bestimmte Transportprozesse nach den Analysen von Staley (1982) und den Resultaten des Transportmodells. $T_{1/2*}$: Halbwertszeit für den Abbau der Tracermassendifferenz zwischen den Stratosphären [Jahre], $T_{1/2T}$: Halbwertszeit für den Massentransfer zwischen Stratosphäre und Troposphäre [Jahre], $T_{1/2E}$: Halbwertszeit für den stratosphärischen, interhemisphärischen Massentransport [Jahre].

Hinsichtlich des interhemisphärischen Massentransfers und des Abbaus der stratosphärischen Massendifferenz herrscht eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtungsanalysen. Demgegenüber liefert das Transportmodell einen etwas schwächeren Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre als die Analysen von Staley (1982) und auch Feely et. al. (1966). Fabian et. al. (1968) leiten aus Messungen des ^{90}Sr - Fallout im Niederschlag eine stratosphärische Halbwertszeit von 1.1 Jahren ab. Abweichungen zwischen den modellierten und tatsächlichen, im allgemeinen schwach ausgeprägten, stratosphärischen Mischungsprozessen dürften die Ursache hierfür sein. Je weniger ein Tracer aus der oberen in die untere Stratosphäre befördert wird, desto geringer wird der Transport durch die Tropopause sein.

5.3.4 Troposphärische Transportvorgänge

Dieser Abschnitt befaßt sich mit den globalen Charakteristika der Verteilung des ^{90}Sr in der Troposphäre und seiner Deposition. Saisonale Variationen stehen in den folgenden zwei Abschnitten dann im Vordergrund.

Abbildung 55 zeigt Meridionalschnitte der zonal und jährlich gemittelten ^{90}Sr - Konzentration für die vier Simulationsjahre. Im ersten Jahr bestehen aufgrund der Anfangsverteilung (siehe Kapitel 5.3.3) noch Konzentrationsunterschiede von etwa einer Größenordnung zwischen den Hemisphären. Durch interhemisphärischen Austausch zwischen den Stratosphären (Halbwertszeit 2.7 Jahre, siehe Abschnitt 5.3.3) und Transport durch die Tropopause (Halbwertszeit 16 Monate) bauen sich diese Kontraste allmählich ab, so daß 1966 praktisch eine symmetrische Verteilung vorliegt. Der interhemisphärische Transport

zwischen den Troposphären scheint klein zu sein, wie es sich im ausgeprägten äquatorialen Konzentrationsgradienten der Jahre 1963 und 1964 widerspiegelt. Die Ursache dafür dürfte ein verstärktes Auswaschen durch das mit der intertropischen Konvergenzzone (ITCZ) verbundene Regenband sein (Staley, 1982).

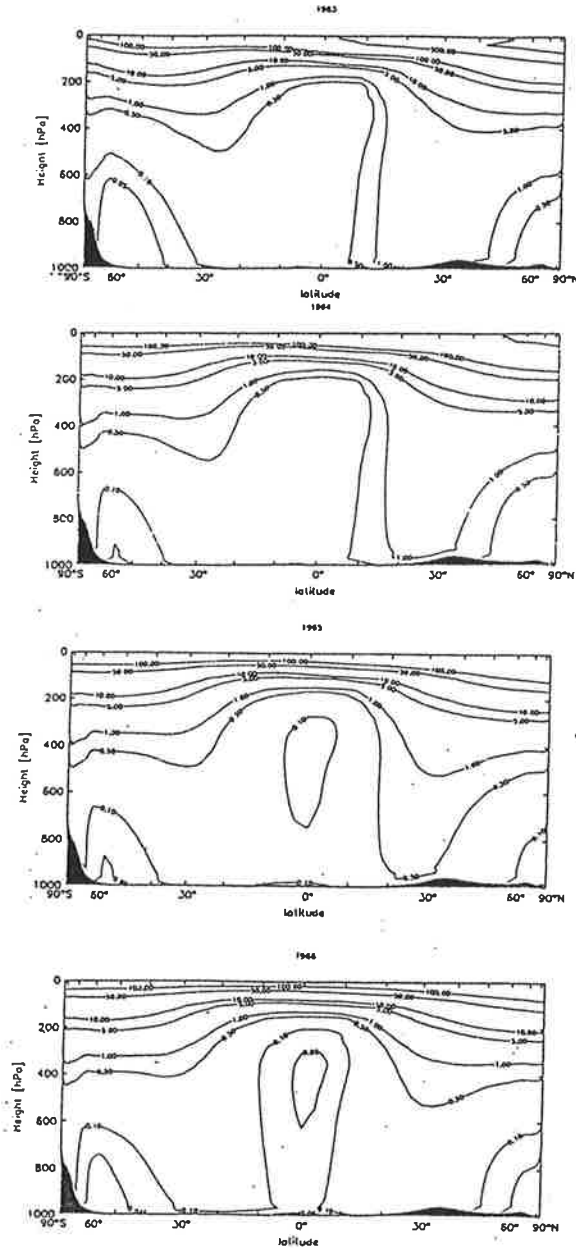


Abb.55 Meridionalschnitte der zonal und jährlich gemittelten ^{90}Sr - Konzentration [mBq m^{-3}] für die vier Simulationsjahre

Abbildung 56 zeigt den Jahresmittelwert der ^{90}Sr - Konzentration in der untersten

Modellschicht für die vier Simulationsjahre. Die Konzentrationsunterschiede zwischen den Hemisphären treten in den ersten beiden Jahren deutlich hervor. Der prägnante äquatoriale Konzentrationsgradient im afrikanischen und asiatischen Raum weist auf den oben bereits erwähnten Auswaschprozeß im Bereich der ITCZ hin. Er baut sich durch allgemeines Absinken des Konzentrationsniveaus in den beiden Hemisphären allmählich ab. Maximalwerte werden im Bereich der Sahara und des Himalaya erzielt. Im Falle des nördlichen Afrika dürfte die geringe Niederschlagsrate der Grund hierfür sein, im Falle des Himalaya die Höhenlage. Das Minimum in mittleren Breiten der Südhemisphäre wird von den stratiformen Niederschlägen der Zyklognese verursacht, wodurch Tracer vermehrt ausgewaschen werden.

Abbildung 57 zeigt die modellierte ^{90}Sr - Deposition der vier Simulationsjahre. Sie erreicht ein Maximum im Bereich der mittleren Breiten der Nordhemisphäre. Minima existieren in den Polargebieten und im Bereich des subtropischen Hochdruckgürtels westlich des südamerikanischen, afrikanischen und australischen Kontinents.

Die Abhängigkeit der Jahresdeposition von der geographischen Breite soll im folgenden näher beleuchtet werden. Abbildung 58 zeigt für die Jahre 1963, 1964, 1965 und 1966 ein Meridionalprofil der modellierten, zonal gemittelten ^{90}Sr - Jahresdeposition. Die Sterne bezeichnen die aus Beobachtungen des EML bzw. der UKAEA gewonnenen Resultate. Zu diesem Zweck wurde der Mittelwert aller innerhalb eines jeweils 10° breiten zonalen Bandes liegenden Meßstationen gebildet. Es wird angenommen, daß dieser Wert repräsentativ für den entsprechenden Breitenkreisgürtel ist und keine nennenswerten Unterschiede in der Deposition über Land und Wasser existieren (Freudenthal, 1970). In die Berechnung gehen nur solche Stationen ein, die kontinuierlich während des ganzen Jahres monatliche Depositionsmessungen vorgenommen haben.

Die Übereinstimmung zwischen Beobachtungen und Modellresultaten ist recht gut. Beide zeigen Maxima in den mittleren Breiten beider Hemisphären und Minima im Bereich des Äquators und der Pole. In der Nordhemisphäre liegt der Maximalwert zwischen 40 und 50°N und ist insbesondere in den ersten beiden Jahren sehr stark ausgeprägt. Das Südhemisphärenmaximum bei 40°S ist deutlich schwächer. Das Transportmodell unterschätzt 1963 und 1964 die Stärke des nordhemisphärischen Maximums etwas. Möglicherweise ist dies auf die Annahme zonaler Homogenität bei der Bestimmung der stratosphärischen Anfangskonzentrationsverteilung zurückzuführen. Ende 1962 durch sowjetische Nuklearversuche eingebrachtes ^{90}Sr zeigt sich möglicherweise nicht in den stratosphärischen Messungen der westlichen Hemisphäre (Kapitel 5.3.1), dafür aber in den Depositionsbeobachtungen. Junge (1963) konstatiert für die in hohen Breiten durch russische Atomversuche eingebrachten Isotope kurze Verweilzeiten von nur drei bis neun Monaten in der Atmosphäre.

Diese Depositionscharakteristika entsprechen den Ergebnissen von Lockhart et. al.

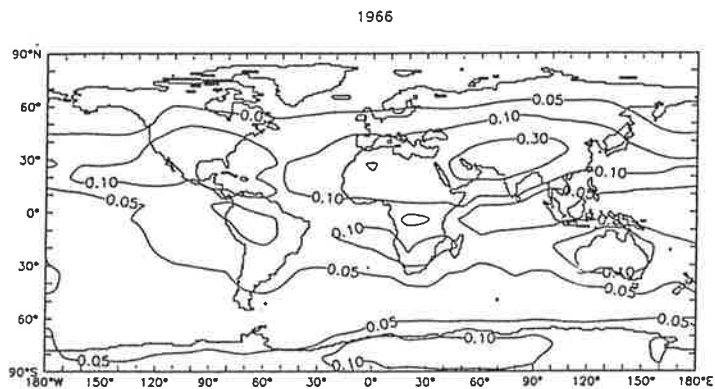
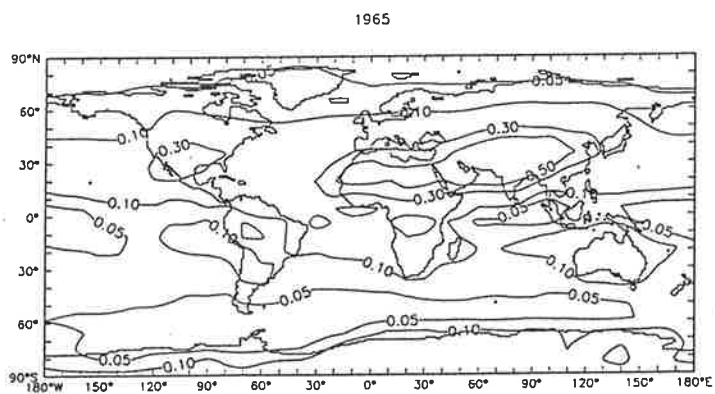
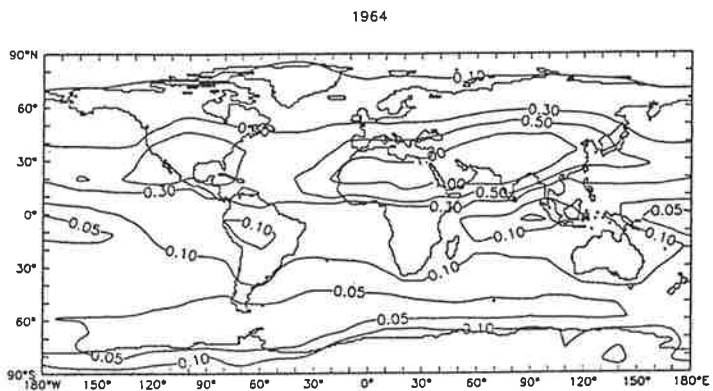
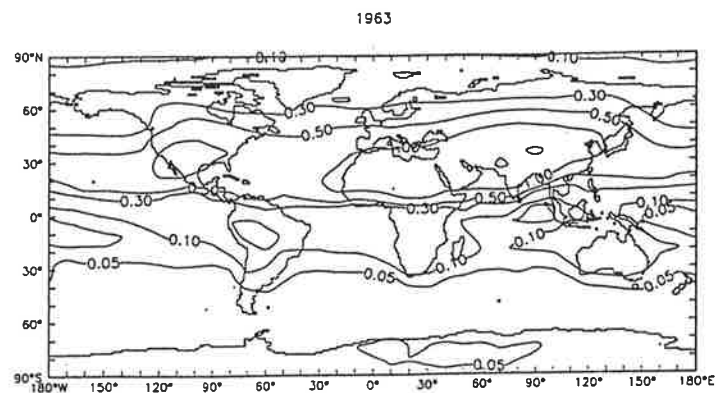


Abb.56 Jahresmittelwert der ^{90}Sr - Konzentration [mBq m^{-3}] in der untersten Modellschicht für die vier Simulationsjahre

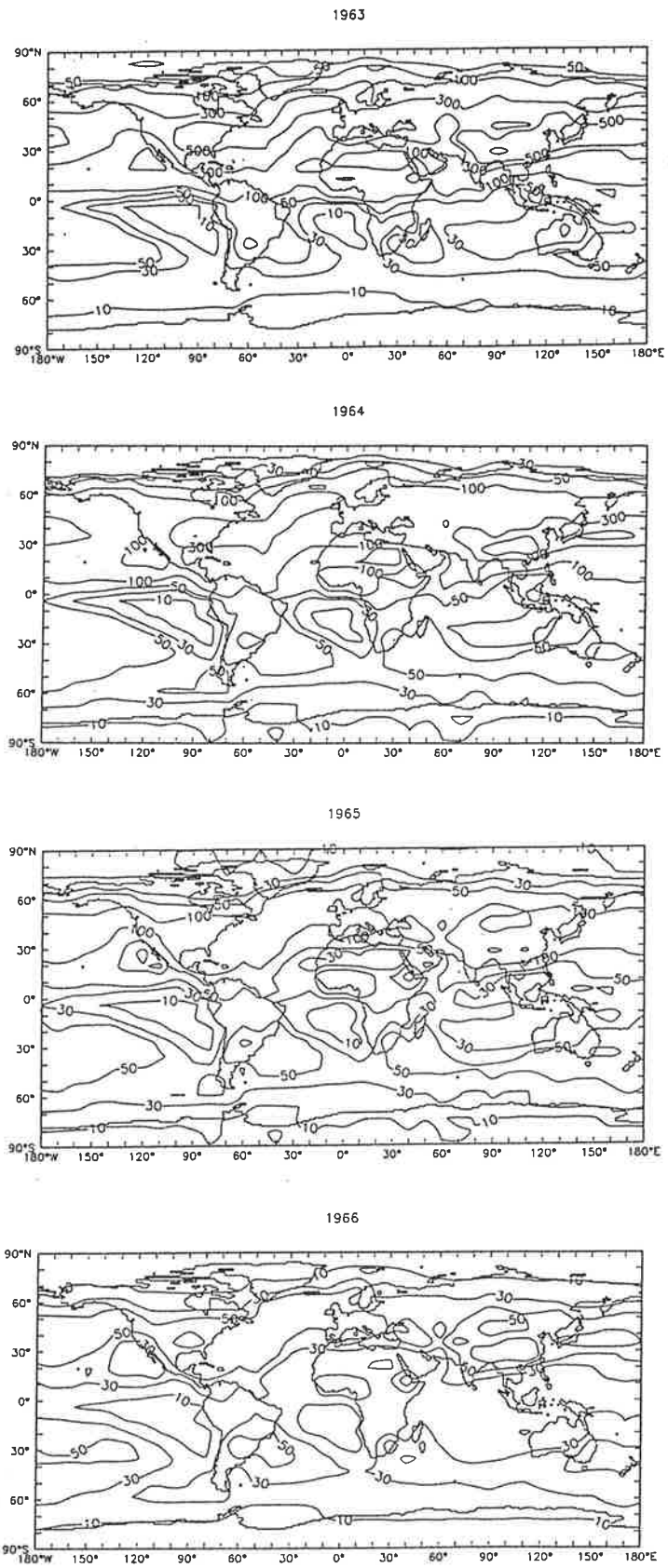


Abb.57 ^{90}Sr - Jahresdeposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{Jahr}^{-1}$] für die vier Simulationsjahre

