

**Zur Initiierung der Eisphase in  
Zirruswolken: Numerische Simulationen von  
Gefrierprozessen in einer Aerosolkammer  
und atmosphärische Implikationen**

Dissertation  
der Fakultät für Physik  
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von  
Werner Haag

angefertigt am  
Institut für Physik der Atmosphäre  
DLR-Oberpfaffenhofen

Oberpfaffenhofen, 30. September 2003

Gutachter der Dissertation:

Erster Gutachter: Priv.Doz. Dr. Bernd Kärcher

Zweiter Gutachter: Prof. Dr. Joseph Egger

Tag der mündlichen Prüfung: 16. Januar 2004

## Zusammenfassung

In dieser Dissertation werden Bildungsprozesse und mikrophysikalische Eigenschaften von Zirruswolken mittels numerischer Simulationen untersucht. Mit einem mikrophysikalischen Modell werden zunächst Berechnungen der Eisbildungsprozesse unter den thermodynamischen Bedingungen in einer Aerosolkammer durchgeführt. Es erfolgt dabei eine weitreichende Interpretation der Kammerexperimente für homogenes Gefrieren unterkühlter Lösungstropfen und die Überprüfung der Anwendbarkeit der verwendeten Theorien auf reale atmosphärische Bedingungen. Anschließend werden atmosphärische Implikationen durch Modellrechnungen unter Verwendung von Trajektorien aus einem globalen Modell untersucht. Diese Untersuchungen zeigen zum einen, daß die Natur der bei der Zirrusbildung aktiven Gefriermechanismen durch Analyse von Häufigkeitsverteilungen der relativen Feuchte außerhalb und innerhalb von Zirruswolken aus *in-situ*-Messungen erschlossen werden kann. Zum anderen wird durch Überlagerung synoptischer Trajektorien mit hochfrequenten Temperaturoszillationen gezeigt, daß die Eisinitiierung in dominierendem Umfang von mesoskaliger Variabilität vertikaler Luftbewegungen kontrolliert wird. Schließlich wird demonstriert, daß wichtige Zirruseigenschaften in vergleichbarem Umfang durch Unterschiede in den Gefriereigenschaften der Aerosolpartikel und durch moderate Änderungen der dynamischen Variabilität modifiziert werden können.



# Inhaltsverzeichnis

|   |            |
|---|------------|
| <b>Zusammenfassung</b>  | <b>iii</b> |
| <b>1 Einleitung</b>   | <b>1</b>   |
| <b>2 Theoretischer Hintergrund</b>                                      | <b>9</b>   |
| 2.1 Partikelwachstum und Sedimentation . . . . .                        | 9          |
| 2.2 Klassische Gefriertheorie . . . . .                                 | 14         |
| 2.3 Aktivitätsparametrisierung für homogenes Gefrieren . . . . .        | 17         |
| 2.4 Anpassung für heterogenes Gefrieren . . . . .                       | 19         |
| <b>3 Modellsystem APSC</b>  | <b>21</b>  |
| 3.1 Allgemeines und Hauptmerkmale . . . . .                             | 21         |
| 3.1.1 Partikeltypen . . . . .   | 21         |
| 3.1.2 Größenverteilung und Gitterstrukturen . . . . .                   | 22         |
| 3.2 Physikalische Prozesse . . . . .                                    | 25         |
| 3.2.1 Massenerhaltung und Dynamik . . . . .                             | 25         |
| 3.2.2 Mikrophysik . . . . .   | 26         |
| 3.3 Numerische Lösungsschemata . . . . .                                | 28         |
| <b>4 Interpretation der AIDA-Gefrierexperimente</b>                     | <b>31</b>  |
| 4.1 Die Aerosolkammer AIDA . . . . .                                    | 31         |
| 4.1.1 Anlagentechnik, Aerosolerzeugung und Meßgeräte . . . . .          | 31         |
| 4.1.2 Experimentelle Methode und kammer-spezifische Einflüsse . . . . . | 33         |
| 4.2 Homogenes Gefrieren von wäßrigen Schwefelsäurelösungen . . . . .    | 36         |
| 4.2.1 Modellierung . . . . .  | 36         |
| 4.2.2 Fallstudie: Experiment bei 202 K . . . . .                        | 37         |
| 4.2.3 Experimente in anderen Temperaturbereichen . . . . .              | 48         |
| 4.2.4 Sensitivitätsanalysen . . . . .                                   | 52         |
| 4.3 Kurzzusammenfassung . . . . .                                       | 57         |
| <b>5 Statistik der relativen Feuchte</b>                                | <b>59</b>  |
| 5.1 Häufigkeitsverteilung der relativen Feuchte . . . . .               | 59         |
| 5.1.1 Kontrollierende Faktoren . . . . .                                | 59         |
| 5.1.2 Trajektorien und mikrophysikalische Simulationen . . . . .        | 63         |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 5.1.3    | Zusammenhang zwischen relativer Feuchte und der Bildung von Zirren | 65         |
| 5.2      | Vergleich mit <i>in-situ</i> -Messungen                            | 69         |
| 5.2.1    | Datenbehandlung  | 69         |
| 5.2.2    | Eisinitiierung   | 71         |
| 5.2.3    | Gefriermechanismus   | 74         |
| 5.3      | Kurzzusammenfassung  | 76         |
| <b>6</b> | <b>Zirrus-Simulationen</b>   | <b>79</b>  |
| 6.1      | Problemstellung und Ziele  | 79         |
| 6.2      | Beschreibung der Modellsimulationen                                | 80         |
| 6.2.1    | FLEXPART-Trajektorien  | 80         |
| 6.2.2    | APSC-Simulationen  | 83         |
| 6.2.3    | Relative Feuchte und Auftrittshäufigkeit von Zirren                | 84         |
| 6.2.4    | Berücksichtigung mesoskaliger Schwerewellen                        | 86         |
| 6.2.5    | Exemplarische Zirrus-Simulationen                                  | 89         |
| 6.3      | Statistik der relativen Feuchte                                    | 91         |
| 6.4      | Statistik der Eispartikelkonzentrationen                           | 93         |
| 6.4.1    | Einfluß der Dynamik  | 93         |
| 6.4.2    | Einfluß der Gefriereigenschaften                                   | 96         |
| 6.4.3    | Größeneffekte und Sedimentationseinfluß                            | 98         |
| 6.4.4    | Statistik von Eispartikelradien und Eiswassergehalte               | 100        |
| 6.5      | Auftrittshäufigkeit von Zirren                                     | 101        |
| 6.5.1    | Einfluß der Dynamik  | 101        |
| 6.5.2    | Einfluß der Gefriereigenschaften                                   | 105        |
| 6.6      | Kurzzusammenfassung  | 107        |
| <b>7</b> | <b>Zusammenfassung</b>   | <b>109</b> |
| 7.1      | Ziele und Methodik   | 109        |
| 7.2      | Ergebnisse und Bewertung   | 109        |
| 7.3      | Ausblick   | 112        |
|          | <b>Symbole und Abkürzungen</b>                                     | <b>113</b> |
|          | <b>Literaturverzeichnis</b>  | <b>117</b> |

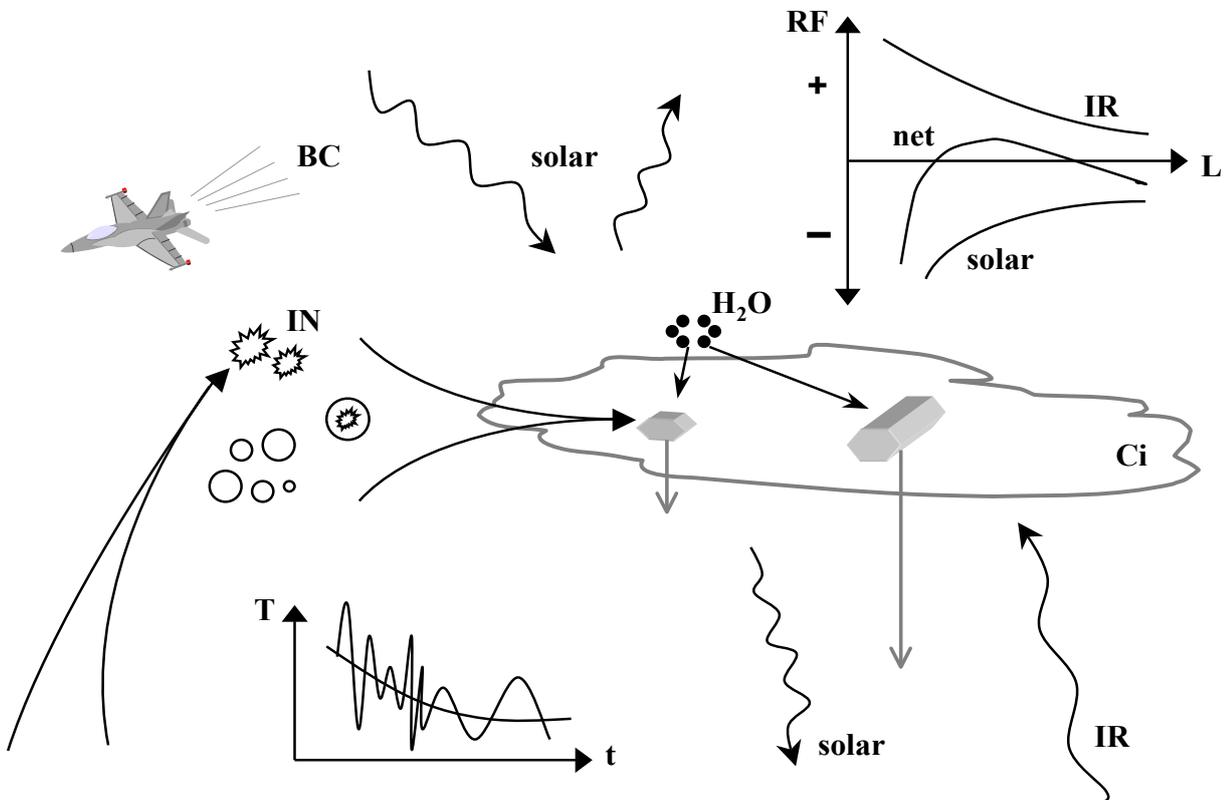
# Kapitel 1

## Einleitung

Neben der direkten Klimawirksamkeit von atmosphärischen Aerosolpartikeln durch Streuung und Absorption von solarer Strahlung hat in den letzten Jahren der indirekte Effekt von Aerosolpartikeln auf die Strahlungsbilanz und das Klima der Erde stark an Interesse gewonnen (IPCC, 2001). Darunter versteht man den Einfluß von Aerosolpartikeln auf die Strahlungseigenschaften und die Lebensdauer von Wolken durch Veränderung von deren mikrophysikalischen Eigenschaften (Baker, 1997).

Aerosolpartikel spielen bei der Bildung und Entwicklung von Wasserwolken eine wichtige Rolle. Sie agieren als Kondensationskeime (CN) und erlauben die Wolkenbildung bei geringen Übersättigungen (typischerweise  $< 1-2\%$ ) in Bezug auf Wasser. Wasserwolken bilden sich grundsätzlich immer durch Kondensation von Wassermolekülen auf solchen Keimen und bestehen aus unterkühlten, praktisch reinen Wassertropfen. Twomey (1974) wies als Erster auf den indirekten Effekt von Aerosolpartikeln bei Wasserwolken hin. Dieser sogenannte "Twomey-Effekt" besagt, daß eine Zunahme der Aerosolanzahlkonzentration zu höheren Tropfenkonzentrationen bei kleineren Tropfengrößen in den Wolken führt. Dadurch ergeben sich höhere Albedowerte, was zu einem negativen Strahlungsantrieb (kühlend) im Strahlungshaushalt der Erde führt. Dieser Effekt konnte eindeutig in Feldexperimenten nachgewiesen werden (Krüger und Graßl, 2002). Veränderte Konzentrationen von Aerosolpartikeln beeinflussen aber nicht nur die Strahlungseigenschaften von flüssigen Wolken, auch ihre Lebensdauer und die Niederschlagsraten können stark von den Konzentrationen und chemischen Zusammensetzungen troposphärischer Aerosolpartikel abhängig sein.

Anders stellt sich die Situation bei den reinen Eiswolken (Zirren) dar. Über die Wechselwirkung von Aerosolpartikeln mit Zirren ist bisher nur wenig bekannt. In welchem Umfang Aerosolpartikel die Eigenschaften von Zirruswolken verändern können, ist jedoch eine wichtige Fragestellung, wenn man die Wirkung von Zirren auf das Klima bestimmen will. Bekannt ist nämlich, daß Zirren den Strahlungshaushalt der Erde durch zwei gegenläufige Effekte beeinflussen können (Liou, 1986). Einerseits können sie erwärmend wirken durch Absorption und Rückstrahlung der von der Erde emittierten, langwelligen Strahlung (Treibhauseffekt). Andererseits können sie die planetare Albedo erhöhen und dadurch die Atmosphäre kühlen (siehe Abb. 1.1). Welcher Effekt dominiert hängt hauptsächlich



**Abb. 1.1:** Bildungsprozesse und Strahlungswirkung von Zirren (Ci) im Bereich der Tropopause. Durch Vertikaltransport von bodennahen Emissionen sowie durch Luftverkehrsemissionen (Rußpartikel, “black carbon”, BC) gelangen feste, zum Teil wasserlösliche Teilchen in die obere Troposphäre und unterste Stratosphäre, die als effektive heterogene Eiskerne (“ice nuclei”, IN) wirken können. Die unterschiedlichen Aerosolpartikel (flüssiges Hintergrundaerosol, Kreise, und feste Teilchen) wechselwirken durch Koagulation und bilden Mischpartikel (Immersion von festen in flüssigen Teilchen). Die Aerosolpartikel können die Bildung von Eiskristallen initiieren, welche durch Deposition von Wasser anwachsen und sedimentieren können. Die Sedimentationsgeschwindigkeit wächst rasch mit der Größe der Eiskristalle an. Bei der Zirrusbildung spielt die Dynamik vertikaler Bewegungen der Luftpakete eine wichtige Rolle (angedeutet im kleinen Bild unten durch Überlagerung von synoptischen Temperaturänderungen mit mesoskaligen Temperaturosillationen). Den Strahlungshaushalt der Erde beeinflussen Zirren, indem sie solare Strahlung absorbieren und reflektieren (kühlend; der überwiegende Teil der solaren Strahlung wird jedoch transmittiert), oder die von der Erde emittierte Infrarotstrahlung (IR) rückstrahlen (erwärmend). Das kleine Bild rechts oben zeigt diesen Strahlungsantrieb (“radiative forcing”, RF) von Zirren im Infrarotbereich, im solaren Bereich und den Nettoeffekt in Abhängigkeit von der Größe L der Eispartikel.

von den Eigenschaften der Zirruswolken ab wie Anzahl, Größe und Form der Eiskristalle, Eiswassergehalt und Bedeckungsgrad. Von optisch dünnen (bis hin zu unsichtbaren) Zirren und Kondensstreifen wird für gewöhnlich angenommen, daß sie erwärmend wirken, bei dicken Zirren wird von einer kühlenden Wirkung ausgegangen (z.B. Fu und Liou, 1993; Meerkötter et al., 1999; Minnis et al., 1999). Neben diesen Strahlungseffekten spielen Zirren auch im Wasserkreislauf der Atmosphäre eine Rolle (siehe Abb. 1.1). So wird z.B. angenommen, daß die extreme Trockenheit der tropischen unteren Stratosphäre durch die Bildung und Sedimentation von großen (mehrere 10  $\mu\text{m}$ ) Eiskristallen in optisch dünnen Zirren zustande kommt (Jensen et al., 1996). Weiter können Zirren auch die Chemie der Atmosphäre beeinflussen, beispielsweise können sie durch heterogene Chloraktivierung einen Beitrag zur beobachteten Ozonabnahme in der unteren Stratosphäre der mittleren Breiten liefern (Borrmann et al., 1996; Solomon et al., 1997; Meilinger et al., 2001).