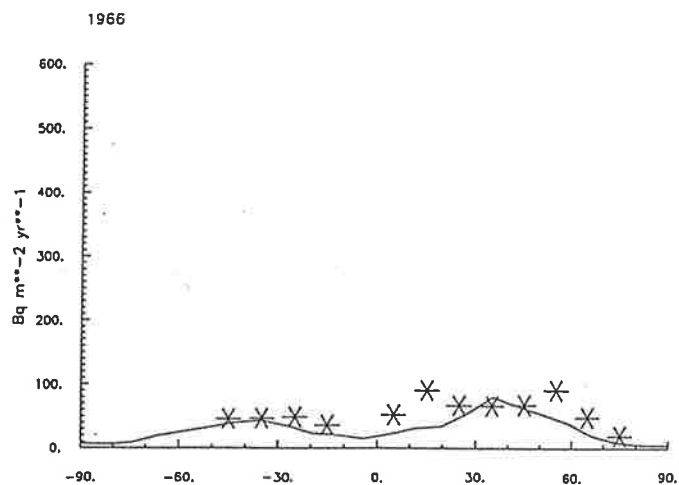
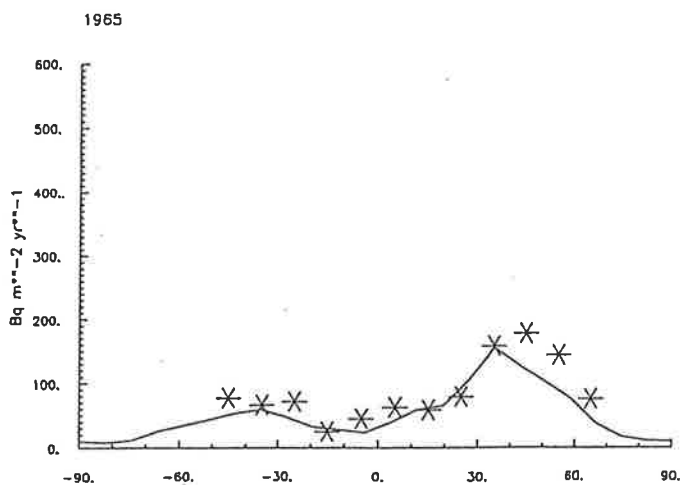
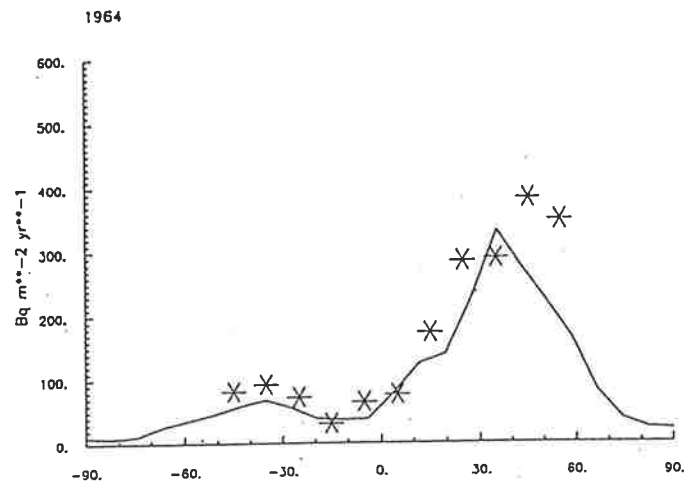
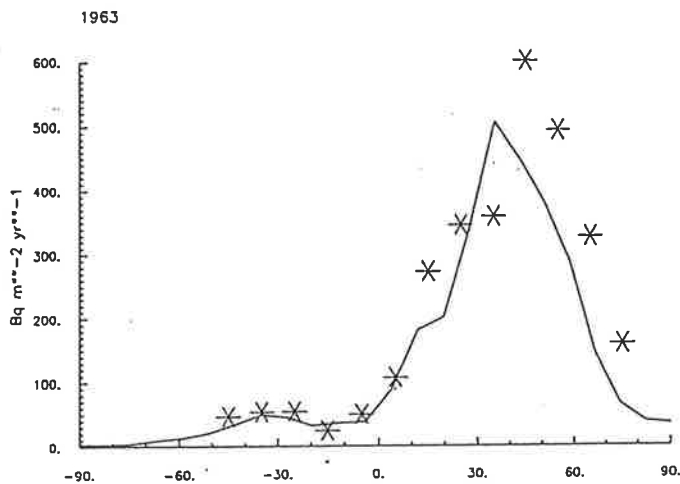


Abb.58 Modellerte, zonal gemittelte ⁹⁰Sr - Jahresdeposition [Bq m⁻² Jahr⁻¹] (durchgezogene Linie) im Vergleich mit den aus Beobachtungen des EML und der UKAEA gewonnenen Resultaten (Sterne)

(1960a) und den aus ^{90}Sr - Bodenproben abgeleiteten Resultaten von Hardy et. al. (1968). Staley (1982) bringt diese Depositionsmaxima in Verbindung mit dem Jetstream und der Zyklognese, wie es auch schon im Falle der natürlichen Isotope ^7Be und ^{10}Be erläutert wurde. Die Ergebnisse einer Meßkampagne von Danielsen (1968) weisen eine positive Korrelation zwischen der potentiellen Vorticity und der stratosphärischen Radioaktivität in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre auf. Die Konzentrationsmessungen radioaktiver Isotope und die abgeleiteten Trajektorien zeigen, daß polare stratosphärische Luftmassen zunächst südwärts und dann im Bereich der Frontalzone durch die Tropopause transportiert werden.

Die in Verbindung mit den Depositionsmaxima stehende Zyklognese ist jahreszeitenabhängig. Ein maximaler Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre dürfte daher im Winter, ein minimaler im Sommer zu erwarten sein. Die Existenz eines Frühjahrsmaximums und Herbstminimums der Deposition in niederen und mittleren Breiten zeigt jedoch, daß nicht nur der saisonale Massenaustausch durch die Tropopause eine Rolle spielt, sondern daß noch andere Effekte miteinwirken müssen. Hierzu gehört die jahreszeitliche Variation der stratosphärischen Luftmasse (Staley, 1982). Dieser Prozeß wird im folgenden Abschnitt näher beleuchtet.

5.3.5 Das Frühjahrsmaximum der niederen und mittleren Breiten

Das Charakteristikum eines Frühjahrsmaximums der ^{90}Sr - Deposition bzw. Konzentration führt Staley (1982) auf eine Kombination mehrerer Effekte zurück. Die ITCZ und das mit ihr verbundene Regenband wandert nordwärts, ebenso der subtropische und polare Jetstream und die Tiefdruckrinne der mittleren Breiten. Damit verbunden ist ein Anheben der Tropopause in mit radioaktiven Zerfallsprodukten angereicherte Höhen, d.h. die stratosphärische Luftmasse wird reduziert. Die radioaktiven Isotope werden durch diesen Prozeß in die obere Troposphäre verlagert und unterliegen ihren Mischungsprozessen. Staley (1982) führt die zeitliche Verlagerung des Maximalwerts der bodennahen ^{90}Sr - Konzentration vom Winter ins Frühjahr auf das Zusammenwirken dieser zwei Effekte, der Saisonalität im Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre und der Variation der Tropopausenhöhe, zurück. Die Größe dieser zeitlichen Verschiebung hänge von der relativen Bedeutung beider Effekte ab. Der umgekehrte Prozeß verläuft im Herbst.

Staley (1982) konstatiert aus den ^{90}Sr - Konzentrationsbeobachtungen von 1963 bis 1975 für die Nordhemisphäre eine zeitliche Verzögerung des Maximalwerts mit der geographischen Breite. Er tritt zunächst sehr markant bei 10°N auf und verzögert sich in mittleren Breiten (bei ca. 60°N) um ein bis zwei Monate. Nördlich davon entsteht das Maximum in etwa zum gleichen Zeitpunkt wie in niederen Breiten. Die Südhemisphäre weist bis ca. 40°S ein weniger markantes, aber dennoch deutlich registrierbares Frühjahrs-

maximum auf. Diese Symmetrie zwischen den Hemisphären besteht südlich davon nicht mehr. Hier zeigt sich ein ähnliches Muster wie in der Nordhemisphäre.

Abbildung 59 zeigt das modellierte und beobachtete, zonal gemittelte Konzentrationsverhältnis vom ^{90}Sr - Monats- zum Jahresmittelwert in Abhängigkeit von der geographischen Breite. Das obere Bild stellt die Verhältnisse in der 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe), das mittlere die in der bodennahen Schicht dar. Im unteren Bild ist das aus den Beobachtungen gewonnene Resultat zu sehen. Alle Meßwerte innerhalb eines 10° breiten zonalen Bandes wurden gemittelt und als repräsentativ für den entsprechenden Breitengürtel angesehen. Modell- und Beobachtungswerte wurden ferner über den Zeitraum von 1964 bis 1966 gemittelt.

In der untersten Modellschicht (mittleres Bild) zeigt sich im März bei 10°N ein markantes Maximum des Konzentrationsverhältnisses, d.h. der Monatsmittelwert liegt deutlich über dem Jahresmittelwert, weist also auf ein Einmischen stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre hin. Dieser Maximalwert tritt in mittleren Breiten (50 bis 60°N) ca. einen Monat später ein, nördlich davon bereits im Februar. Die Saisonalität nimmt mit wachsender geographischer Breite ab.

Das aus den Beobachtungen gewonnene Muster ähnelt sehr dem modellierten (unteres Bild). Sehr prägnant und mit gleicher Größenordnung tritt ein Maximum im März bei 5°N auf und entsprechend ein Minimalwert im Herbst. Die zeitliche Verzögerung des Maximums mit der geographischen Breite ist in den Beobachtungen jedoch wesentlich deutlicher ausgeprägt als im Modell (zwei Monate im Vergleich zu knapp einem von 10°N bis 50°N).

Die Südhemisphäre zeigt im Modell bis ca. 40°S ebenfalls ein Frühjahrsmaximum (September bis Oktober), südlich davon jedoch das Muster eines doppelten Maximums, eines im Winter (Juli) und eines im Frühling (Oktober). Bis ca. 40°S zeigen die Beobachtungen ein ähnliches Resultat. Südlich davon verschiebt sich der Maximalwert jedoch in den südhemisphärischen Sommer (Januar bis März), was in krassem Gegensatz zu den Modellergebnissen (mittleres Bild) steht. Die hier gezeigten Modellresultate des ^{90}Sr weisen in der Struktur eine große Ähnlichkeit mit der entsprechenden Darstellung des Konzentrationsverhältnisses von $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ auf (siehe Abbildung 42). Der Dissens zwischen Modell und Beobachtungen im Bereich südlich von 40°S , sowohl für $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ als auch für ^{90}Sr , legt die Vermutung nahe, daß sich hier ein generelles Modelldefizit manifestiert, möglicherweise durch Unzulänglichkeiten in den ECMWF - Analysen verursacht. Diese Unzulänglichkeiten könnten durch die geringe Meßdatendichte in dieser Region verursacht werden, d.h. die Datenbasis zur Herleitung der ECMWF - Felder ist hier wesentlich kleiner als in anderen Gebieten.

In der oberen Troposphäre (oberes Bild in Abbildung 59) zeigt sich eine ähnliche Struktur wie in Bodennähe. Das nordhemisphärische Maximum tritt ca. einen Monat früher

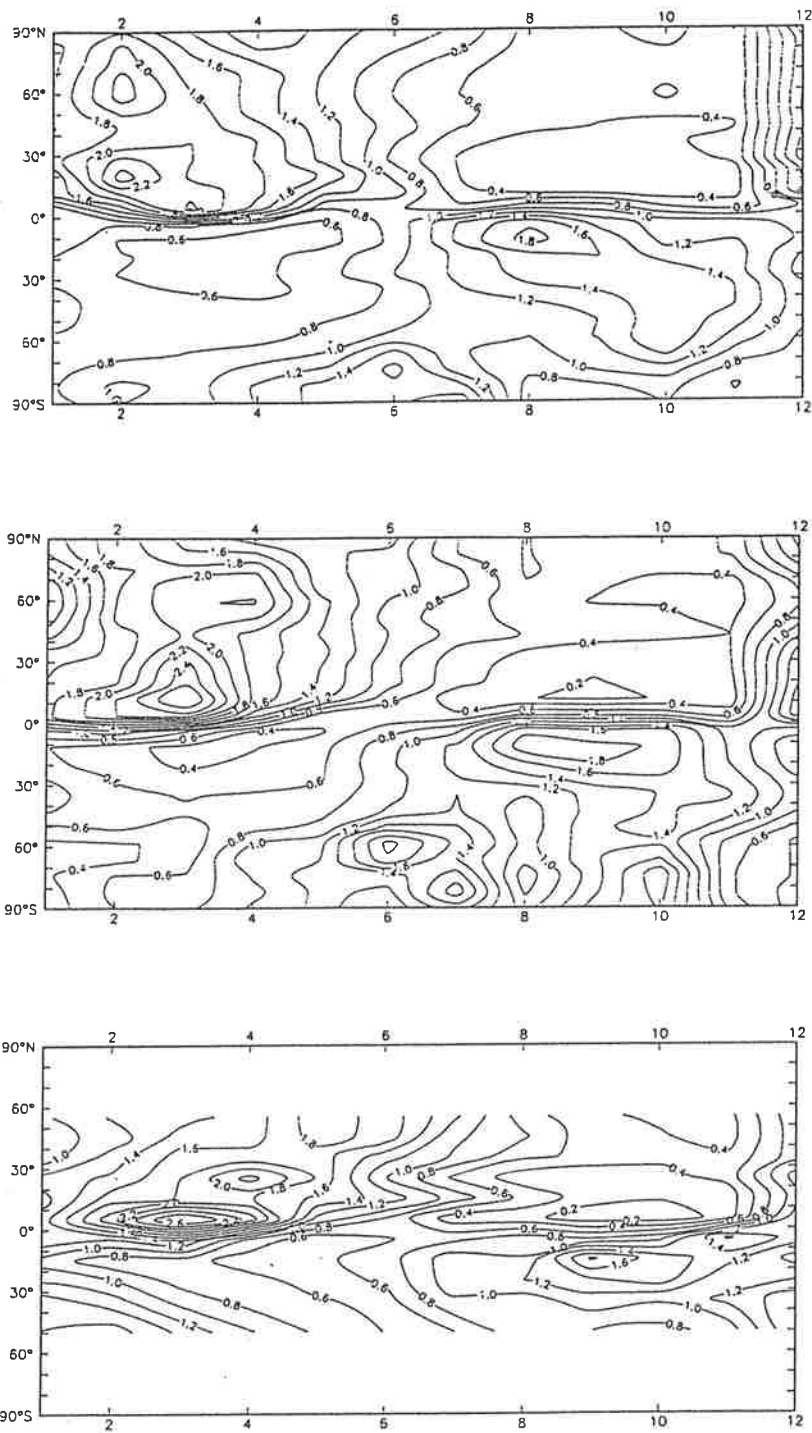


Abb.59 Modelliertes und beobachtetes, zonal gemitteltetes Konzentrationsverhältnis vom ^{90}Sr - Monats- zum Jahresmittelwert in Abhängigkeit von der geographischen Breite. Das obere Bild stellt die Verhältnisse in der 11. Modellschicht (ca. 320 hPa, in 8.7 km Höhe), das mittlere die in der bodennahen Schicht dar. Im unteren Bild ist das aus den Beobachtungen gewonnene Resultat zu sehen. Alle Meßwerte innerhalb eines 10° breiten zonalen Bandes wurden gemittelt und als repräsentativ für den entsprechenden Breitengürtel angesehen. Modell- und Beobachtungswerte wurden ferner über den Zeitraum von 1964 bis 1966 gemittelt.

auf, d.h. die troposphärische Zirkulation benötigt ca. 30 Tage, um von der Stratosphäre in die obere Troposphäre eingemischte Zerfallsprodukte in die Grenzschicht zu befördern. In der Südhemisphäre ist das Muster eines doppelten Maximums verschwunden, d.h. es führen offenkundig troposphärische Transportprozesse zu dieser Struktur.