Obwohl man die Bedeutung speziell von tropischen Zirren für das Klimasystem der Erde erkannt hat, ist derzeit immer noch sehr wenig über die Bildungsmechanismen von Eiswolken bekannt. Die Problematik besteht darin, daß die Bildung von Eispartikeln auf unterschiedlichem Wege erfolgen kann. Entweder erfolgt diese durch homogene Nukleation von Eis in unterkühlten Lösungstropfen, oder sie wird heterogen durch feste Teilchen (Eis- oder Gefrierkerne, IN) initiiert, oder beide Prozesse treten untereinander in Konkurrenz und tragen zur Eisbildung bei (siehe Abb. 1.1). Die festen Teilchen können auch in den Lösungstropfen eingebettet sein (Mischpartikel).

Die Bedeutung des homogenen Gefrierprozesses konnte bisher anhand von mehreren Studien gezeigt werden (z.B. Heymsfield und Miloshevich, 1993; Jensen et al., 1998; Lin et al., 1998a; Field et al., 2001). Dabei hat sich gezeigt, daß zumindest im speziellen Fall von Zirren, welche in orographisch induzierten Wellen bei Temperaturen unterhalb von ca. 235 K (spontane Gefriergrenze für unterkühlte Wassertropfen) gebildet werden, der homogene Gefrierprozeß als dominant angesehen werden kann.

Allgemein ist jedoch unklar, welcher Gefrierprozeß (homogenes oder heterogenes Gefrieren) bzw. welcher Partikeltyp (flüssige Aerosolpartikel, feste Partikel oder Mischpartikel) die Zirrusbildung in der Atmosphäre dominiert (siehe Abb. 1.2). Es gibt Studien, die auf den potentiellen Einfluß von heterogenen Gefrierprozessen hinweisen, wobei vermutet wird, daß speziell die Rußemissionen des Luftverkehrs die Zirrusbildung beeinflussen können (Jensen und Toon, 1997; Ström und Ohlsson, 1998; Kristensson et al., 2000). Die Beobachtungen zeigen, daß die Zirrusbewölkung entlang der Haupt-Luftverkehrsstraßen in der nördlichen Hemisphäre zunimmt (Boucher, 1999). Weiter haben Modellrechnungen gezeigt, daß die alleinige Veränderung der Konzentration von flüssigen Aerosolpartikeln wie Schwefelsäureaerosole die Zirruseigenschaften nur geringfügig modifiziert (Lohmann und Kärcher, 2002). Wird jedoch zusätzlich heterogenes Gefrieren von unlöslichen Aerosolkomponenten angenommen, dann kann dies im Vergleich zur Annahme rein homogenen Gefrierens im atmosphärischen Hintergrundaerosol zu deutlichen Veränderungen der Zirruseigenschaften, etwa bei den Eispartikelkonzentrationen, in den Zirren führen (DeMott et al., 1997; Jensen und Toon, 1997; Kärcher und Lohmann, 2003).

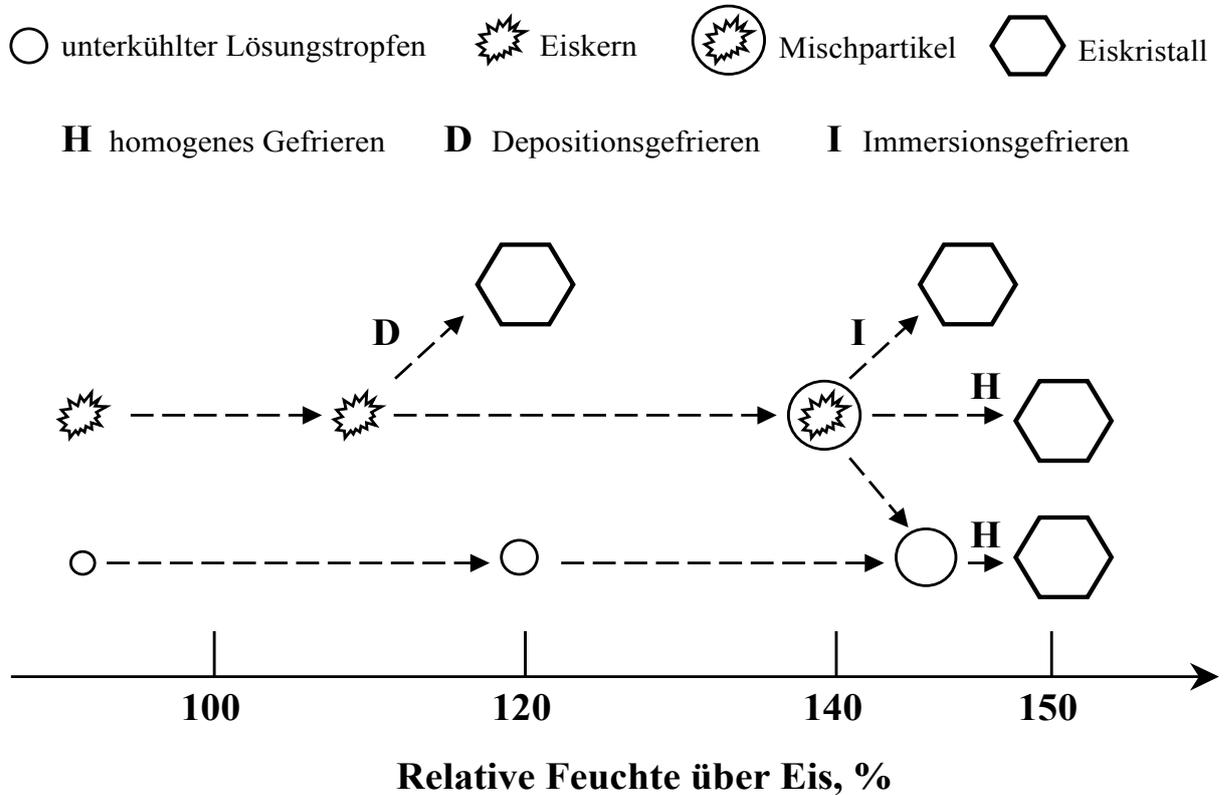
Neben dem Einfluß unterschiedlicher Gefriereigenschaften der Aerosolpartikel wird die Situation dadurch kompliziert, daß die mikrophysikalischen Eigenschaften von Zirren auch

stark von der atmosphärischen Dynamik abhängig sind. Speziell die Anzahl der gebildeten Eispartikel in jungen Zirren wird stark von der vertikalen Windgeschwindigkeit bzw. Kühlrate und der Temperatur kontrolliert (z.B. Jensen et al., 1994b; Kärcher und Lohmann, 2002). Aus diesem Grund spielen insbesondere mesoskalige atmosphärische Wellenbewegungen (Schwerewellen) bei der Zirrusbildung eine entscheidende Rolle (illustriert durch das kleine Bild unten in Abb. 1.1). In Erweiterung früherer Studien (z.B. Heymsfield und Miloshevich, 1993; Ström et al., 1997; Lin et al., 1998b) konnten dies jüngst Kärcher und Ström (2003) durch eine detaillierte Interpretation von *in-situ*-Messungen präzisieren.

Die relative Bedeutung des indirekten Effektes von Aerosolpartikeln und des dynamischen Einflusses auf die mikrophysikalischen Eigenschaften und damit den Lebenszyklus von Zirren kann derzeit nur schwer beurteilt werden. *Den Einfluß von unterschiedlichen Gefriereigenschaften (homogenes und heterogenes Gefrieren) und der atmosphärischen Dynamik auf die Zirruseigenschaften abzuwägen stellt ein wesentliches Ziel der hier vorliegenden Arbeit dar.*

*In-situ*-Messungen zeigen, daß wichtige Komponenten flüssiger Aerosolpartikel im Bereich der Tropopause Schwefelsäure und Wasser darstellen (Sheridan et al., 1994; Murphy et al., 1998). Neben den Schwefelsäureaerosolen existieren aber auch andere Komponenten, darunter organische Substanzen (Murphy et al., 1998) und Ammonium (Talbot et al., 1997; Colberg et al., 2003). Die homogene Nukleation von Eiskristallen in flüssigen Lösungstropfen (siehe Abb. 1.2) wurde in den letzten Jahren im Labor eingehend untersucht (Koop et al., 1997, 1998; Chang et al., 1999; Chen et al., 2000; Prenni et al., 2001; Möhler et al., 2003). In Abhängigkeit von der Partikelgröße, der chemischen Zusammensetzung der Lösungstropfen und der Temperatur wird homogenes Gefrieren bei kritischen relativen Feuchten in Bezug auf Eis (im folgenden als Gefrierfeuchten bezeichnet) zwischen ca. 145 % und 170 % initiiert. Koop et al. (2000) konnten in einer Reihe von Labormessungen zeigen, daß unabhängig von der chemischen Zusammensetzung der Partikel die homogenen Nukleationsraten bzw. die kritischen Gefrierfeuchten nur von der Wasseraktivität der Aerosolpartikel (definiert als das Verhältnis von Sättigungsdampfdruck von Wasser über der Lösung zu Sättigungsdampfdruck über reinem Wasser bei gleichen Bedingungen) und der Temperatur abhängig sind.