Im folgenden Abschnitt wird die Saisonalität der Deposition an einzelnen Meßstationen näher beleuchtet.

5.3.6 Der Jahresgang der Deposition an einzelnen Beobachtungsstationen

Für die Analyse werden jeweils drei Zonen in den beiden Hemisphären gebildet : Die Polarregionen (60 bis 90°), die mittleren Breiten (30 bis 60°) sowie die Tropen und Subtropen (0 bis 30°). In diesen Regionen sind unterschiedliche Faktoren primär für den Jahresgang der ^{90}Sr - Deposition verantwortlich.

Polarregion der Nordhemisphäre

Abbildung 60 zeigt den Verlauf der monatlichen ^{90}Sr - Deposition von 1963 bis 1966 an vier Stationen nördlich von 60°N (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte bezeichnen die Beobachtungen. In der rechten Spalte ist entsprechend die beobachtete (Kreise) und modellierte Niederschlagsrate (durchgezogene Kurve) an den Stationen zu sehen.

Übereinstimmend zeigen die Simulationen und Beobachtungen eine Abnahme der Deposition im Laufe der vier Jahre mit saisonalen Maxima im Frühjahr und Sommer. Während sich in Fairbanks und Thule das sommerliche Maximum sowohl in den Beobachtungen als auch im Transportmodell zeigt, prognostiziert das Modell in Anchorage und Keflavik bereits am Ende des Winters ein Depositionsmaximum. Die größte Diskrepanz besteht jedoch bezüglich der Größe dieses Maximalwerts. In Fairbanks, Anchorage und Thule unterschätzt das Transportmodell, insbesondere in den ersten zwei Jahren, diesen Spitzenwert um mitunter eine ganze Größenordnung.

Betrachtet man den Verlauf der Niederschlagsrate an den Stationen, so zeigt sich, daß die Diskrepanzen in der Deposition nicht durch Abweichungen in der Niederschlagsmenge zwischen Modell (durchgezogene Linie) und Beobachtungen (Kreise) zu erklären sind. Für Fairbanks und Anchorage liegt die beobachtete Niederschlagsmenge erheblich unter der des Modells. Andere Gründe müssen für diesen Dissens verantwortlich sein.

Die extreme Abweichung legt den Schluß nahe, daß es sich hier um Zerfallsprodukte sowjetischer Atombombenversuche handelt, die Ende 1962 stattfanden. Junge (1963) konstatiert für diese in hohen Breiten eingebrachten Isotope kurze atmosphärische Verweilzeiten von nur drei bis neun Monaten. Die aus stratosphärischen Messungen im Januar 1963 in der westlichen Hemisphäre abgeleitete Anfangskonzentrationsverteilung erfaßt diese Zerfallsprodukte möglicherweise nicht (siehe Abschnitt 5.3.1). Ferner besteht

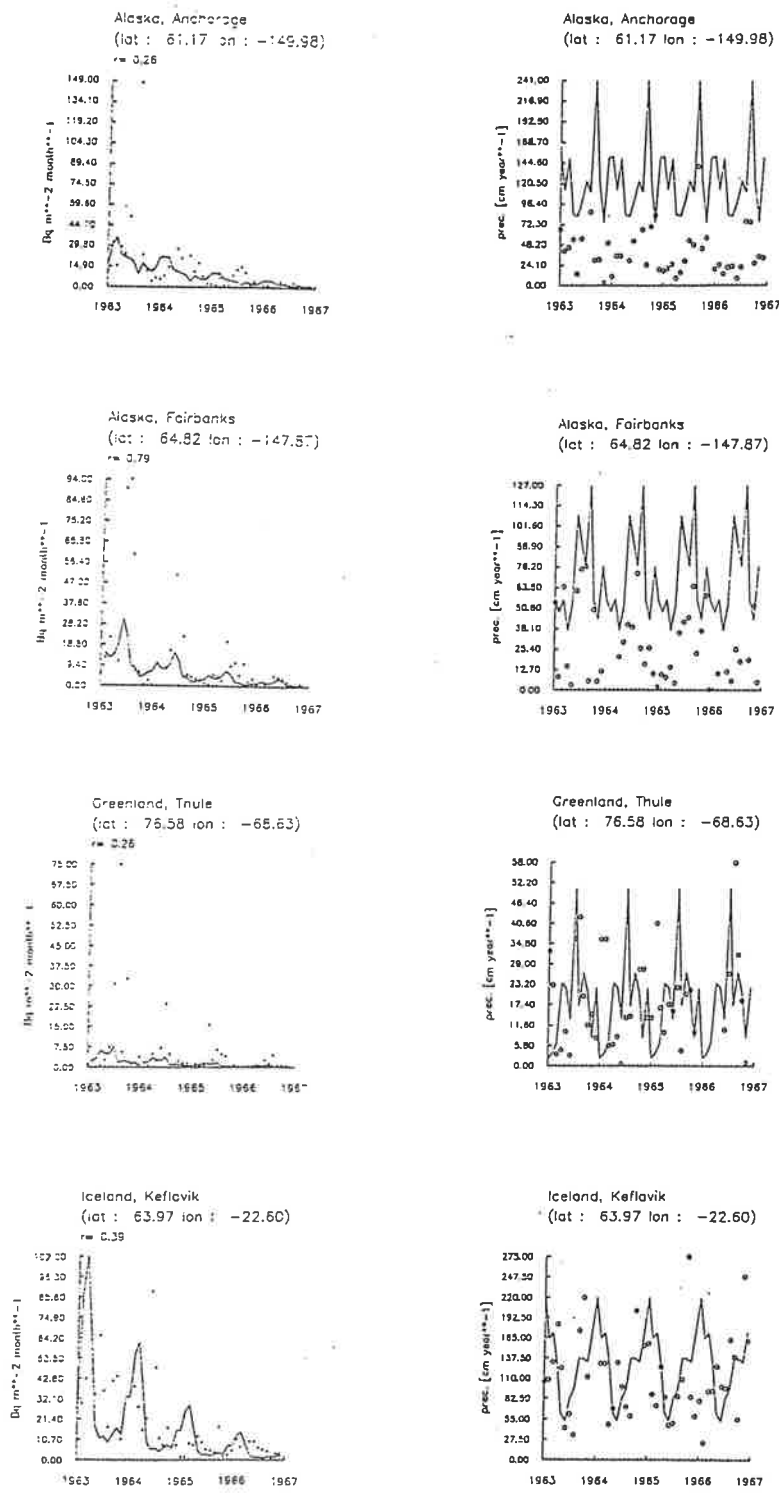


Abb.60 Monatliche ^{90}Sr - Deposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{ Monat}^{-1}$] von 1963 bis 1966 an vier Stationen nördlich von 60°N (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte bezeichnen die Beobachtungen. Die Größe r gibt den Korrelationskoeffizienten zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen an. In der rechten Spalte ist die beobachtete (Kreise) und modellierte (durchgezogene Kurve) mittlere monatliche Niederschlagsrate [cm Jahr^{-1}] an den Stationen dargestellt. Die Modellniederschlagsrate verläuft zyklisch, da die ECMWF - Vorhersagen von 1990 für jedes der vier Simulationsjahre benutzt werden.

die Möglichkeit, daß sich in diesen beobachteten Spitzenwerten der ^{90}Sr - Deposition kleinere Nuklearversuche widerspiegeln, welche nur die Troposphäre beeinflussen und folglich in den stratosphärischen Analysen nicht registrierbar sind.

Die These von Zerfallsprodukten sowjetischer Tests findet bei der Betrachtung der beiden im nördlichen Norwegen, also nahe dem sowjetischen Testgebiet, liegenden Stationen Bodö und Tromsø Unterstützung (Abbildung 61). Dargestellt ist die beobachtete (Sterne) und modellierte (durchgezogene Linie) vierteljährliche Depositionsrate. Die Beobachtungen zeigen erheblich höhere Werte an.

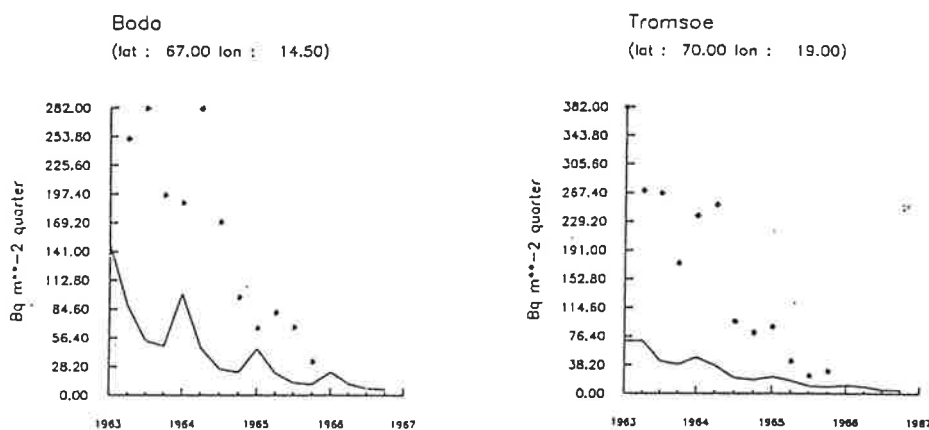


Abb.61 Vierteljährliche beobachtete (Sterne) und modellierte (durchgezogene Kurve) ^{90}Sr -Deposition [$\text{Bq m}^{-2}\text{Quartal}^{-1}$] an zwei norwegischen Stationen

Mittlere Breiten der Nordhemisphäre

Abbildung 62 zeigt den Verlauf der monatlichen ^{90}Sr - Deposition von 1963 bis 1966 an sechs nordamerikanischen Stationen. Die Punkte bezeichnen wieder die Beobachtungen, die durchgezogene Linie die Modellergebnisse. Alle Meßstationen zeigen die erwartete charakteristische Saisonalität mit einem Maximum im Frühling und einem Minimum im Herbst bei allmählich abnehmenden Depositionsraten. Die Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtungen ist dabei sehr gut, wie die Werte des Korrelationskoeffizienten r zeigen.

Zur Untersuchung einer möglichen Längenabhängigkeit dieses Jahregangs der ^{90}Sr - Deposition seien die Stationen Montana, Sterling, Florenz und Tachikawa betrachtet. Sie liegen alle in einer ähnlichen geographischen Breite, jedoch in verschiedenen geographischen Längen. Abbildung 63 zeigt den prozentualen Anteil der monatlichen ^{90}Sr -

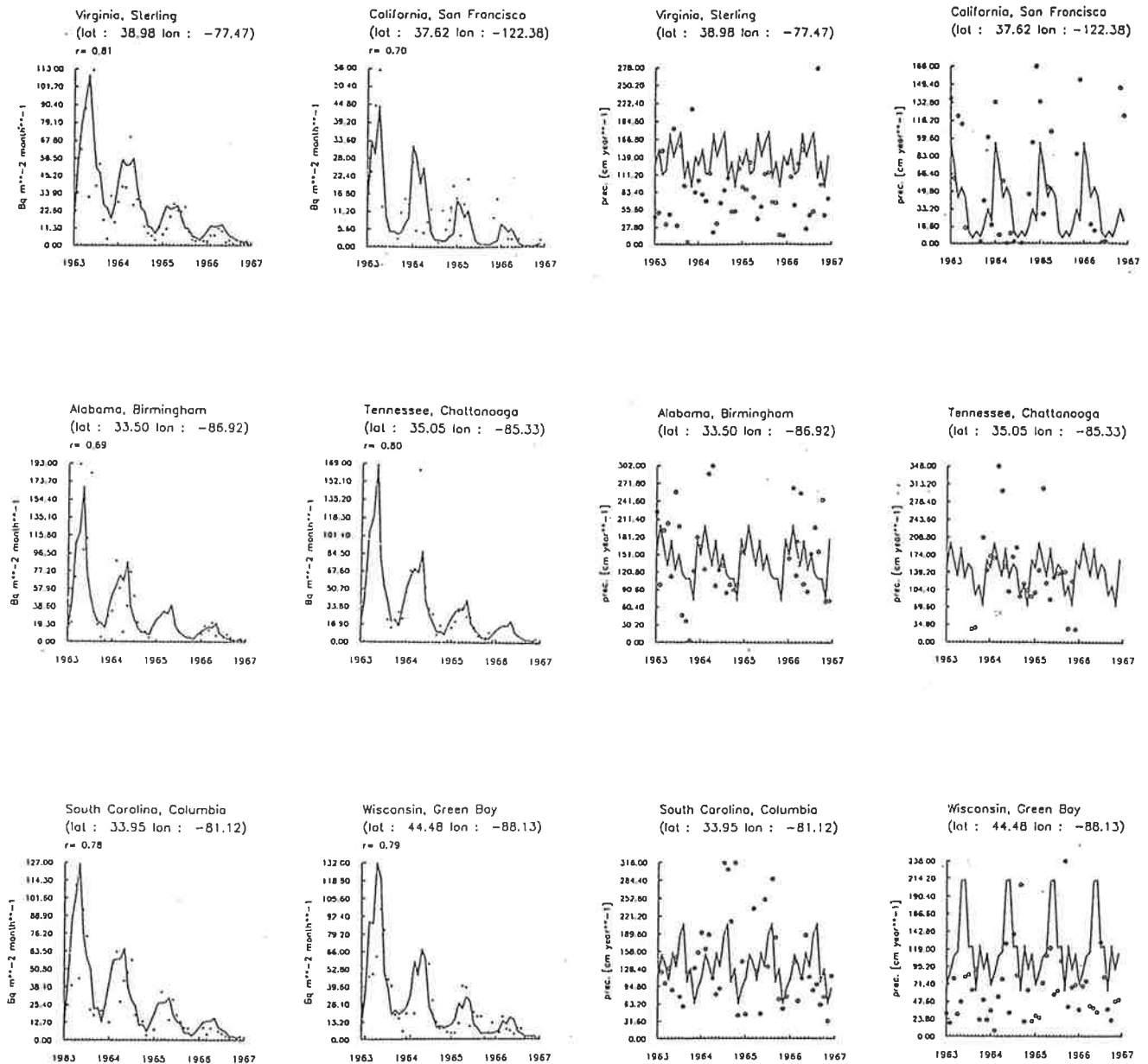


Abb.62 Monatliche ^{90}Sr - Deposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{Monat}^{-1}$] von 1963 bis 1966 an sechs nordamerikanischen Stationen (1. und 2. Spalte von links). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte bezeichnen die Beobachtungen. Die Größe r gibt den Korrelationskoeffizienten zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen an. In der 3. und 4. Spalte von links ist die beobachtete (Kreise) und modellierte (durchgezogene Kurve) mittlere monatliche Niederschlagsrate [cm Jahr^{-1}] an den Stationen dargestellt. Die Modellniederschlagsrate verläuft zyklisch, da die ECMWF - Vorhersagen von 1990 für jedes der vier Simulationsjahre benutzt werden.