Demgegenüber ist über die heterogenen Gefriereigenschaften bzw. die Gefrierfeuchten von festen oder Mischpartikeln nur sehr wenig bekannt. Heterogene Gefrierkerne können Rußpartikel, Mineralstaub oder teilkristalline Mischpartikel sein. Das Problem liegt darin, daß die Eisbildungseigenschaften von Gefrierkernen abhängig von der chemischen Struktur und der Oberflächenbeschaffenheit stark variieren können, und diese meßtechnisch *in-situ* nur sehr schwer zugänglich sind. DeMott et al. (1999) berichtet beispielsweise von Labormessungen mit Ruß, bei welchen unbehandelter Ruß erst bei Erreichen der Sättigung bezüglich Flüssigwasser den Gefrierprozeß initiiert. Wird die Oberfläche der Rußpartikel jedoch mit mehreren Monolagen Schwefelsäure überzogen, bewirkt dies bei Temperaturen unterhalb von ca. 220 K eine Herabsetzung der kritischen Gefrierfeuchten von ca. 10 % unterhalb der Gefrierfeuchten für homogenes Gefrieren. Gefrierfeuchten zwischen 135 % und 151 % im Temperaturbereich zwischen 198 K und 239 K wurden bei Mineralstaub gemessen (Zuberi et al., 2002). Die heterogenen Gefrierfeuchten von teilkristallinen,



**Abb. 1.2:** Die Abbildung gibt einen schematischen Überblick über atmosphärische Gefrierprozesse, die die Eisphase in Zirren initiieren. Eisnukleation kann stattfinden bei relativen Feuchten über Eis oberhalb von 100 %. Generell wird die homogene Nukleation in rein flüssigen Aerosolpartikeln (unterkühlte Lösungstropfen) von der heterogenen Nukleation unterschieden, bei der die Anwesenheit einer festen Oberfläche (Eis- oder Gefrierkern) die Eisbildung veranlaßt. Die untere Reihe zeigt bei Anstieg der relativen Feuchte über Eis das Anwachsen flüssiger Aerosolpartikel (Kreise) durch Wasseraufnahme, bis bei Werten oberhalb etwa 145 % homogenes Gefrieren (H) einsetzt. Die obere Reihe skizziert die für Zirren relevanten heterogenen Gefrierprozesse. Ein ursprünglich fast trockener Eiskern gefriert durch Bildung von Eiskeimen an seiner Oberfläche, wobei Wassermoleküle direkt aus der Gasphase auf dem Eiskern deponiert werden (D). Alternativ kann bei Steigerung der Feuchte der Eiskern Wassermoleküle durch vermehrte Adsorption anlagern, wodurch ein dünner Wasserfilm entsteht. Liegt ein kristallines Aerosolpartikel vor, kann sich die Kristallstruktur oberhalb einer gewissen relativen Feuchte vollständig im Wasser lösen (Deliquescenz). In jedem Fall wächst der Wasserfilm bei einem weiteren Anstieg der relativen Feuchte an, bis in den so gebildeten Mischpartikeln Eis nukleiert. Hierbei kann der Eiskern heterogenes Gefrieren im Immersionsmode auslösen (I), oder dieser bleibt passiv, so daß das Mischpartikel homogen gefriert. Gehen bei einem Anstieg der relativen Feuchte kristalline Mischpartikel spontan in Lösungstropfen über (vollständige Deliquescenz), so kann anschließend ein reiner Lösungstropfen homogen gefrieren.

ammonisierten Sulfataerosolen können zwischen Eissättigung und den homogenen Gefrierfeuchten variieren (Zuberi et al., 2001). Neben den stark unterschiedlichen Gefriereigenschaften von heterogenen Gefrierkernen besteht ein weiteres Problem darin, daß über die räumliche und saisonale Verteilung dieser Partikel in der Atmosphäre nur sehr wenig bekannt ist, begründet durch die Unkenntnis über Transformations- und Auswaschprozesse, die die atmosphärischen Konzentrationen dieser Partikel entscheidend mitbestimmen.

Bei den bisher publizierten Modellstudien über Gefrierprozesse im Bereich der Tropopause wurde meist die klassische Gefriertheorie zur Berechnung der Nukleationsraten angewandt (Jensen et al., 1994a; Jensen und Toon, 1997; Lin et al., 2002). Die Anwendung dieser Theorie ist jedoch mit großen Unsicherheiten verbunden, speziell bei heterogenem Gefrieren. In der hier vorliegenden Arbeit kommt erstmals ein mikrophysikalisches Simulationsmodell zum Einsatz, das die homogenen Nukleationsraten nicht auf klassischem Wege berechnet, sondern die von Koop et al. (2000) entwickelte Aktivitätsparametrisierung verwendet (siehe oben). Zur Berechnung heterogener Nukleation wird auf eine Parametrisierung von Kärcher und Lohmann (2003) zurückgegriffen, die eine zum Aktivitätsmodell für homogenes Gefrieren konsistente Berechnung heterogener Nukleationsraten erlaubt. Sowohl die klassische Gefriertheorie und die Probleme bei deren Anwendung, als auch die in dieser Arbeit verwendeten Parametrisierungen für homogenes und heterogenes Gefrieren werden in Kapitel 2 beschrieben.

*Ein weiteres Ziel dieser Arbeit ist die Bestimmung der Beziehung zwischen unterschiedlichen Gefrierprozessen bei der Zirrusbildung und der Wahrscheinlichkeitsverteilung der relativen Feuchte.* Zu diesem Zweck wird das verwendete mikrophysikalische Boxmodell im Lagrange'schen Sinn entlang von atmosphärischen Trajektorien betrieben, welche auf Daten des ECMWF-Modells basieren. Eine Beschreibung dieses mikrophysikalischen Modells erfolgt in Kapitel 3. Wie bereits erwähnt, werden zur Berechnung der Nukleationsraten in den vorliegenden Zirrus-Simulationen Parametrisierungen verwendet, welche die Nukleationsraten in Abhängigkeit von der Wasseraktivität der Aerosolpartikel und der Temperatur beschreiben. Die Messungen von Koop et al. (2000), aus welchen diese Parametrisierungen abgeleitet wurden, beziehen sich auf flüssige Aerosolpartikel im Gleichgewicht mit der Wasserdampfkonzentration der Luft. In der realen Atmosphäre, speziell bei starken vertikalen Luftbewegungen mit hohen Kühlraten, treten jedoch Abweichungen von diesem Gleichgewicht auf.

Die AIDA-Aerosolkammer des Forschungszentrums Karlsruhe erlaubt derartige reale dynamische Bedingungen unter experimentellen Bedingungen nachzuvollziehen. In Kapitel 4 werden numerische Simulationen von solchen AIDA-Experimenten für homogenes Gefrieren präsentiert, die im Rahmen des nationalen, von der Helmholtz-Gemeinschaft deutscher Forschungszentren (HGF) geförderten Forschungsprojektes PAZI (Partikel und Zirren) durchgeführt wurden. *Als drittgenanntes Ziel soll durch den Vergleich der numerischen Simulationen mit den Kammermessungen überprüft werden, inwieweit die Labormessungen von Koop et al. (2000) zum homogenen Gefrieren zur Simulation von Gefrierprozessen unter realen atmosphärischen Bedingungen anwendbar sind.* Diese Simulationen dienen aber auch zur detaillierten Interpretation der Kammermessungen und sie tragen zum allgemeinen Verständnis der mikrophysikalischen Prozesse bei der Zirrusbildung bei.