Deposition an der Jahresdeposition, gemittelt über den Zeitraum von 1963 bis 1966, für die vier Stationen, sowohl im Modell (links) als auch in den Beobachtungen (rechts).

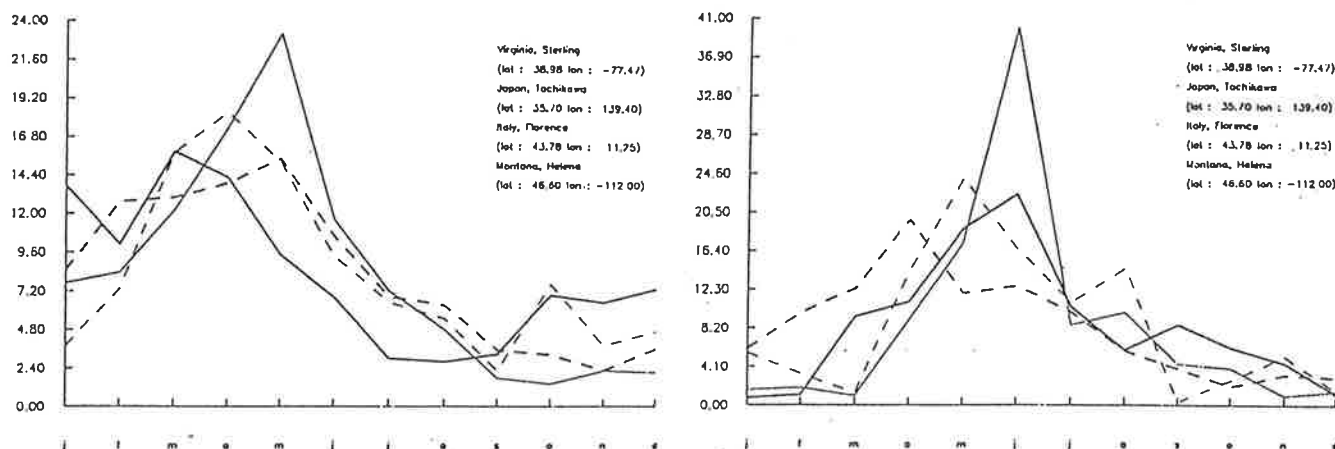


Abb.63 Prozentualer Anteil der monatlichen ^{90}Sr - Deposition an der Jahresdeposition, gemittelt über den Zeitraum von 1963 bis 1966, für vier Stationen in mittleren Breiten der Nordhemisphäre mit unterschiedlicher geographischer Länge. Die durchgezogene Kurve beschreibt die Station Montana ($46.6^\circ\text{N}, 112^\circ\text{W}$), die gestrichelte Florenz ($43.78^\circ\text{N}, 11.25^\circ\text{O}$), die fette durchgezogene Linie Tachikawa ($35.7^\circ\text{N}, 139.4^\circ\text{O}$) und die fett gestrichelte Virginia ($38.98^\circ\text{N}, 77.47^\circ\text{W}$). Links sind die Resultate des Transportmodells, rechts die Beobachtungen dargestellt.

Sowohl im Modell als auch in den Beobachtungen zeigt sich an allen vier Stationen der charakteristische Depositionsverlauf mit einem Maximum im Frühjahr und einem Minimum im Herbst, auch wenn die Amplitude unterschiedlich groß ist und der Zeitpunkt des Maximalwerts zwischen März und Juni variiert. Das Frühjahrsmaximum und Herbstminimum der ^{90}Sr - Deposition ist also ein in allen geographischen Längen registrierbares Phänomen.

Tropen und Subtropen der Nordhemisphäre

Staley (1982) hat in seinen Studien für diese Region eine enge Koppelung zwischen Niederschlagsrate und ^{90}Sr - Konzentration festgestellt. Durch die Verschiebung der ITCZ und des mit ihr verbundenen Regenbandes weisen Stationen in diesen Breiten einen markanten Jahresgang im Niederschlag und damit auch in der ^{90}Sr - Konzentration bzw. Deposition auf.

Abbildung 64 zeigt in der 1. und 2. Spalte von links für sechs Stationen den Verlauf der monatlichen ^{90}Sr - Deposition im Modell (durchgezogene Linie) und in den Beobachtungen (Punkte), zusammen mit der entsprechenden monatlichen, mittleren Niederschlagsrate

(3. und 4. Spalte von links). Die Saisonalität im Niederschlag (Minima im Winter und Maxima im Sommer) ist erkennbar stark ausgeprägt. Ein bis drei Monate früher werden parallel dazu Spitzenwerte in der Deposition erreicht. Die Effizienz des Auswaschprozesses ist offenkundig so stark, daß bereits vor dem Eintreten des Niederschlagsmaximums ein Großteil der Substanz ausgewaschen wurde.

Tropen und Subtropen der Südhemisphäre

Die südliche Hemisphäre weist eine den Jahreszeiten entsprechend um sechs Monate verschobene Phase auf. Hierzu sei Abbildung 65 betrachtet, welche drei afrikanische und drei australische Stationen zeigt. Dargestellt sind wieder die Deposition (1. und 2. Spalte von links) und der Niederschlag (3. und 4. Spalte von links). Sowohl Beobachtungen als auch Modellresultate zeigen ein ^{90}Sr - Depositionsmaximum zwischen Oktober und Januar, also im Frühling bzw. Sommer der Südhemisphäre. Außerdem fällt auf, daß die Deposition, im Gegensatz zur Nordhemisphäre, im Laufe der vier Jahre nur sehr langsam abfällt und manchmal sogar zunächst noch zunimmt. Der Grund hierfür ist der interhemisphärische Transport von der nördlichen in die südliche Stratosphäre (siehe Kapitel 5.3.3). Die Saisonalität des Niederschlags entspricht der der Deposition mit Maxima im Südhemisphärensommer (Dezember bis Februar) und Minima im Winter (Juni bis August).

Um die sechsmonatige Phasenverschiebung zwischen den Hemisphären zu verdeutlichen, zeigt Abbildung 66 einen Vergleich der Depositions- bzw. Niederschlagsrate zwischen Bangkok (Nordhemisphäre) und Darwin (Südhemisphäre) bzw. Houston (Nordhemisphäre) und Durban (Südhemisphäre) im Transportmodell. Links wird die Deposition, rechts die Niederschlagsrate dargestellt.

Mittlere Breiten der Südhemisphäre

Wie Staley (1982) gezeigt hat, bildet sich in der Südhemisphäre kein so prägnantes Frühjahrsmaximum wie in der Nordhemisphäre aus. Bis ca. 40°S zeigt sich ein breites Maximum von ca. Juli bis Dezember, also im Winter und Frühling. Südlich davon deutet sich stattdessen ein spätsommerlicher Maximalwert an.

Abbildung 67 zeigt drei australische und eine südamerikanische Station im Bereich zwischen 30 und 40°S . In der linken Spalte wird die monatliche Deposition, rechts die Niederschlagsrate dargestellt. Alle Stationen zeigen, sowohl in den Beobachtungen als auch im Modell, Depositionsmaxima zwischen Juli und Oktober (Winter und Frühling) und Minima im Herbst (März bis Mai).

Abbildung 68 zeigt mit Puerto Montt und Punta Arenas in Chile zwei südlich von 40°S liegende Stationen. Eine Übereinstimmung zwischen Modellvorhersagen und Beobachtungen ist nicht erkennbar (linke Spalte), doch besteht die Ursache offenkundig in den stark voneinander abweichenden Niederschlagsraten (rechte Spalte). In Puerto Montt

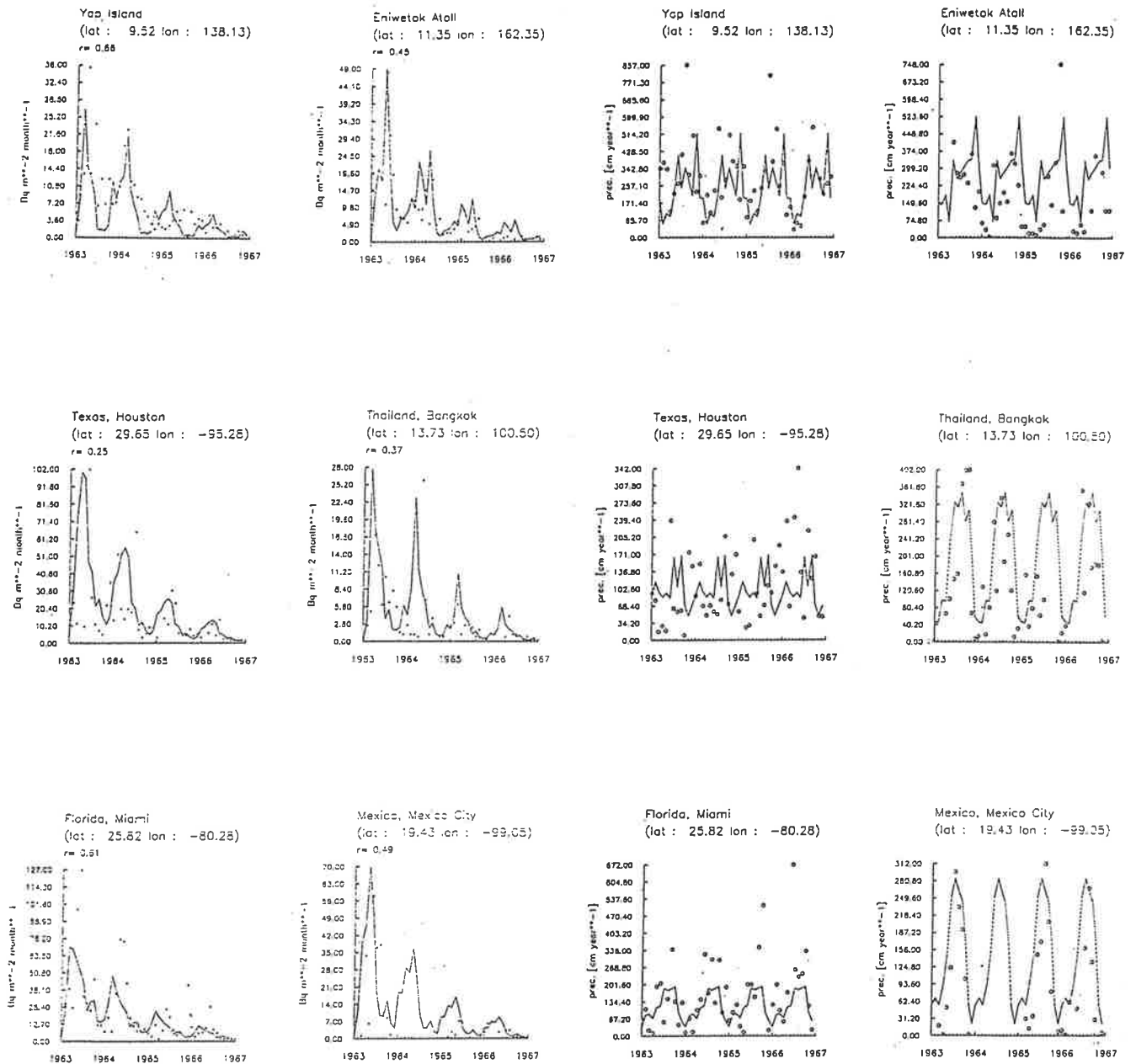


Abb.64 Monatliche ^{90}Sr - Deposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{ Monat}^{-1}$] von 1963 bis 1966 an sechs Stationen in den Tropen und Subtropen der Nordhemisphäre (1. und 2. Spalte von links). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte bezeichnen die Beobachtungen. Die Größe r gibt den Korrelationskoeffizienten zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen an. In der 3. und 4. Spalte von links ist die beobachtete (Kreise) und modellierte (durchgezogene Kurve) mittlere monatliche Niederschlagsrate [cm Jahr^{-1}] an den Stationen dargestellt. Die Modellniederschlagsrate verläuft zyklisch, da die ECMWF - Vorhersagen von 1990 für jedes der vier Simulationsjahre benutzt werden.

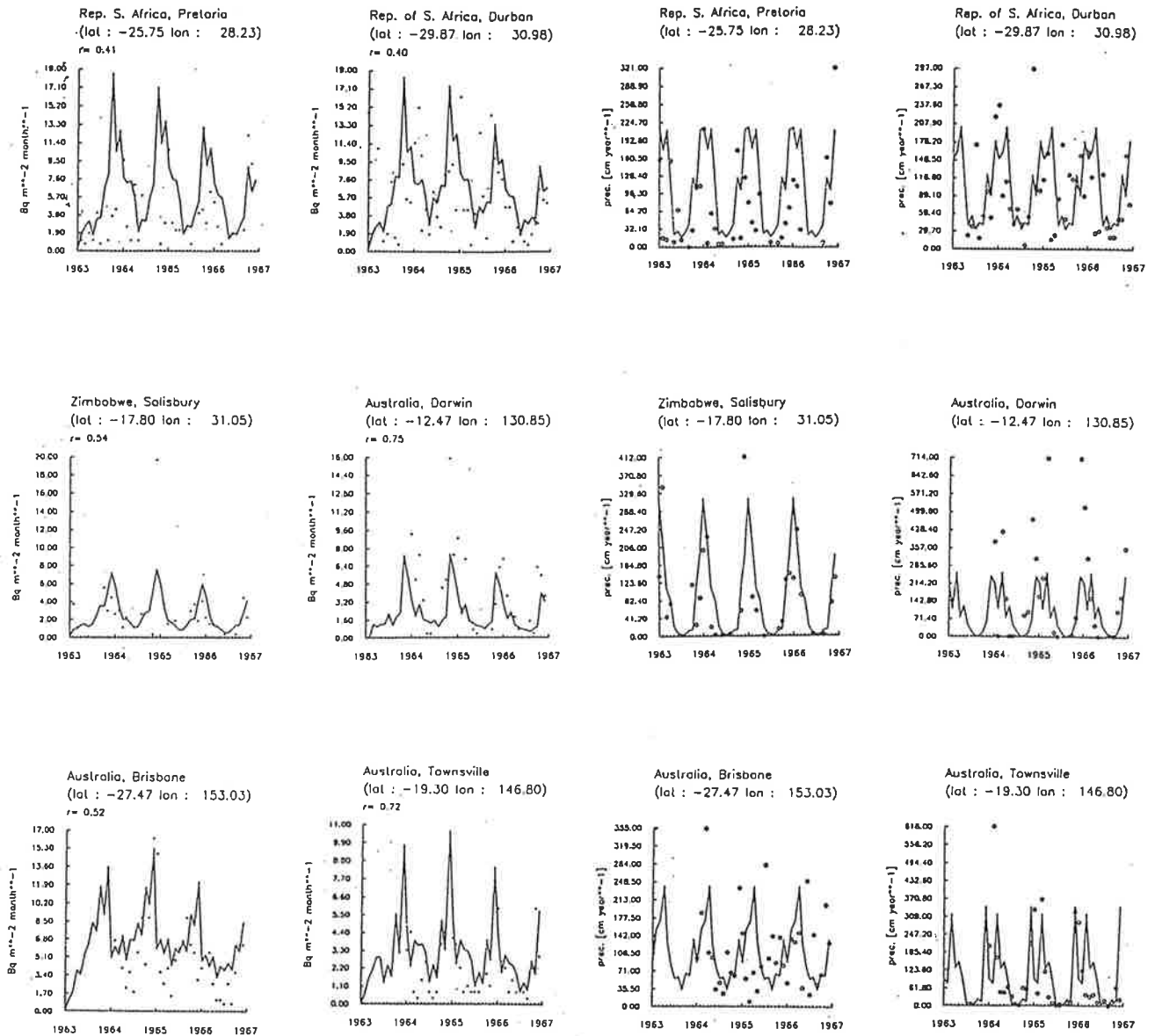


Abb.65 Monatliche ^{90}Sr - Deposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{ Monat}^{-1}$] von 1963 bis 1966 an sechs Stationen in den Tropen und Subtropen der Südhemisphäre (1. und 2. Spalte von links). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte bezeichnen die Beobachtungen. Die Größe r gibt den Korrelationskoeffizienten zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen an. In der 3. und 4. Spalte von links ist die beobachtete (Kreise) und modellierte (durchgezogene Kurve) mittlere monatliche Niederschlagsrate [cm Jahr^{-1}] an den Stationen dargestellt. Die Modellniederschlagsrate verläuft zyklisch, da die ECMWF - Vorhersagen von 1990 für jedes der vier Simulationsjahre benutzt werden.