*In-situ*-Messungen von Wasserdampf und Temperatur haben gezeigt, daß in der oberen Troposphäre und untersten Stratosphäre häufig relative Feuchten weit oberhalb der Eissättigung gefunden werden (Gierens et al., 2000; Jensen et al., 2001). Es ist jedoch schwierig, aus *in-situ*-Messungen von Zirren Rückschlüsse auf die kritischen Gefrierfeuchten zu ziehen, bei denen sich Zirren gebildet haben. Die Nukleation von Eiskristallen findet nämlich auf sehr kurzen Zeitskalen (Minuten oder weniger) statt und flugzeuggetragene Lagrange'sche Messungen (Messungen in Luftmassen, wo der Phasenübergang stattfindet) der Zirrusbildung sind extrem schwierig durchzuführen. Heymsfield und Miloshevich (1995) und Heymsfield et al. (1998) haben bereits darauf hingewiesen, daß die maximalen Feuchten gemessen in wolkenfreien Gebieten eine Untergrenze für die kritischen Gefrierfeuchten bei der Zirrusbildung darstellen. In dieser Arbeit werden mit Hilfe von mikrophysikalischen Simulationen entlang von Trajektorien Wahrscheinlichkeitsverteilungen der relativen Feuchte in Bezug auf Eis innerhalb und außerhalb von Zirren ermittelt und daraus Rückschlüsse auf Gefrierfeuchten und Bildungsmechanismen gezogen (Kapitel 5). Es wird herausgearbeitet werden, von welchen Faktoren Feuchteverteilungen unter Zirrusbedingungen kontrolliert werden.

Desweiteren wird erstmalig gezeigt, welchen Einfluß unterschiedliche Gefrierprozesse bei der Zirrusbildung auf diese Feuchteverteilungen ausüben. Durch den Vergleich der modellierten Feuchtestatistik mit *in-situ*-Messungen der relativen Feuchte während des europäischen Forschungsprojektes INCA (INterhemispheric differences in Cirrus properties from Anthropogenic emissions) wird gezeigt, daß die kritischen relativen Feuchten bei der Zirrusbildung direkt mit Hilfe von atmosphärischen Feuchtemessungen bestimmt werden können. Es wird eine Antwort auf die Frage gegeben, ob bei den untersuchten Meßkampagnen homogenes oder heterogenes Gefrieren der dominante Weg bei der Zirrusbildung war, oder ob die Zirrusbildung aus einer Kombination von beiden Gefrierprozessen resultierte.

Weiter oben wurde bereits erwähnt, daß ein Hauptgegenstand dieser Doktorarbeit das Studium der relativen Bedeutung unterschiedlicher Gefriereigenschaften der Aerosolpartikel und der atmosphärischen Dynamik auf die Zirruseigenschaften ist. Die Ergebnisse solcher Prinzipstudien werden in Kapitel 6 vorgestellt. Dabei werden die beiden Effekte voneinander getrennt behandelt, d.h. die Untersuchung der Aerosol-Zirren-Wechselwirkung erfolgt bei festgehaltener Dynamik, während bei einer Veränderung der Dynamik die Gefriereigenschaften der Partikel unverändert bleiben. Die Untersuchungen erfolgen auf globaler und langfristiger Skala, indem ca. 10000 Langzeittrajektorien (3 Monate) betrachtet werden, welche im untersuchten Zeitraum die gesamte Nordhemisphäre umspannen. Mit Hilfe dieser Technik der gebietsfüllenden Trajektorien kann dann beispielsweise die Auftrittshäufigkeit von Zirren berechnet werden.

Der potentielle Einfluß von Änderungen der Anzahlkonzentration und der chemischen Zusammensetzung des atmosphärischen Hintergrundaerosols auf die Zirruseigenschaften ist nicht Gegenstand dieser Studie. Die Untersuchung der Aerosol-Zirren-Wechselwirkung in dieser Arbeit bezieht sich lediglich auf den Einfluß von einer begrenzten Zahl von heterogenen Gefrierkernen. Dabei ist der Typ von heterogenen Gefrierkernen (z.B. Ruß- oder Staubpartikel) bzw. die chemische Struktur dieser Kerne nicht näher definiert. Weiter wird von diesen Gefrierkernen angenommen, daß sie zu jeder Zeit an jedem Ort vorhan-

den sind, d.h. es erfolgt keine saisonale oder regionale Verteilung dieser Partikel in der Atmosphäre, über welche nur sehr wenig bekannt ist. *In-situ*-Messungen (z.B. Rogers et al., 1998) zeigen jedoch, daß die Anzahlkonzentrationen von effektiven Gefrierkernen im Vergleich zum Hintergrundaerosol sehr gering sind. Die Untersuchungen erfolgen daher dahingehend, daß eine geringe Zahl von festen Gefrierkernen angenommen wird, welche bei einer vorgeschriebenen kritischen Gefrierfeuchte unterhalb der homogenen Gefrierfeuchten gefrieren können. Dabei wird die angenommene Gefrierfeuchte der festen Partikel durch *in-situ*-Messungen der relativen Feuchte in durch den Luftverkehr stark beeinflussten Gebieten motiviert. Das bedeutet, in der vorliegenden Studie sind heterogene Gefrierkerne über ihre Anzahl, Größe und Gefrierfeuchte definiert. Es wird daher gezeigt werden, inwieweit diese Gefrierkerne abhängig von ihrer Anzahl die mikrophysikalischen Eigenschaften der Zirren im Vergleich zu einer rein homogenen Zirrusbildung verändern können.

Der dynamische Einfluß auf die Zirrusbildung wird gezeigt, indem entlang der untersuchten (synoptisch-skaligen) Trajektorien mesoskalige Temperaturstörungen in Form von Schwerewellen angenommen werden. Wie weiter oben bereits ausgeführt wurde, gelten mesoskalige Wellenbewegungen in der Atmosphäre als ein kontrollierender Faktor bei der Zirrusbildung. Die Eigenschaften dieser Wellen (Amplituden und Frequenzen) werden durch die Analyse von *in-situ*-Messungen motiviert. In der vorliegenden Studie wird untersucht, in welchem Umfang die Zirrusseigenschaften modifiziert werden, wenn gegenüber einer rein synoptischen Kühlung auf den Trajektorien diese mesoskaligen Wellen mit hohen mittleren Kühlraten angenommen werden. Eine Serie von Sensitivitätsstudien erlaubt schließlich eine Bewertung des relativen Einflusses von Gefriereeigenschaften der Aerosole und atmosphärischer Dynamik.

Derartige Studien können derzeit nicht mit globalen atmosphärischen Zirkulationsmodellen durchgeführt werden. Das Wettervorhersagemodell des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF, "European Center for Medium-range Weather Forecasts") oder das Klimamodell ECHAM (ECMWF-Modell, HAMburg Version) verwenden sehr unzureichende Parametrisierungen für die Zirrusbildung. Diese Modelle unterstellen bereits die Bildung von Zirren, wenn die relative Feuchte Eissättigung erreicht bzw. erstmals in einem Modellzeitschritt übersteigt. Desweiteren werden durch die große räumliche und zeitliche Auflösung der Prozesse in diesen globalen Modellen subskalige Prozesse nur sehr unzureichend wiedergegeben. Wolkenauflösende Modelle sind hingegen zu komplex um sie für globale Studien heranzuziehen. Die hier verwendete Methode der gebietsfüllenden Trajektorien stellt so einen vertretbaren Kompromiß dar.

Den Abschluß dieser Arbeit bildet die Zusammenfassung und Bewertung der Ergebnisse in Kapitel 7 mit einem Ausblick auf mögliche weiterführende Untersuchungen. Wesentliche Teile dieser Dissertation wurden bereits publiziert bzw. befinden sich in Begutachtung (Haag et al., 2003a,b; Kärcher und Haag, 2003). Die hier vorgelegten Ergebnisse wurden in enger Zusammenarbeit mit experimentellen Gruppen gewonnen (Möhler et al., 2003; Ström et al., 2003).

# Kapitel 2

## Theoretischer Hintergrund

### 2.1 Partikelwachstum und Sedimentation

**Wachstum flüssige Aerosolpartikel** Die zeitliche Änderung der Masse  $m$  eines Lösungstropfens mit dem Radius  $r$  zufolge von Kondensation von Wasserdampf ist durch

$$\frac{dm}{dt} = \frac{4\pi r D \beta (p_{\infty,w} - p_{\text{sat},w})}{\underbrace{\frac{DL_e p_{\text{sat},w}}{k_a T} \left( \frac{L_e M_w}{R^* T} - 1 \right)}_{\text{Term 1}} + \underbrace{\frac{R^* T}{M_w}}_{\text{Term 2}}} \quad (2.1)$$

gegeben. Für typische Temperatur- und Druckbedingungen in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre kann der linke Term im Nenner von Gleichung (2.1), welcher den Wärmefluß zwischen Tropfen und dem umgebenden Gas aufgrund von freiwerdender Kondensationswärme auf der Partikeloberfläche berücksichtigt, vernachlässigt werden, da er um mehr als eine Größenordnung kleiner ist als der rechte Term (siehe Tab. 2.1). Gleichung (2.1) vereinfacht sich dann zu

$$\frac{dm}{dt} \simeq \frac{4\pi r D \beta M_w (p_{\infty,w} - p_{\text{sat},w})}{R^* T} \quad (2.2)$$

In (2.2) ist  $p_{\infty,w}$  der Partialdruck des Wasserdampfes in der Umgebung eines Tropfen,  $p_{\text{sat},w}$  der Sättigungsdampfdruck von Wasser über der Partikeloberfläche,  $T$  die Temperatur,  $R^*$

**Tabelle 2.1:** Betrag der Terme im Nenner von Gleichung (2.1) bei einer Temperatur  $T$  und einem Druck  $p$ .

| $T$   | $p$     | Term 1            | Term 2            |
|-------|---------|-------------------|-------------------|
| 210 K | 200 hPa | $1.4 \times 10^7$ | $9.7 \times 10^8$ |
| 220 K | 250 hPa | $3.7 \times 10^7$ | $1.0 \times 10^9$ |
| 230 K | 300 hPa | $8.9 \times 10^7$ | $1.1 \times 10^9$ |

die universelle Gaskonstante und  $M_w$  die molare Masse von  $\text{H}_2\text{O}$ . Der Faktor

$$\beta = \left( \frac{r}{r + \lambda} + \frac{4D}{\alpha v_{\text{th}} r} \right)^{-1} \simeq \left( 1 + \frac{4K_n}{3\alpha} \right)^{-1}, \quad (2.3)$$

mit dem Massenakkommodationskoeffizienten  $\alpha$ , der mittleren thermischen Geschwindigkeit  $v_{\text{th}}$  der  $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle, dem Diffusionskoeffizienten

$$D = 0.211 \left( \frac{T}{273.15\text{K}} \right)^{1.94} \left( \frac{1013.25\text{hPa}}{p} \right), \quad (2.4)$$

und der mittleren freien Weglänge von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen in Luft

$$\lambda = \frac{3D}{v_{\text{th}}} \quad (2.5)$$

kontrolliert dabei den Übergangsbereich zwischen zwei verschiedenen Wachstumsregimen. Bei sehr kleinen Knudsenzahlen  $K_n = \lambda/r$ , d.h. wenn der Tropfenradius im Vergleich zur mittleren freien Weglänge  $\lambda$  der Moleküle sehr groß ist ( $K_n \rightarrow 0, \beta \rightarrow 1$ ), findet das Wachstum der Tropfen ausschließlich diffusionsbestimmt statt (diffusives Regime, engl. “continuum regime”). Dabei wird jedes  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekül das die Aerosole erreicht angelagert, wobei der limitierende Faktor bei der Anlagerung der Transport der Teilchen zu den Tropfen ist, welcher durch die Diffusion bestimmt wird. Bei sehr kleinen Tropfenradien ( $K_n \gg 1, \beta \ll 1$ ) verhalten sich die Tröpfchen selbst wie Gasteilchen, und das Wachstum findet durch Anlagerung von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen statt, die das Tröpfchen entsprechend der kinetischen Gastheorie treffen (kinetisches Regime, engl. “free molecule (kinetic) regime”). Diese beiden Wachstumsbereiche werden durch einen Übergangsbereich verbunden ( $K_n \sim 1$ ), in dem sich der Wachstumsprozeß kontinuierlich von einem Grenzfall zum anderen ändert (Übergangsregime, engl. “transition regime”).

Zufolge Gleichung (2.2) kondensiert auf bzw. verdunstet Wasser von der Oberfläche von flüssigen Aerosolpartikeln aufgrund eines Konzentrationsgradienten des Wasserdampfes  $p_{\infty,w} - p_{\text{sat},w}$  zwischen Umgebung und Partikeloberfläche, wobei

$$p_{\text{sat},w} = a_w p_{e,w} \exp \left( \frac{2M_w \sigma_{s/a}}{r R^* T \rho_w} \right) \quad (2.6)$$

ist. In Gleichung (2.6) ist  $\sigma_{s/a}$  die Oberflächenspannung an der Grenzfläche Flüssigkeit/Luft und  $\rho_w$  die Dichte von Wasser. Die Wasseraktivität  $a_w = p_{e,s}/p_{e,w}$  ist das Verhältnis von Sättigungsdampfdruck von Wasser  $p_{e,s}$  über einer Lösung zu Sättigungsdampfdruck  $p_{e,w}$  über einer reinen (planen) Wasseroberfläche. Für Gemische, etwa binäre  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen, ist  $a_w < 1$  (Lösungseffekt). Die Berechnung von  $a_w$  erfolgt mittels thermodynamischer Modelle. Für reines Wasser ist  $a_w = 1$  und Gleichung (2.6) degeneriert zur Kelvingleichung, welche die Erhöhung des Sättigungsdampfdruckes über einer gekrümmten Oberfläche gegenüber dem Dampfdruck von Wasser über einer planen Oberfläche beschreibt (Krümmungseffekt).

Den Zusammenhang zwischen der zeitlichen Änderung der Tropfenmasse und der Änderung des Tropfenradius liefert die Beziehung

$$\frac{dm}{dt} = 4\pi r^2 \rho_p \frac{dr}{dt} , \quad (2.7)$$

wobei  $\rho_p$  die Tropfendichte ist. Kombiniert man (2.1) mit (2.7) erhält man die Wachstumsgleichung bezogen auf den Tropfenradius in der Form:

$$\frac{dr}{dt} \simeq \frac{D\beta M_w}{R^* T r \rho_p} (p_{\infty, w} - p_{\text{sat}, w}) . \quad (2.8)$$

Aus Gleichung (2.8) geht hervor, daß  $dr/dt \propto 1/r$  ist, d.h. in einer Population von verschieden großen Aerosolpartikeln wachsen die kleinen Tropfen schneller als die großen.

**Wachstum von Eiskristallen** Kondensation auf festen Oberflächen wird als Deposition bezeichnet. Um das Depositionswachstum von Eiskristallen durch Anlagerung von H<sub>2</sub>O-Molekülen zu beschreiben, wird Gleichung (2.2) modifiziert:

$$\frac{dm}{dt} \simeq \frac{4\pi D\beta\kappa\phi M_w}{R^* T} (p_{\infty, w} - p_{\text{sat}, i}) . \quad (2.9)$$

Dabei ist  $p_{\text{sat}, i}$  der H<sub>2</sub>O-Sättigungsdampfdruck über einer gekrümmten Eisoberfläche. An die Stelle des Radius  $r$  in (2.2) tritt der Faktor  $\kappa$ . Er wird als Kapazitätsfaktor bezeichnet und berücksichtigt die mögliche nicht-sphärische Form von Eiskristallen.