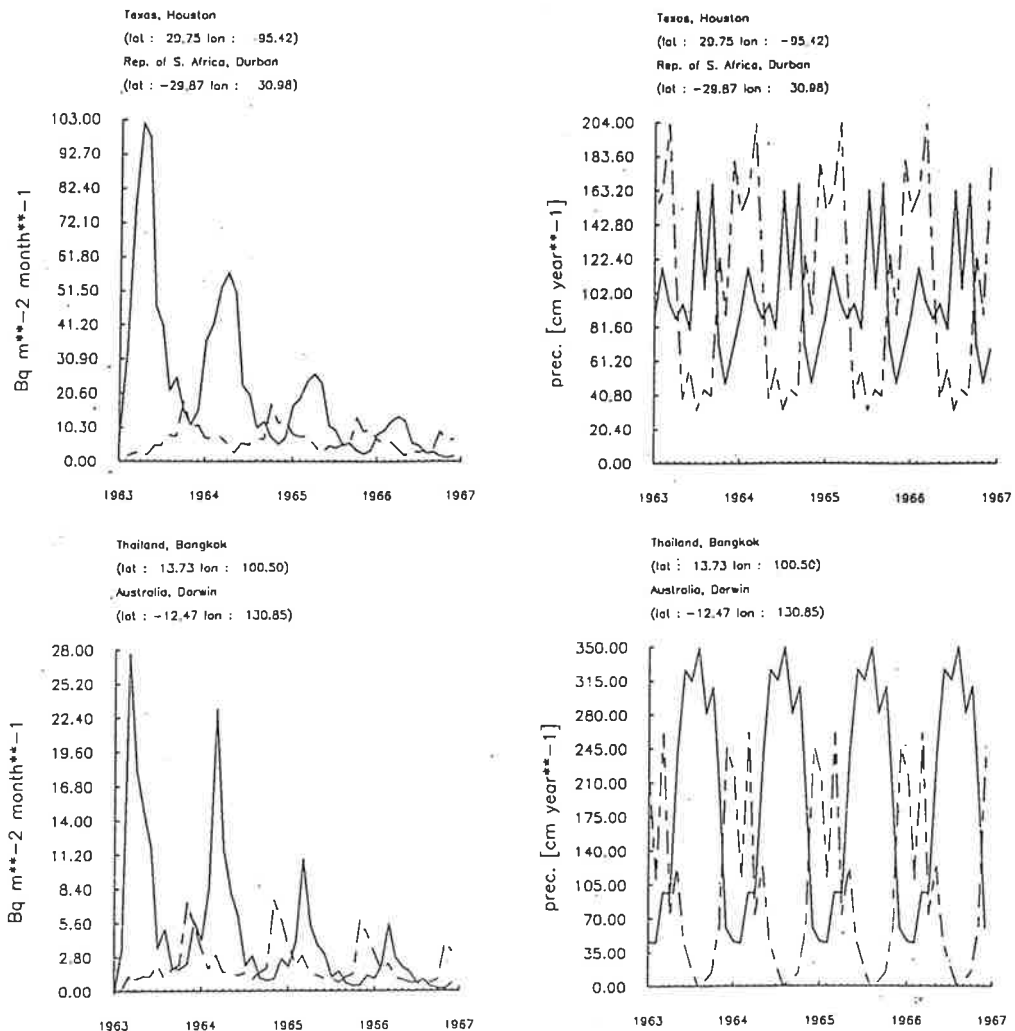


Abb.66 Monatliche ^{90}Sr - Deposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{ Monat}^{-1}$] (linke Spalte) und mittlere Niederschlagsrate [cm Jahr^{-1}] (rechte Spalte) im Transportmodell für jeweils eine subtropische Station der Nord- bzw. Südhemisphäre. Die durchgezogene Linie beschreibt den nordhemisphärischen Meßort, die gestrichelte den südhemisphärischen.

liegt die beobachtete Niederschlagsmenge, und somit auch die Deposition, weit über der ECMWF - Niederschlagsvorhersage. In Punta Arenas zeigt sich in den Depositionsbeobachtungen die oben erwähnte Verschiebung des Maximalwerts zum Spätsommer (Januar bis März) hin. Das Modell weist mit zwei Maxima (im Juni und Oktober) ein völlig konträres Verhalten auf, was aber dem Verlauf der Modellniederschlagsrate entspricht. Diese ist gegenüber den Beobachtungen außerdem viel zu hoch, so daß eine gute Übereinstimmung in den Depositionsergebnissen nicht erwartet werden kann.

Polarregionen der Südhemisphäre

Der Umfang an Beobachtungsmaterial ist für diese Region sehr gering. Abbildung 69 stellt den Verlauf der monatlichen ^{90}Sr - Deposition (links) und Niederschlagsrate (rechts) an einer antarktischen Meßstation dar. Die beobachtete Deposition zeigt Maxima im Spätsommer der Südhemisphäre (März). Das Modell hingegen weist Maximalwerte im Juni auf.

Diese Diskrepanz zwischen Modell und Beobachtungen südlich von 40°S , wie sie sich hier in den ^{90}Sr - Simulationen, aber auch bereits in den Modellrechnungen mit ^7Be und

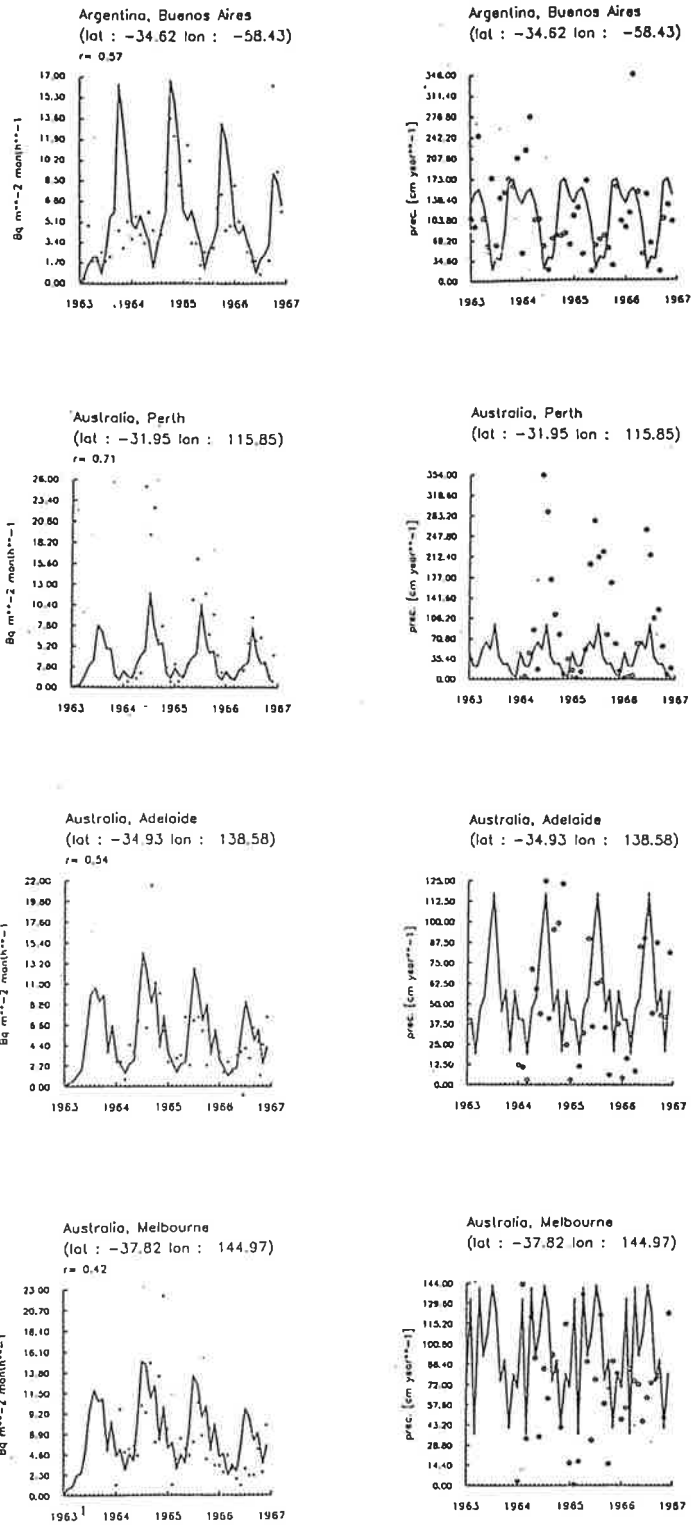


Abb.67 Monatliche ^{90}Sr - Deposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{ Monat}^{-1}$] von 1963 bis 1966 an vier Stationen in mittleren Breiten der Südhemisphäre (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte bezeichnen die Beobachtungen. Die Größe r gibt den Korrelationskoeffizienten zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen an. In der rechten Spalte ist die beobachtete (Kreise) und modellierte (durchgezogene Kurve) mittlere monatliche Niederschlagsrate [cm Jahr^{-1}] an den Stationen dargestellt. Die Modellniederschlagsrate verläuft zyklisch, da die ECMWF - Vorhersagen von 1990 für jedes der vier Simulationsjahre benutzt werden.

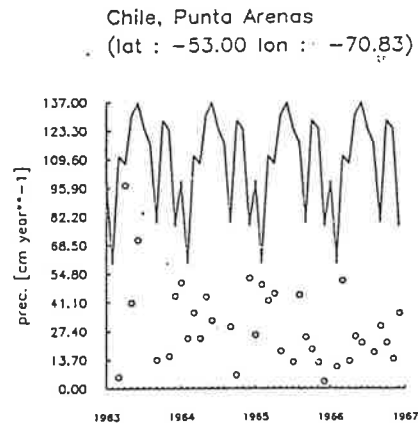
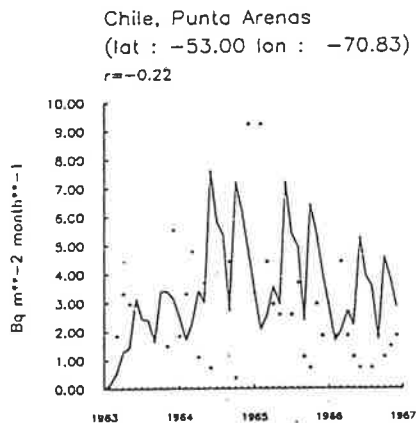
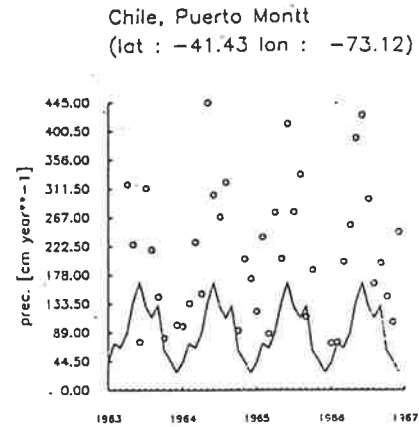
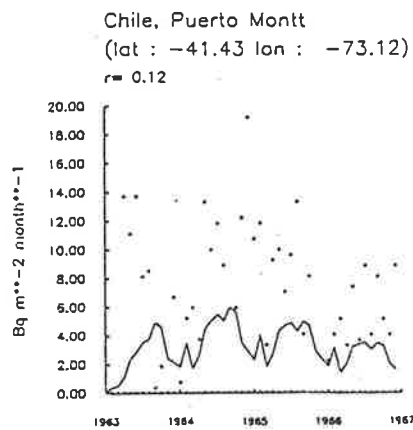


Abb.68 Monatliche ^{90}Sr - Deposition [$\text{Bq m}^{-2}\text{Monat}^{-1}$] von 1963 bis 1966 an zwei südamerikanischen Stationen (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte bezeichnen die Beobachtungen. Die Größe r gibt den Korrelationskoeffizienten zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen an. In der rechten Spalte ist die beobachtete (Kreise) und modellierte (durchgezogene Kurve) mittlere monatliche Niederschlagsrate [cm Jahr^{-1}] an den Stationen dargestellt. Die Modellniederschlagsrate verläuft zyklisch, da die ECMWF - Vorhersagen von 1990 für jedes der vier Simulationsjahre benutzt werden.

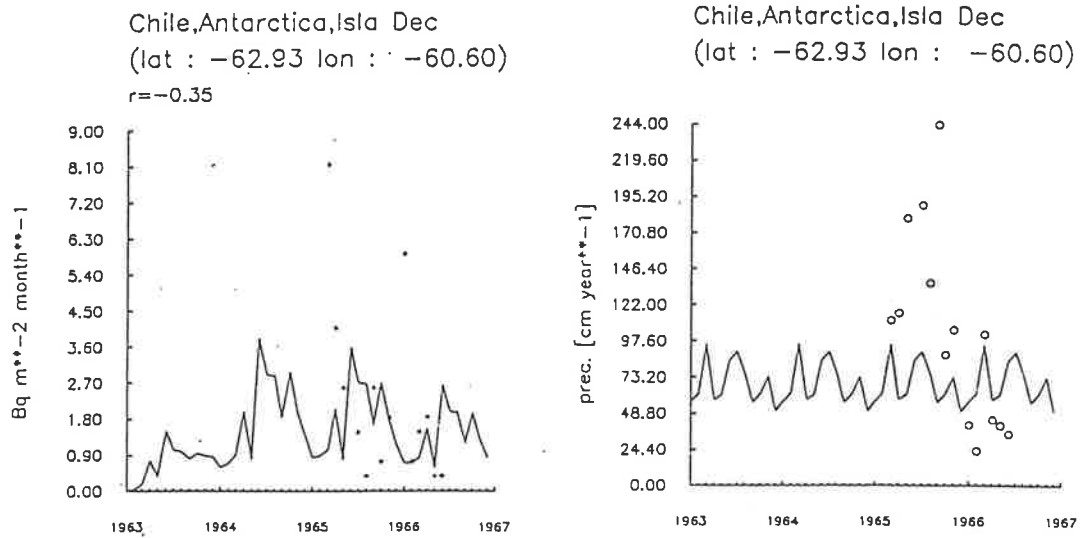


Abb.69 Monatliche ^{90}Sr - Deposition [$\text{Bq m}^{-2} \text{ Monat}^{-1}$] von 1963 bis 1966 an einer antarktischen Station (linke Spalte). Die durchgezogene Kurve beschreibt die Modellresultate, die Punkte bezeichnen die Beobachtungen. Die Größe r gibt den Korrelationskoeffizienten zwischen Modell- und Beobachtungsergebnissen an. In der rechten Spalte ist die beobachtete (Kreise) und modellierte (durchgezogene Kurve) mittlere monatliche Niederschlagsrate [cm Jahr^{-1}] an der Station dargestellt. Die Modellniederschlagsrate verläuft zyklisch, da die ECMWF - Vorhersagen von 1990 für jedes der vier Simulationsjahre benutzt werden.