Für sphärische Eiskristalle gilt  $\kappa = r$ . Für nicht-sphärische Partikel hängt der Kapazitätsfaktor von der Kristallform ab. Für die Simulation der kleinen (einige  $\mu\text{m}$ ) Eiskristalle in der AIDA-Aerosolkammer (Kapitel 4) werden sphärische Partikel angenommen. Für die Simulation von größeren (bis einige 100  $\mu\text{m}$ ) Eiskristallen in Zirruswolken in Kapitel 6 werden hexagonale Säulen mit einem Aspektverhältnis  $A = l/d = 3$  angenommen, wobei  $l$  die Säulenhöhe ist und  $d$  der Säulendurchmesser. Jacobson (1999) gibt für den Kapazitätsfaktor von Säulen folgende Beziehung an:

$$\kappa = l\sqrt{1 - d^2/l^2} \left[ \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - d^2/l^2}}{1 - \sqrt{1 - d^2/l^2}} \right) \right]^{-1} . \quad (2.10)$$

Sedimentieren große Eiskristalle in der Atmosphäre, findet eine erhöhte Deposition von Wasserdampfmolekülen auf jener Oberfläche statt, welche der Fallrichtung zugewandt ist. Diesem Umstand wird durch den sogenannten Ventilationsfaktor  $\phi$  in Gleichung (2.9) berücksichtigt. Wie  $\kappa$  ist  $\phi$  von der Kristallform abhängig. Pruppacher und Klett (1997) geben eine Parametrisierung für  $\phi$  für säulenförmige Eiskristalle als Funktion der Reynoldszahl  $Re$  und der Schmidtzahl  $Sc = \gamma_a/D$  (Verhältnis kinematische Viskosität der Luft  $\gamma_a$  zu Diffusionskoeffizient von H<sub>2</sub>O-Molekülen in Luft  $D$ ) an:

$$\phi = 1 - 0.00688 X + 2.39402 X^2 + 0.73409 X^3 + 0.73911 X^4 , \quad (2.11)$$

mit

$$X = \frac{Re^{1/2}Sc^{1/3}}{4} . \quad (2.12)$$

Es gilt für die Reynoldszahl

$$\log Re = B_o + B_1 Y + B_2 Y^2 + B_3 Y^3 , \quad (2.13)$$

wobei  $Y = \log Be$  der dekadische Logarithmus der Bestzahl ist, gegeben durch

$$Be = \frac{2m_i \rho_a}{A \eta_a^2} . \quad (2.14)$$

Die Parameter  $B_o$ ,  $B_1$ ,  $B_2$  und  $B_3$  in (2.13) sind vom Aspektverhältnis  $A$  abhängig (Werte für  $A = 3$ , siehe Müller und Peter (1992)). In Gleichung (2.14) ist  $m_i$  die Masse eines Eiskristalles,  $\eta_a$  die dynamische Viskosität der Luft und  $\rho_a$  die Luftdichte.

**Sedimentation von Eiskristallen** Bestehen Zirruswolken aus großen Eiskristallen ( $> 20 \mu\text{m}$ , siehe Ende des Abschnitts) spielt Sedimentation eine wichtige Rolle. Die zeitliche Entwicklung der Eiskristallgrößenverteilung und des Eiswassergehaltes kann von ihr stark beeinflusst werden. Die Fallgeschwindigkeit der Partikel ist sowohl von der Partikelgröße als auch von der Partikelform abhängig, wobei zwei Fall-Regime unterschieden werden.

Bei sehr kleinen Eispartikeln mit dem Radius  $r$  (Stokes-Cunningham-Regime) ist die Fallgeschwindigkeit  $v_s$  durch

$$v_s = \frac{2r^2 g (\rho_i - \rho_a) C}{9\eta_a f_1} \quad (2.15)$$

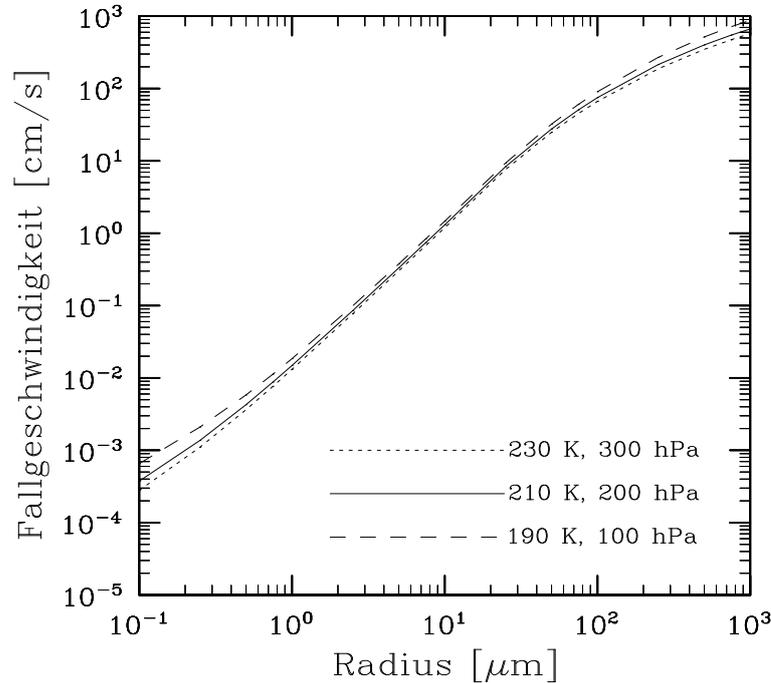
gegeben (Pruppacher und Klett, 1997; Toon et al., 1989). Dabei ist  $g$  die Schwerebeschleunigung und  $\rho_i$  die Dichte von Eis. Der Cunningham-Korrekturfaktor

$$C = 1 + \frac{f_2}{f_1} (1.246K_n + 0.42K_n + e^{-0.87/K_n}) \quad (2.16)$$

berücksichtigt das Schlüpfverhalten der Partikel im Gas und mit Hilfe der Faktoren  $f_1$  und  $f_2$  auch die Partikelform. Für sphärische Eispartikel ist  $f_1 = f_2 = 1$ , für hexagonale Säulen mit einem Aspektverhältnis  $A = 3$  ist  $f_1 = 1.12$  und  $f_2 = 0.58248$  (Müller und Peter, 1992). Gleichung (2.15) gilt für Reynoldszahlen  $Re < 0.01$ , das entspricht Eispartikelgrößen  $< 10 \mu\text{m}$ .

Bei Eispartikelradien  $10 \mu\text{m} < r < 500 \mu\text{m}$  (Oseen-Best-Regime,  $0.01 < Re < 300$ ) gilt für  $v_s$ :

$$v_s = \frac{\eta_a}{\rho_a d} Re . \quad (2.17)$$



**Abb. 2.1:** Sedimentationsgeschwindigkeit von Eiskpartikeln in Abhängigkeit von der Partikelgröße. Im Oseen-Best-Regime (siehe Gleichung (2.17)) wurden hexagonale Säulen mit einem Aspektverhältnis von  $A = 3$  angenommen. Der Radius auf der x-Achse bezieht sich dann auf eine volumenäquivalente Kugel.

In Gleichung (2.17) ist  $d$  der Säulendurchmesser der Eiskristalle. Für die Reynoldszahl  $Re$  von hexagonalen Eissäulen gilt hier wieder die Beziehung (2.13).

Abbildung 2.1 zeigt die mit Hilfe der Gleichungen (2.15) und (2.17) berechnete Sedimentationsgeschwindigkeit  $v_s$  für Eiskpartikel in Abhängigkeit von der Größe der Partikel und für typische Temperatur- und Druckbedingungen in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. Aus Abb. 2.1 geht hervor, daß die Fallgeschwindigkeit hauptsächlich stark von der Partikelgröße abhängig ist. Weiter besteht eine geringe Abhängigkeit vom Luftdruck bzw. der Höhe.

Wird eine typische vertikale Ausdehnung von Zirren in der Bildungsphase von  $\sim 100$  m und eine Bildungszeit von  $\sim 30$  min angenommen, dann müßten zufolge Abb. 2.1 die Eiskpartikel  $\sim 20 \mu\text{m}$  groß sein, damit sie in der Bildungsphase die Strecke von 100m durchfallen können. Aus diesem Grund beginnt Sedimentation bei der Zirrusbildung dann eine Rolle zu spielen, wenn die Eiskristallgrößen in diesen Größenbereich gelangen. Dies betrifft speziell optisch dünne Zirren, bei welchen wenige, aber dafür große Eiskristalle vorliegen.

## 2.2 Klassische Gefriertheorie

Die Bildung von Eiskristallen kann entweder durch homogenes Gefrieren von flüssigen Lösungstropfen erfolgen oder durch feste, unlösliche Teilchen initiiert werden (heterogenes Gefrieren). Die unlöslichen Bestandteile können in wässrige Aerosolpartikel eingelagert sein oder eine weitgehend trockene Oberfläche besitzen. Nachfolgend wird in groben Zügen die klassische Gefriertheorie vorgestellt, wobei nur die wesentlichsten Punkte angeführt werden. Eine ausführliche Herleitung dieser Theorie findet sich bei Pruppacher und Klett (1997).