^{10}Be gezeigt hat, scheint von allgemeiner Natur zu sein. Abweichungen zwischen der im Modell benutzten und der tatsächlichen Niederschlagsrate tragen hierzu ebenso bei wie die zu starken Vereinfachungen im nassen Depositionsschema, welche den Verhältnissen in der Antarktis möglicherweise nicht gerecht werden. Defizite in den ECMWF - Analysen (aufgrund der geringen Meßdatendichte, siehe Kapitel 5.3.5) können in diesem Zusammenhang ebenfalls eine Rolle spielen.

6 Schlußfolgerungen und Ausblick

Die in dieser Arbeit mit einem globalen, atmosphärischen Transportmodell durchgeführten Simulationen der natürlichen und künstlichen, wasserlöslichen, radioaktiven Tracer ^{210}Pb , ^7Be , ^{10}Be und ^{90}Sr sollten zwei Fragestellungen näher beleuchten :

1. Ist ein Parameterisierungsschema der nassen Deposition fähig den Auswaschprozeß von Substanzen mit unterschiedlicher Quellkonfiguration adäquat zu beschreiben, und wie sensitiv reagieren die Modellresultate auf Variationen in einem derartigen Parameterisierungsschema ?
2. Welche Erkenntnisse lassen sich aus der beobachteten Konzentrationsverteilung der radioaktiven Isotope über atmosphärische Transportprozesse gewinnen, und wie gut ist die Fähigkeit des Transportmodells diese wiederzugeben ?

Die unterschiedliche Quellkonfiguration dieser Tracer gestattet es, die ganze Palette atmosphärischer Transportprozesse zu studieren. Die Quellstärke und Quellverteilung dieser Substanzen ist dabei relativ genau bekannt. Innerhalb der Atmosphäre unterliegen sie außer dem radioaktiven Zerfall keinen chemischen Umwandlungen, und sie werden nur durch trockene und nasse Deposition aus der Atmosphäre entfernt.

Das aus dem Zerfall des ^{222}Rn hervorgehende ^{210}Pb entsteht bevorzugt in der kontinentalen, planetarischen Grenzschicht und erlaubt daher die Analyse von Transportvorgängen in der unteren Troposphäre. Die Anbindung der ^{210}Pb - Atome an Aerosole und die dem SO_2 bzw. den Sulfataerosolen ähnelnde Quellverteilung ermöglicht ferner eine Verwendung des ^{210}Pb als Tracer für diese Schwefelverbindungen. Das ^7Be und ^{10}Be , welche zu einem Drittel in der Troposphäre und zu zwei Drittel in der Stratosphäre erzeugt werden, dienen dem Studium troposphärischer Transportprozesse sowie der Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre. In diesem Zusammenhang ist die Bildung der Konzentrationsverhältnisse von $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ (zur Analyse troposphärischer Transportvorgänge) und $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ (zum Studium des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre) sehr nützlich. Das stratosphärische ^{90}Sr dient neben der Untersuchung von Transportprozessen innerhalb der Stratosphäre ebenfalls der Analyse des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre.

Das in dieser Arbeit verwendete Parameterisierungsschema der nassen Deposition von Kasibhatla et. al. (1991) vermag den Auswaschvorgang von diesen Substanzen mit unterschiedlicher Quellkonfiguration adäquat zu beschreiben. Für ^7Be und ^{10}Be resultieren höhere atmosphärische Lebenszeiten, weil diese Tracer erst später von Niederschlagsereignissen beeinflusst werden. Die ^{210}Pb bzw. ^7Be - Simulationen reagieren jedoch unter-

schiedlich sensitiv auf Parametervariationen im Schema von Kasibhatla et. al. (1991).

Die ^{210}Pb - Resultate sind relativ unempfindlich bezüglich dieser Veränderungen. Bei Reduzierung der Flüssigwasserwerte steigt die nasse Depositionsrates global um 5.2% an. Eine Vergrößerung der Skalenhöhen, d.h. der a priori vorgeschriebenen vertikalen Mächtigkeit des Niederschlagsereignisses, vergrößert die nasse Deposition nur um 0.2%. Der Auswascheffekt in der unteren Troposphäre ist offenkundig bereits sehr intensiv.

Die ^7Be - Resultate reagieren wesentlich empfindlicher auf die entsprechenden Parameterveränderungen. Die Reduzierung der Flüssigwasserwerte bewirkte mit einer um 7.9% anwachsenden nassen Depositionsrates noch ähnliche Veränderungen wie beim ^{210}Pb , jedoch steigt mit einer Vergrößerung der vertikalen Mächtigkeit des Niederschlagsereignisses die nasse Deposition global um fast 25% an. Dieses Ergebnis ist einleuchtend, da nun auch, aufgrund der Quellverteilung, ^7Be - reiche Luftmassen in größeren Höhen vom Niederschlag beeinflußt werden.

Im Vergleich zum Schema von Kasibhatla et. al. (1991) wäscht das Parameterisierungsschema von Mahlman und Moxim (1978) im Falle der ^{210}Pb - Aerosole um 2% schwächer und im Falle der ^7Be - Aerosole um 7% stärker aus. Das Schema von Mahlman und Moxim (1978) wäscht in der mittleren und oberen Troposphäre also stärker und in der unteren Troposphäre schwächer aus als das Schema von Kasibhatla et. al. (1991). Diese Tatsache resultiert aus den unterschiedlichen Annahmen über die Vertikalverteilung des Niederschlags. In Mahlman und Moxim (1978) wird nicht zwischen stratiformen und konvektivem Niederschlag unterschieden, sondern lediglich die Summe beider betrachtet. Das global vorgeschriebene Vertikalprofil der Tracerlebenszeit dürfte jedoch für den auf die untere und mittlere Troposphäre sich beschränkende stratiforme Niederschlag anders aussehen als für den, mitunter bis an die Tropopause reichenden, konvektiven Niederschlag.

Die in dieser Arbeit als Niederschlagsfelder benutzten, auf täglicher Basis durchgeführten, 36 - stündigen ECMWF - Vorhersagen des stratiformen und konvektiven Niederschlags dürften der zur Zeit bezüglich der zeitlichen und räumlichen Auflösung am besten geeignete Datensatz für Simulationen mit wasserlöslichen Tracern sein. Zur Zeit werden vom Deutschen Wetterdienst aus allen Niederschlagsbeobachtungen eines bestimmten Jahres globale Niederschlagsfelder erstellt. Ein Vergleich dieses Datensatzes mit den ECMWF - Vorhersagen sowie eine Gegenüberstellung der Modellresultate bei Verwendung dieser beiden Datensätze kann näheren Aufschluß darüber geben, inwieweit die Niederschlagsfelder selbst Einfluß auf die Güte der Modellergebnisse haben.

Die ECMWF - Niederschlagsvorhersagen liefern keine Informationen über den prozentualen Anteil der einzelnen Gitterboxen am Gesamtniederschlag aus der entsprechenden Luftsäule, d.h. es besteht nicht die Möglichkeit das Depositionsschema von Giorgi und Chameides (1986) zu benutzen, es sei denn, es werden a priori Annahmen über die Verti-

kalverteilung des Niederschlags getroffen. Um die Güte der Parameterisierungsschemata von Mahlman und Moxim (1978), Kasibhatla et. al. (1991) und Giorgi und Chameides (1986) auszutesten, müßten dreidimensionale Niederschlagsfelder eines atmosphärischen Zirkulationsmodells verwendet werden. Ein Vergleich der Transportmodellresultate liefert dann Aufschluß darüber, ob für die hier untersuchten Fragestellungen die relativ einfachen Ansätze von Mahlman und Moxim (1978) bzw. Kasibhatla et. al. (1991) ausreichen, oder ob das komplexere Schema von Giorgi und Chameides (1986) wesentlich bessere Resultate liefert.

Bezüglich der Wiedergabe atmosphärischer Transportprozesse wurden Defizite des Modells im Bereich der Arktis bzw. Antarktis deutlich.

Die modellierten arktischen ^{210}Pb - Konzentrationen bzw. Depositionsraten sind wesentlich höher als beobachtet, und der Jahresgang, welcher Parallelen zum Phänomen des arktischen Dunstes aufweist, wird vom Transportmodell erheblich unterschätzt. Eine Kombination von vier Faktoren (zu hohe arktische Niederschlagsraten, ein zu großer Aerosoltransport von den mittleren Breiten in die Arktis, ein für die tiefen Temperaturen der Arktis ungeeignetes Parameterisierungsschema der nassen Deposition, die Vernachlässigung räumlicher und zeitlicher Variation in der ^{222}Rn - Emission) wurde für diese Diskrepanz verantwortlich gemacht. Die Modellsimulationen haben gezeigt, daß der asiatische Kontinent mit ca. 34% am ^{210}Pb - Aerosoltransport in die Arktis beteiligt ist. Dieser relativ hohe Anteil in Kombination mit einer möglichen Überschätzung der asiatischen ^{222}Rn - Emission, insbesondere im Bereich der nördlichen Tundra - Region, könnte ein Verursacher der zu hohen Konzentrations- und Depositionswerte im Modell sein. Messungen der ^{222}Rn bzw. ^{210}Pb - Konzentration im nördlichen Asien könnten zur Klärung dieses Sachverhalts beitragen.

Außerhalb der Arktis vermag das Transportmodell die vertikalen und horizontalen ^{210}Pb - Aerosoltransporte im allgemeinen erfolgreich zu simulieren. Die besten Resultate werden an ozeanischen Stationen erzielt, da diese in quellfernen Regionen liegen und weniger durch lokale Effekte beeinflusst werden. Auch die Monsunzirkulation und der damit verbundene charakteristische Jahresgang der ^{210}Pb - Konzentration wird erfolgreich nachgebildet. Größere Probleme treten in küstennahen Regionen auf, da die hier herrschenden starken Gradienten in der Quellverteilung mit der groben horizontalen Auflösung des Transportmodells nur unzureichend erfaßt werden können. Eine Modellversion mit einer verdoppelten horizontalen Gitterpunktauflösung ist in Planung, so daß ihr Effekt auf die Modellresultate präzisiert werden kann.

Die Simulationen der Isotope ^7Be und ^{10}Be dienen primär der Untersuchung des Massenaustausches zwischen Stratosphäre und Troposphäre. Das Transportmodell prognostiziert Frühjahrsmaxima und Herbstminima des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$, dessen Größe ein Indikator für stratosphärische Luftmasseneinbrüche in die Troposphäre

ist. Die Modellresultate deuten auf einen maximalen Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre im Bereich der Frontalzone mit anschließendem advektivem Transport in Richtung der niederen Breiten hin. Das Transportmodell zeigt bezüglich der Frühjahrsmaxima und Herbstminima eine Symmetrie zwischen den Hemisphären, wobei südlich von ca. 40°S das Muster eines Frühjahrsmaximums in das eines Doppelmaximums (Winter und Frühling) übergeht. Diese Struktur wurde in den Beobachtungen des Konzentrationsverhältnisses $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ an der Georg-von-Neumayer Station nicht gefunden. Stattdessen zeigt sich ein Maximalwert dieses Verhältnisses im Spätsommer der Südhemisphäre (Januar bis März).

Da unabhängig davon auch die Simulationen des stratosphärischen ^{90}Sr diese Struktur liefern, während die ^{90}Sr - Beobachtungen im Gegensatz dazu wieder einen spätsommerlichen Maximalwert an antarktischen Stationen erkennen lassen, scheint sich hier ein allgemeines Defizit des Transportmodells herauszukristallisieren. Die Ursache könnte in den ECMWF - Niederschlagsvorhersagen zu suchen sein (siehe Abbildung 5) oder aber auch auf Defizite in den ECMWF - Analysedaten hinweisen, mit denen das Transportmodell angetrieben wird. Sehr hilfreich wäre in diesem Zusammenhang der Aufbau eines weltweiten Meßnetzes an ^{10}Be - Beobachtungsstationen um die Modellresultate auf breiterer Basis verifizieren zu können.

Wie bereits bei den ^{210}Pb - Simulationen zeigt sich auch in den ^{7}Be - Modellläufen ein zu schwacher Jahrgang im Bereich der Arktis. Die Saisonalität der advektiven Transporte von den mittleren Breiten in die Arktis wird offenkundig vom Modell falsch eingeschätzt.

Die ^{90}Sr - Simulationen haben gezeigt, daß das Modell in der Lage ist, den interhemisphärischen, stratosphärischen Massentransfer adäquat zu beschreiben (Halbwertszeit : 2.7 Jahre), während das Einmischen in die Troposphäre im Modell etwas langsamer geschieht (Halbwertszeit : 1.3 Jahre) als aus Beobachtungsanalysen geschlußfolgert (Halbwertszeit : ein Jahr). Der interhemisphärische Massentransport zwischen den Troposphären ist aufgrund des intensiven Auswaschens im Bereich der ITCZ sehr gering. Die Struktur eines Frühjahrsmaximums und Herbstminimums der ^{90}Sr - Bodenkonzentration bzw. Deposition kristallisiert sich sowohl aus den Beobachtungen als auch aus den Modellresultaten heraus. Dieses Muster der Saisonalität im Massenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre ähnelt sehr, wie oben bereits erwähnt, den Ergebnissen des $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ - Konzentrationsverhältnisses, d.h. auch die Diskrepanzen südlich von 40°S zwischen Modell und Beobachtungen treten wieder auf.

Die Verwendung von Massenflußfeldern aus einem atmosphärischen Zirkulationsmodell anstelle der ECMWF - Analysen zum Antrieb des Transportmodells könnte ein geeigneter Weg sein, Defizite in den ECMWF - Analysen südlich von 40°S als Ursache dieser

Diskrepanz zwischen Modell und Beobachtungen auszuschließen bzw. zu bestätigen.

Zusammenfassend kann man daher feststellen, daß es mit einem horizontal grob auflösenden Transportmodell, unter Verwendung relativ einfacher Ansätze zur Beschreibung der nassen Deposition, gelungen ist, die atmosphärischen Transportprozesse anhand einer Vielzahl von Tracern mit unterschiedlicher Quellkonfiguration aufzuzeigen, wobei es jedoch noch einer vermehrten Anstrengung bedarf, auch die Verhältnisse in der Arktis bzw. Antarktis korrekt wiederzugeben. Sowohl die Parameterisierungsschemata der nassen Deposition, die für die hier herrschenden Temperaturen möglicherweise zu simpel aufgebaut sind, als auch die ECMWF - Analysen bedürfen noch einer eingehenden Überprüfung. Ferner sind auch numerische Effekte als Ursache der Diskrepanz nicht auszuschließen, da die zonale Ausdehnung einer Gitterbox in diesem Bereich sehr klein wird.

Danksagung

Prof. K. Hasselmann danke ich, daß ich die Möglichkeit bekam, am Max - Planck - Institut für Meteorologie diese Promotionsarbeit anfertigen zu können.

Prof. M. Dunst sei für seine Bereitschaft gedankt, diese Arbeit zu begutachten. Ebenso sei Dr. M. Heimann für die Begutachtung und Betreuung dieser Arbeit sowie für die zahlreichen Anregungen, Kritiken und Bemerkungen gedankt.

Dem Deutschen Wetterdienst verdanke ich die problemlose Verfügbarkeit der meteorologischen Daten des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF) und der WMO - Niederschlagsbeobachtungen.

Dr. J. Feichter danke ich für seine Bereitschaft mir zahlreiche Konzentrations- und Depositionsdaten radioaktiver Isotope zur Verfügung zu stellen und ferner für zahlreiche Tips und Anregungen.

Dr. E. Roeckner, Dr. K. Arpe, U. Schulzweida, W. Welke und I. Jessel danke ich für ihre Unterstützung bei der Bearbeitung der ECMWF - Daten.

Dr. R.J. Larsen und Dr. R. Leifer vom Environmental Measurements Laboratory in New York danke ich für die rasche Bereitstellung der 7Be und ^{90}Sr - Beobachtungsdatensätze. Ebenso sei Dr. C. Johnson von der United Kingdom Atomic Energy Authority für seine Bereitschaft gedankt, ^{90}Sr - Beobachtungen zur Verfügung zu stellen.

Dr. D. Wagenbach von der Universität Heidelberg danke ich für die Übermittlung der Meßreihen der Georg-von-Neumayer Station.

Frau M. Grunert danke ich für die Anfertigung der Abbildung 1 dieser Arbeit.

J. Segschneider sei für seine Bereitschaft diese Arbeit korrekturlesen und die zahlreichen, nicht ausschließlich wissenschaftlichen Gespräche gedankt.

Last but not least danke ich meiner Frau und meinen Eltern für ihre Geduld und die moralische Unterstützung.

Literaturverzeichnis

- Abe, M., K. Kurotaki, S. Shibata, H. Takeshita, S. Abe, Trends analysis of past ten years : Changes of radioactive substances in the atmosphere at Chiba, Japan, International Symposium on Applications of Isotope Techniques in studying past and current environmental changes in the hydrosphere and the atmosphere, International Atomic Energy Agency, Wien, April 1993.
- Aegerter, S., N. Bhandari, Rama, A.S. Tamhane, ^7Be and ^{32}P in ground level air, *Tellus*, 18, 212 - 215, 1966.
- Arnold, J.R., H.A. Al-Salih, Beryllium-7 produced by cosmic rays, *Science*, 121, 451 - 453, 1955.
- Arpe, K., The hydrological cycle in the ECMWF short range forecasts, *Dynamics of Atmospheres and Oceans*, 16, 33 - 59, 1991.
- Barrie, L.A., R.M. Hoff, S.M. Daggupaty, The influence of mid-latitudinal pollution sources on haze in the canadian arctic, *Atm. Env.*, 15, No. 8, 1407 - 1419, 1981.
- Beer, J., A. Blinov, G. Bonani, R.C. Finkel, H.J. Hofman, B. Lehmann, H. Oeschger, A. Sigg, J. Schwander, T. Staffelbach, B. Stauffer, M. Suter, W. Wölfl, Use of ^{10}Be in polar ice to trace the 11-year cycle of solar activity, *Nature*, 347, 164 - 166, 1990.
- Bhandari, N., D. Lal, Rama, Stratospheric circulation studies based on natural and artificial radioactive tracer elements, *Tellus*, 18, 391 - 406, 1966.
- Bhandari, N., Transport of air in the stratosphere as revealed by radioactive tracers, *J. of Geophys. Res.*, 75, No. 15, 2927 - 2930, 1970.
- Bleichrodt, J.F., J. Blok, R.H. Dekker, On the spring maximum of radioactive fallout from nuclear test explosions, *J. of Geophys. Res.*, 66, No. 1, 135 - 141, 1961.
- Bleichrodt, J.F., E.R. van Abkoude, On the deposition of cosmic-ray- produced beryllium-7, *J. of Geophys. Res.*, 68, No. 18, 5283 - 5288, 1963.
- Bleichrodt, J.F., Mean tropospheric residence time of cosmic-ray- produced beryllium-7 at north temperate latitudes, *J. of Geophys. Res.*, 83, No. C6, 3058 - 3062, 1978.
- Blifford, I.H., L.B. Lockhart Jr., H.B. Rosenstock, On the natural radioactivity in the air, *J. of Geophys. Res.*, 57, No. 4, 499 - 509, 1952.
- Bolin, B., Döös, B.R., Jäger, J. (Ed.), The greenhouse effect, climatic change, and ecosystems, 541p, SCOPE 29, John Wiley & sons, 1986.
- Brodzinsky, R., B.K. Cantrell, R.M. Endlick, C.M. Bhumralkar, A long- range air pollution transport model for eastern north america - II. Nitrogen oxides, *Atm. Env.*,

18, 2361 - 2366, 1984.

Brost, R.A., M. Heimann, Parameterization of cloud transport of trace species in global 3-D models, in : Proceedings of 18th international technical meeting on air pollution modelling and its application, H. van Dop (Ed.), Plenum, New York, 1991.

Brost, R.A., J. Feichter, M. Heimann, Three - dimensional simulation of ^7Be in a global climate model, J. of Geophys. Res., 96, No. D12, 22423 - 22445, 1991.

Cambray, R.S., E.M.R. Fisher, G.S. Spicer, C.G. Wallace, T.J. Webber, Radioactive fallout in air and rain, Results to the middle of 1963, United Kingdom Atomic Energy Authority, Research group, report number 4392, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Berkshire, 1963.

Cambray, R.S., E.M.R. Fisher, G.S. Spicer, C.G. Wallace, T.J. Webber, Radioactive fallout in air and rain, Results to the middle of 1964, United Kingdom Atomic Energy Authority, Research group, report number 4687, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Berkshire, 1964.

Cambray, R.S., E.M.R. Fisher, W.L. Brooks, A. Hughes, G.S. Spicer, Radioactive fallout in air and rain, Results to the middle of 1965, United Kingdom Atomic Energy Authority, Research group, report number 4997, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Berkshire, 1965.

Cambray, R.S., E.M.R. Fisher, W.L. Brooks, D.H. Peirson, Radioactive fallout in air and rain, Results to the middle of 1966, United Kingdom Atomic Energy Authority, Research group, report number 5260, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Berkshire, 1966.

Cambray, R.S., E.M.R. Fisher, W.L. Brooks, D.H. Peirson, Radioactive fallout in air and rain, Results to the middle of 1967, United Kingdom Atomic Energy Authority, Research group, report number 5575, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Berkshire, 1967.

Chang, J.S., R.A. Brost, I.S.A. Isaksen, S. Madronich, P. Middleton, W.R. Stockwell, C.J. Walcek, A three-dimensional eulerian acid deposition model : Physical concepts and formulation, J. of Geophys. Res., 92, No. D12, 14681 - 14700, 1987.

Commissariat a l'energie atomique, Synthese Mensuelle des Mesures de radioactivite effectuees dans l'environnement des sites du groupe CEA, ed : Departement de protection sanitaire, rapport DPS 90/001/3, 1990a.

Commissariat a l'energie atomique, Synthese Mensuelle des Mesures de radioactivite effectuees dans l'environnement des sites du groupe CEA, ed : Departement de protection sanitaire, rapport DPS 90/001/4, 1990b.

Commissariat a l'energie atomique, Synthese Mensuelle des Mesures de radioactivite effectuees dans l'environnement des sites du groupe CEA, ed : Departement de protection

sanitaire, rapport DPS 90/001/5, 1990c.

Creelius, E.A., Prediction of marine atmospheric deposition rates using total ^7Be deposition velocities, *Atm. Env.*, 15, 579 - 582, 1981.

Cruikshank, A.J., G. Cowper, W.E. Grammitt, Production of ^7Be in the atmosphere, *Can. J. Chem.*, 34, 214 - 219, 1956.

Danielsen, E.F. Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity, *J. Atm. Sci.*, 25, 502 - 518, 1968.

Dibb, J.E., Atmospheric deposition of beryllium-7 in the Chesapeake Bay region, *J. of Geophys. Res.*, 94, No. D2, 2261 - 2265, 1989.

Dörr, H., B. Kromer, I. Levin, K.O. Münnich, H.J. Volpp, CO_2 and Radon-222 as tracers for atmospheric transport, *J. of Geophys. Res.*, 88, No. C2, 1309 - 1313, 1983.

Dörr, H., Investigation of the gas and water budgets in the unsaturated soil layer using carbon dioxide and Radon-222 (in Deutsch), Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 1984.

Dovland, H., A. Eliassen, Technical note : Dry deposition on a snow surface, *Atm. Env.*, 10, 783 - 785, 1976.

Drevinsky, P.J., J.T. Wasson, E.C. Couble, N.A. Dimond, ^7Be , ^{32}P , ^{33}P , and ^{35}S : Stratospheric concentrations and artificial production, *J. of Geophys. Res.*, 69, No. 8, 1457 - 1467, 1964.

Dutkiewicz, V.A., L. Husain, Determination of stratospheric ozone at ground level using ^7Be /ozone ratios, *Geophys. Res. Lett.*, 6, No. 3, 171 - 174, 1979.

Dutkiewicz, V.A., L. Husain, Stratospheric and tropospheric components of ^7Be in surface air, *J. of Geophys. Res.*, 90, No. D3, 5783 - 5788, 1985.

Ehhalt, D.H., Turnover times of ^{137}Cs and HTO in the troposphere and removal rates of natural aerosol particles and water vapor, *J. of Geophys. Res.*, 78, No. 30, 7076 - 7086, 1973.

Fabian, P., W.F. Libby, C.E. Palmer, Stratospheric residence time and interhemispheric mixing of strontium-90 from fallout in rain, *J. of Geophys. Res.*, 73, No. 12, 3611 - 3616, 1968.

Fay, J.A., J.J. Rosenzweig, An analytical diffusion model for long distance transport of air pollutants, *Atm. Env.*, 14, 355 - 365, 1980.

Feely, H.W., H. Seitz, R.J. Lagomarsino, P.E. Biscaye, Transport and fallout of stratospheric radioactive debris, *Tellus*, 18, 316 - 328, 1966.

Feely, H.W., L. Toonkel, R.J. Larsen, Radionuclides and trace elements in surface air, Environmental Measurements Laboratory, US Department of Energy, New York, NY,

Appendix C of EML - report 395, 1981.

Feely, H.W., R.J. Larsen, C.G. Sanderson, Annual report of the surface air sampling program, Environmental Measurements Laboratory, US Department of Energy, New York, NY, USDOE report, report EML - 440, 1985.

Feely, H.W., R.J. Larsen, C.G. Sanderson, Annual report of the surface air sampling program, July 1988, Environmental Measurements Laboratory, US Department of Energy, New York, NY, Report number EML-497, 1988.

Feichter, J., R.A. Brost, M. Heimann, Three - dimensional modeling of the concentration and deposition of ^{210}Pb aerosols, J. of Geophys. Res., 96, 22447 - 22460, 1991.

Freudenthal, P.C., Strontium-90 concentrations in surface air : North america versus atlantic ocean from 1966 to 1969, J. of Geophys. Res., 75, No. 21, 4089 - 4096, 1970.

Friedlander, M.W., Cosmic rays : Tracking particles from outer space, Harvard University press, Cambridge, Mass., 160pp, 1989.

Giorgi, F., A particle dry deposition parameterization scheme for use in tracer transport models, J. of Geophys. Res., 91, No. D9, 9794 - 9806, 1986.

Giorgi, F., W.L. Chameides, Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model, J. of Geophys. Res., 91, No. D13, 14367 - 14376, 1986.

Gopalakrishnan, S., C. Rangarajan, L.U. Joshi, D.K. Kapoor, C.D. Eapen, Measurements on airborne and surface fallout radioactivity in India, Government of India, Atomic Energy Commission, Bhabha Atomic Research Centre, Bombay, India, 1973.

Graustein, W.C., K.K. Turekian, ^{210}Pb and ^{137}Cs in air and soils measure the rate and vertical profile of aerosol scavenging, J. of Geophys. Res., 91, No. D13, 14355 - 14366, 1986.

Hardy, E.P., M.W. Meyer, J.S. Allen, L.T. Alexander, Strontium-90 on the earth's surface, Nature, 219, 584 - 587, 1968.

Health and Safety Laboratory, Flight data and results of radiochemical analyses of filter samples collected during 1961 and 1962 under project stardust, report HASL-153, 1. January 1965.

Health and Safety Laboratory, Flight data and results of radiochemical analyses of filter samples collected during 1963 under project stardust, report HASL-168, 15. March 1966.

Health and Safety Laboratory, Flight data and results of radiochemical analyses of filter samples collected during 1964 under project stardust, report HASL-169, 15. March 1966.

Health and Safety Laboratory, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-

- 173, 1. October 1966.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-174, 1. January 1967.
- Health and Safety Laboratory**, Flight data and results of radiochemical analyses of filter samples collected during 1965 under project stardust, report HASL-176, 1. July 1966.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-181, 1. April 1967.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-182, 1. July 1967.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-183, 1. October 1967.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-193, 1. April 1968.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-210, 1. July 1969.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-217, 1. January 1970.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-242, 1. April 1971.
- Health and Safety Laboratory**, Fallout program, Quarterly summary report, HASL-243, 1. July 1971.
- Health and Safety Laboratory**, Final tabulation of monthly ^{90}Sr fallout data : 1954 - 1976, report HASL-329, 1977.
- Heimann, M., C.D. Keeling**, A three-dimensional model of atmospheric CO_2 transport based on observed winds : 2. Model description and simulated tracer experiments, Geophysical Monograph, 55, 237 - 275, 1989.
- Heimann, M., J. Feichter**, A comparison of three-dimensional atmospheric transport models by means of simulations of radon-222, GLOMAC - report No. 2, Meteorologisches Institut der Universität Hamburg, Report No. 8 (Large scale atmospheric modeling), 1990.
- Heimann, M., P. Monfray, G. Polian**, Modeling the long-range transport of ^{222}Rn to subantarctic and antarctic areas, Tellus, 42B, 83 - 99, 1990.
- Hillas, A.M.**, Cosmic rays, Pergamon press, New York, 297pp, 1972.
- Hötzl, H., G. Rosner, R. Winkler**, Correlation of ^7Be concentrations in surface air

- and precipitation with the solar cycle, *Naturwissenschaften*, 78, 215 - 217, 1991.
- Holton, J.R.**, An introduction to dynamic meteorology, Second edition, International Geophysics Series, Volume 23, Academic Press, New York, San Francisco, London, 1979.
- Jaeger, L.**, Monatskarten des Niederschlags für die ganze Erde, *Berichte des Deutschen Wetterdienstes*, Nr. 139 (Band 18), 1 - 38, 1976.
- Joussaume, S.**, Three-dimensional simulations of the atmospheric cycle of desert dust particles using a general circulation model, *J. of Geophys. Res.*, 95, No. D2, 1909 - 1941, 1990.
- Junge, C.E., P.E. Gustafson**, On the distribution of sea salt over the United States and its removal by precipitation, *Tellus*, 9, 164 - 173, 1957.
- Junge, C.E.**, Air chemistry and radioactivity, Academic Press, New York, 1963.
- Juzdan, Z.R.**, Worldwide deposition of ^{90}Sr through 1985, Environmental Measurements Laboratory, US Department of Energy, New York, NY, EML - report 515, 1988.
- Kasibhatla, P.S., H. Levy II, W.J. Moxim, W.L. Chameides**, The relative impact of stratospheric photochemical production on tropospheric NO_y levels : A model study, *J. of Geophys. Res.*, 96, No. D10, 18631 - 18646, 1991.
- Kolb, W.**, Radionuclide concentrations in ground-level air from 1980 to 1983 in north Germany and north Norway, *Physikalisch - Technische Bundesanstalt, Bericht Ra-15*, Braunschweig, 1984.
- Kolb, W.**, Radionuclide concentrations in ground-level air from 1984 to mid 1986 in north Germany and north Norway ; Influence of the Chernobyl accident, *Physikalisch - Technische Bundesanstalt, Bericht Ra-18*, Braunschweig, 1986.
- Kolb, W.**, Radionuclide concentrations in ground-level air from 1986 to 1987 in north Germany and north Norway, *Physikalisch - Technische Bundesanstalt, Bericht PTB-Ra-21*, Braunschweig, 1988.
- Kolb, W.**, Radionuclide concentrations in ground-level air from 1988 to 1989 in north Germany and north Norway, *Physikalisch - Technische Bundesanstalt, Bericht PTB-Ra-25*, Braunschweig, 1990.
- Krey, P.W.**, Strontium-90 concentrations and stratospheric transport, *J. of Geophys. Res.*, 72, No. 12, 2987 - 2996, 1967.
- Lal, D., Rama, P.K. Zutski**, Radioisotopes ^{32}P , ^7Be , and ^{35}S in the atmosphere, *J. of Geophys. Res.*, 65, No. 2, 669 - 674, 1960.
- Lal, D., B. Peters**, Cosmic ray produced radioactivity on the earth, *Handbuch der Physik*, 46, 551 - 612, 1967.
- Lal, D.**, ^{10}Be in polar ice : Data reflect changes in cosmic ray flux or polar meteorology,

Geophys. Res. Lett., 14, No. 8, 785 - 788, 1987.

Lambert, G., G. Polian, J. Sanak, B. Ardouin, A. Buisson, A. Jegou, J.C. Le Roulley, Cycle du radon et de ses descendants : application à l' étude des échanges troposphère - stratosphère, Ann. Géophys., 38, 497 - 531, 1982.

Lambert, G., J.-C. Le Roulley, M. Kritz, Box model for radon transfers into the stratosphere, Tellus, 42B, 135 - 141, 1990a.

Lambert, G., B. Ardouin, J. Sanak, Atmospheric transport of trace elements toward antarctica, Tellus, 42B, 76 - 82, 1990b.

Larsen, R.J., Worldwide deposition of ^{90}Sr through 1983, Environmental Measurements Laboratory, US Department of Energy, New York, NY, EML - report 444, 1985.

Larsen, R.J., Z.R. Juzdan, Worldwide deposition of ^{90}Sr through 1984 Environmental Measurements Laboratory, US Department of Energy, New York, NY, EML - report 457, 1986.

Larsen, R.J., C.G. Sanderson, EML surface air sampling program, 1989 data, in : USDOE report, EML-541, Environmental Measurements Laboratory, U.S. Department of Energy, New York, 1991.

Legates, D.R., C.J. Willmott, Mean seasonal and spatial variability in gauge-corrected, global precipitation, Int. Journal of Clim., 10, 111 - 127, 1990.

Levy II, H., J.D. Mahlman, W.J. Moxim, A stratospheric source of reactive nitrogen in the unpolluted troposphere, Geophys. Res. Lett., 7, No. 6, 441 - 444, 1980.

Levy II, H., W.J. Moxim, Fate of US and Canadian combustion nitrogen emissions, Nature, 328, 414 - 416, 1987.

Levy II, H., W.J. Moxim, Simulated global distribution and deposition of reactive nitrogen emitted by fossil fuel combustion, Tellus, 41B, 256 - 271, 1989.

Liu, S.C., J.R. McAfee, R.J. Cicerone, Radon 222 and tropospheric vertical transport, J. of Geophys. Res., 89, No. D5, 7291 - 7297, 1984.

Lockhart, L.B., Atmospheric radioactivity in south america and antarctica, J. of Geophys. Res., 65, No. 12, 3999 - 4005, 1960.

Lockhart, L.B., R.A. Baus, R.L. Patterson, A.W. Saunders, Radiochemical analyses of fission debris in the air along the 80th meridian, west, J. of Geophys. Res., 65, No. 6, 1711 - 1722, 1960a.

Lockhart, L.B., R.L. Patterson, A.W. Saunders, R.W. Black, Fission product radioactivity in the air along the 80th meridian (west) during 1959, J. of Geophys. Res., 65, No. 12, 3987 - 3997, 1960b.

Louis, J.F., A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, Boundary

Layer Meteorology, 17, 187 - 202, 1979.

Machta, L., R.J. List, Analysis of stratospheric strontium-90 measurements, J. of Geophys. Res., 64, No. 9, 1267 - 1276, 1959.

Mahlman, J.D., W.J. Moxim, Tracer simulation using a global general circulation model : Results from a midlatitude instantaneous source experiment, J. of Atm. Sci., 35, 1340 - 1374, 1978.

Marenco, A., J. Fontan, Etude des variations des ^7Be , ^{32}P , ^{90}Sr , ^{210}Pb et ^{210}Po dans la troposphère, Tellus, 26, 386 - 401, 1974.

Martell, E.A., Enhanced ion production in convective storms by transpired radon isotopes and their decay products, J. of Geophys. Res., 90, No. D4, 5909 - 5916, 1985.

Mason, B.J., The physics of clouds, Oxford University press, New York, 1957.

Matsushita, S., H. Campbell, Physics of geomagnetic phenomena, Volume II, Academic Press, New York und London, 1329ff., 1967.

Mattsson, R., Seasonal variation of short-lived radon progeny, ^{210}Pb and ^{210}Po , in ground level air in Finland, J. of Geophys. Res., 75, 1741 - 1744, 1970.

McHargue, L.R., P.E. Damon, The global beryllium 10 cycle, Rev. of Geophys., 29, 141 - 158, 1991.

Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi, T. Kanazawa, Radioactive fallout in Japan and its bearings on meteorological conditions, Papers Meteorol. and Geophys. (Tokio), 11, 151 - 158, 1960.

Moore, H.E., S.E. Poet, E.A. Martell, ^{222}Rn , ^{210}Pb , ^{210}Bi , and ^{210}Po profiles and aerosol residence times versus altitude, J. of Geophys. Res., 78, No. 30, 7065 - 7075, 1973.

Nijampurkar, V.N., H.B. Clausen, A century old record of lead-210 fallout on the greenland ice sheet, Tellus, 42B, 29 - 38, 1990.

O'Brien, K., Secular variations in the production of cosmogenic isotopes in the earth's atmosphere, J. of Geophys. Res., 84, No. A2, 423 - 431, 1979.

Peng, T.H., W.S. Broecker, G.G. Mathieu, Y.H. Li, A.E. Bainbridge, Radon evasion rates in the atlantic and pacific oceans as determined during the Geosecs program, J. of Geophys. Res., 84, No. C5, 2471 - 2486, 1979.

Penner, J.E., C.S. Atherton, J. Dignon, S.J. Ghan, J.J. Walton, Tropospheric nitrogen : A three-dimensional study of sources, distributions, and deposition, J. of Geophys. Res., 96, No. D1, 959 - 990, 1991.

Pereira, E.B., D.J.R. Nordemann, S.C. Wofsy, S. Trumbore, Vertical radon concentration profiles over the Brazilian amazon basin during the wet season, EOS, 69,

No. 16, 1988.

Poet, S.E., H.E. Moore, E.A. Martell, Lead-210, Bismuth-210, and Polonium-210 in the atmosphere : Accurate ratio measurement and application to aerosol residence time determination, *J. of Geophys. Res.*, 77, No. 33, 6515 - 6527, 1972.

Polian, G., G. Lambert, B. Ardouin, A. Jegou, Long-range transport of continental radon in subantarctic and antarctic areas, *Tellus*, 38B, 178 - 189, 1986.

Pruppacher, H.R., J.D. Klett, *Microphysics of clouds and precipitation*, Reidel, Dordrecht, 1978.

Rahn, K.A., Relative importances of north america and eurasia as sources of arctic aerosol, *Atm. Env.*, 15, No. 8, 1447 - 1455, 1981.

Raisbeck, G.M., F. Yiou, M. Fruneau, J.M. Loiseaux, M. Lieuvin, J.C. Ravel, Cosmogenic $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ as a probe of atmospheric transport processes, *Geophys. Res. Lett.*, 8, No. 9, 1015 - 1018, 1981.

Rangarajan, C., SMT, S. Gopalakrishnan, Seasonal variation of Beryllium-7 relative to Caesium-137 in surface air at tropical and sub-tropical latitudes, *Tellus*, 22, 115 - 121, 1970.

Reiter, E.R., W. Carnuth, H.J. Kanter, K. Pötzl, R. Reiter, R. Sladkovic, Measurements of stratospheric residence times, *Arch. Met. Geoph. Biokl., Ser. A*, 24, 41 - 51, 1975

Reiter, R., R. Sladkovic, K. Pötzl, W. Carnuth, H.J. Kanter, Studies on the influx of stratospheric air into the lower troposphere using cosmic-ray produced radionuclides and fallout, *Arch. Met. Geoph. Biokl., Ser. A*, 20, 211 - 246, 1971.

Reiter, R., K. Munzert, H.J. Kanter, K. Pötzl, Cosmogenic radionuclides and ozone at a mountain station at 3.0 km a.s.l., *Arch. Met. Geoph. Biokl., Ser. B*, 32, 131 - 160, 1983.

Rodhe, H., P. Crutzen, A. Vanderpol, Formation of sulfuric and nitric acid in the atmosphere during long-range transport, *Tellus*, 33, 132 - 141, 1981.

Russell, G.L., J.A. Lerner, A new finite-differencing scheme for the tracer transport equation, *J. of Appl. Met.*, 20, No. 12, 1483 - 1498, 1981.

Schumann, G., M. Stoepler, Beryllium 7 in the atmosphere, *J. of Geophys. Res.*, 68, No. 13, 3827 - 3830, 1963.

Sehmel, G.A., Particle and gas dry deposition : A review, *Atm. Env.*, 14, 983 - 1011, 1980.

Shannon, J.D., A model of regional long-term average sulfur atmospheric pollution,

- surface removal, and net horizontal flux, *Atm. Env.*, 15, 689 - 701, 1981.
- Slinn, S.A., W.G.N. Slinn**, Predictions for particle deposition on natural waters, *Atm. Env.*, 14, 1013 - 1016, 1980.
- Slinn, W.G.N.**, Formulation and a solution of the diffusion - deposition - resuspension problem, *Atm. Env.*, 10, 763 - 768, 1976.
- Slinn, W.G.N., L. Hasse, B.B. Hicks, A.W. Hogan, D. Lal, P.S. Liss, K.O. Munnich, G.A. Sehmel, O. Vittori**, Review paper : Some aspects of the transfer of atmospheric trace constituents past the air - sea - interface, *Atm. Env.*, 12, 2055 - 2087, 1978.
- Small, S.H.**, Wet and dry deposition of fallout materials at Kjeller, *Tellus* 12, 308 - 314, 1959.
- Staley, D.O.**, Strontium-90 in surface air and the stratosphere : Some interpretations of the 1963-75 data, *J. Atm. Sci.*, 39, 1571 - 1590, 1982.
- Tiedtke, M.**, Parameterization of cumulus convection in large-scale models, Physically-based modeling and simulation of climate and climate change, M. Schlesinger, Ed., D. Reidel, 375 - 431, 1988.
- Tiedtke, M.**, A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Weath. Rev.*, 117, 1779 - 1800, 1989.
- Tiedtke, M.**, Aspects of cumulus parameterization, ECMWF seminar : Tropical extra-tropical interactions, European centre for medium-range weather forecasts, Reading, U.K., 1990.
- Todd, J.F., G.T.F. Wong, C.R. Olsen, I.L. Larsen**, Atmospheric depositional characteristics of Beryllium-7 and Lead-210 along the southeastern Virginia coast, *J. of Geophys. Res.*, 94, No. D8, 11106 - 11116, 1989.
- Trenberth, K.E., J.G. Olson**, ECMWF global analyses 1979 - 1986 : Circulation statistics and data evaluation, National Center for Atmospheric Research, Technical note NCAR/TN-300+STR, 1 - 94, 1988.
- Tsunogai, S., T. Kurata, T. Suzuki, K. Yokota**, Seasonal variation of atmospheric ^{210}Pb and Al in the western north pacific region, *J. of Atm. Chem.*, 7, 389 - 407, 1988.
- Turekian, K.K., Y. Nozaki, L.K. Benninger**, Geochemistry of atmospheric radon and radon products, *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, 5, 227 - 255, 1977.
- Turekian, K.K., L.K. Benninger, E.P. Dion**, ^7Be and ^{210}Pb total deposition fluxes at New Haven, Connecticut and at Bermuda, *J. of Geophys. Res.*, 88, No. C9, 5411 - 5415, 1983.
- Viezee, W., H.B. Singh**, The distribution of beryllium-7 in the troposphere : Implications on stratospheric/tropospheric air exchange, *Geophys. Res. Lett.*, 7, No. 10, 805 -

808, 1980.

Volchok, H.L., Distribution of Strontium-90 in surface air during 1963, *Nature*, 206, 1031 - 1033, 1965.

Wagenbach, D., Universität Heidelberg, private Mitteilung, 1993.

Warneck, P., Chemistry of the natural atmosphere, Vol. 41, International Geophysics Series, Academic Press Inc., San Diego, California, 484 - 542, 1988.

Wilgain, S., E. Picciotto, W. De Breuck, Strontium-90 fallout in antarctica, *J. of Geophys. Res.*, 70, No. 24, 6023 - 6032, 1965.

Wilkening, M.H., W.E. Clements, Radon-222 from the ocean surface, *J. of Geophys. Res.*, 80, No.27, 3828 - 3830, 1975.

Wolff, G.T., M.A. Ferman, P.R. Monson, The distribution of beryllium-7 within high-pressure systems in the eastern United States, *Geophys. Res. Lett.*, 6, No. 8, 637 - 639, 1979.

Young, J.A., W.B. Silker, Aerosol deposition velocities on the pacific and atlantic oceans calculated from ^7Be measurements, *Earth and Planetary Science Letters*, 50, 92 - 104, 1980.

MPI Examensarbeit-Referenz:

- | | |
|--|--|
| 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 Zirkumpolarstromes
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
Meeresoberflächentemperatur 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 Zirkulationsmodell
Uwe Mikolajewicz |
| EXAMENSARBEIT Nr. 11
Februar 1991 | Bildung und Transport von Aerosolteilchen und ihre
Bedeutung für den Strahlungshaushalt
Ingrid Schult |
| EXAMENSARBEIT Nr. 12
März 1991 | Strahlungsübertragung in klaren Atmosphären
im IR mit k-Verteilungs- und Linie-für-Linie Modellen
Heinz-Dieter Hollweg |
| EXAMENSARBEIT Nr. 13
November 1991 | Die bodennahe Luftströmung über inhomogenen Oberflächen
Martin Claußen |
| EXAMENSARBEIT Nr. 14
März 1992 | Windinduzierte interannuale Variabilität in der
Warmwassersphäre von 1981 bis 1987
Teil II: Fluktuationen im Kohlenstoffkreislauf
Arne M. E. Winguth |

EXAMENSARBEIT Nr. 15
Dezember 1992

**Fernerkundung der optischen Eigenschaften von Seen
mit Landsat 5 Thematic Mapper**
Waltraud Manschke

EXAMENSARBEIT Nr. 16
Juli 1993

**Baroklin instabile Wellen der Atmosphäre:
Empirisch abgeleitete Moden im Vergleich
zu quasi-geostrophischer Theorie**
Reiner Schnur

EXAMENSARBEIT Nr. 17
September 1993

**Messung des Wasserdampfes in der konvektiven
Grenzschicht mit DIAL und RADAR-RASS**
Christoph Senff

EXAMENSARBEIT Nr. 18
November 1993

**Zur saisonalen Variation des ozeanischen
Kohlendioxidpartialdrucks**
Katharina D. Kurz

EXAMENSARBEIT Nr. 19
Januar 1994

**Dynamisch-stochastische Vorhersage-Experimente
mit Modellen der allgemeinen Zirkulation
für einen Zeitraum von 10 Tagen bis 100 Jahren**
Ulrich Cubasch

EXAMENSARBEIT Nr. 20
Februar 1994

**Deposition radioaktiver Tracer in einem Transportmodell
der Atmosphäre**
Stefan Rehfeld

ISSN 0938-5177