**Homogenes Gefrieren** Der Phasenumwandlung beim Gefrieren liegt eine ähnliche Theorie zugrunde wie der Kondensation von Tropfen aus der Gasphase (Nukleation von Aerosolen aus der Gasphase). Bei der Nukleation von flüssigen Tropfen aus der Gasphase muß Übersättigung (Sättigungsverhältnis  $S = p_{\infty,w}/p_{\text{sat},w} > 1$ ) herrschen, d.h. der Partialdruck des Wasserdampfes muß größer sein als der Sättigungsdampfdruck. Je höher die Übersättigung, desto größer ist dann die Wahrscheinlichkeit, daß sich ein sogenannter Cluster bzw. kritischer Keim bildet, da mit zunehmender Übersättigung der kritische Radius für die Bildung eines stabilen (wachstumsfähigen) Keimes aufgrund des Kelvin-Effektes (siehe Gleichung 2.6) abnehmen kann.

Ähnlich ist nun beim homogenen Gefrierprozeß eine ausreichende Unterkühlung der Tropfen notwendig, damit sich in der Flüssigkeit ein stabiler Eiskeim bilden kann, gefolgt von der raschen Kristallisation des gesamten Tropfens. Dabei ist die homogene Nukleation eines solchen Eiskeimes ein stochastischer Prozeß, d.h. die Bildung eines Eiskeimes hängt nicht von der Anzahl der Versuche ab, sondern hat zufälligen Charakter. Die Nukleationsrate  $J$  beschreibt die je Volumen- und Zeiteinheit neugebildeten Eiskeime. Pruppacher und Klett (1997) geben für die Keimbildung von Eis in unterkühltem Wasser folgende Rate an:

$$J = 2N_c \left( \frac{\rho_w kT}{\rho_i h} \right) \left( \frac{\sigma_{i/w}}{kT} \right)^{1/2} \exp \left[ -\frac{\Delta F_{\text{act}} + \Delta F_g}{kT} \right]. \quad (2.18)$$

In (2.18) ist  $k$  die Boltzmann-Konstante,  $h$  die Planck-Konstante und  $N_c$  die Anzahl der Moleküle in Kontakt mit der Oberfläche eines Eiskeimes. Aus Gleichung (2.18) geht hervor, daß bei der Eiskristallisation zwei Energiebarrieren überwunden werden müssen. Die freie Energie oder Keimbildungsenergie  $\Delta F_g$  ist jene Arbeit, die gegen die Grenzflächenspannung  $\sigma_{i/w}$  zwischen den beiden Phasen fest (Index  $i$ ) und flüssig (Index  $w$ ) aufgebracht werden muß, um die Oberfläche eines Eiskeimes zu vergrößern. Sie ist daher von der Oberflächenenergie und der Keimgröße abhängig. Unter der Annahme von sphärischen Eiskeimen gilt:

$$\Delta F_g = \frac{4\pi r_g^2 \sigma_{i/w}}{3}. \quad (2.19)$$

In Gleichung (2.19) ist  $r_g$  der kritische Keimradius:

$$r_g = \frac{2M_w \sigma_{i/w}}{L_m \rho_i \ln(T_o/T_e)}. \quad (2.20)$$

Der Logarithmus  $\ln(T_o/T_e)$  ist hier ein Maß für die Tropfenunterkühlung.  $T_o$  ist die aktuelle Temperatur,  $T_e$  ist die thermodynamische Gleichgewichtstemperatur beim Schmelzen (273.15 K). Eine Näherung ist hier, daß die latente Schmelzwärme  $L_m$  und die Dichte von Eis  $\rho_i$  über das Temperaturintervall  $T_o$  bis  $T_e$  gemittelt ist. Zuzufolge (2.20) kann ein nukleierter Eiskeim weiter anwachsen, wenn sein Radius  $r > r_g$  ist, bzw. muß die Unterkühlung mit abnehmendem Keimradius zunehmen, damit der Keim wachstumsfähig ist. Neben der freien Energie tritt als zweite Energiebarriere beim Phasenübergang flüssig auf fest die Aktivierungsenergie  $\Delta F_{act}$  auf. Diese Energie muß von den Molekülen bei der Diffusion durch die Phasengrenze aufgebracht werden.

Der kinetische Vorfaktor vor dem Exponenten in Gleichung (2.18) zeigt nur eine kleine Abhängigkeit von der Temperatur und hat einen relativ geringen Einfluß auf die Nukleationsraten (Pruppacher und Klett, 1997). Die große Schwierigkeit bei der Anwendung der klassischen Gefriertheorie in mikrophysikalischen Simulationsmodellen ist die Bestimmung der beiden Energien  $\Delta F_g$  und  $\Delta F_{act}$  zur Ermittlung der Nukleationsrate  $J$  mit Hilfe von Gleichung (2.18). Die freie Energie  $\Delta F_g$  läßt sich im Prinzip mit der Gleichung (2.19) berechnen. Dabei ist die wichtige Größe die Grenzflächenspannung. Für reines Wasser ist  $\sigma_{i/w}$  noch gut untersucht (Pruppacher und Klett, 1997). Für Gemische wie z.B. binäre  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen gibt es jedoch keine Labormessungen für die Grenzflächenspannung  $\sigma_{i/s}$  der extrem kleinen (einige nm) Kerne. Häufig wird daher  $\sigma_{i/s}$  über die Grenzflächenspannungen von planen Schwefelsäurelösungen  $\sigma_{s/a}$  und von Eis  $\sigma_{i/a}$  in Kontakt mit Luft angenähert (Tabazadeh et al., 1997). Diese Grenzflächenspannungen sind jedoch auch nur in einem begrenzten Temperatur- und Konzentrationsbereich vermessen, weshalb für typische Bedingungen in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre die Werte extrapoliert werden müssen.

Eine weitere große Unsicherheit bei der Berechnung der klassischen Nukleationsraten stellt die Bestimmung der Aktivierungsenergie  $\Delta F_{act}$  dar. In vielen Arbeiten wird  $\Delta F_{act}$  häufig aus der Selbstdiffusion oder der Viskosität der Flüssigkeit berechnet (Pruppacher und Klett, 1997). Bei dieser Methode muß jedoch bei starken Unterkühlungen  $\Delta F_{act}$  zu niedrigen Temperaturen extrapoliert werden, was zu einer Unterschätzung der berechneten Nukleationsraten führt. Deshalb haben Pruppacher und Klett (1997) eine neue Methode vorgestellt, bei der  $\Delta F_{act}$  mit Hilfe von experimentell bestimmten Nukleationsraten bestimmt wird. Bei dieser Methode wird dann  $\Delta F_{act}$  so angepaßt, daß die mit Hilfe von Gleichung (2.18) berechneten Nukleationsraten mit den gemessenen Raten übereinstimmen (siehe dazu auch Jensen et al., 1994a; Tabazadeh et al., 1997).

**Heterogenes Gefrieren** Im Unterschied zum homogenen Gefrieren findet bei der heterogenen Nukleation von Eis die Eiskeimbildung an der Oberfläche eines festen Aerosolteilchen statt. In der Atmosphäre können derartige Gefrier- oder Eiskerne (IN, "ice nuclei") z.B. Rußpartikel oder Mineralstaub sein.

Heterogenes Gefrieren kann auf unterschiedlichem Wege stattfinden. Beim *Depositionsgefrieren* nukleieren Eiskeime aus der Gasphase an der Oberfläche der IN durch Deposition von Wasserdampf. *Kondensationsgefrieren* findet statt, wenn die Luft bezüglich Wasser übersättigt ist. Das IN wirkt dabei als Kondensationskern und initiiert während

der Kondensation den Gefrierprozeß. Kollidiert ein IN mit einem unterkühlten Tropfen und wird dabei ein Gefrierprozeß ausgelöst, wird dies als *Kontaktgefrieren* bezeichnet. Es bleibt als letzte Möglichkeit das sogenannte *Immersionsgefrieren*, bei dem ein IN in einem Lösungstropfen eingebettet ist. Bei der Bildung von kalten Zirren im Bereich der Tropopause sind die drei erstgenannten Prozesse von untergeordneter Bedeutung. Das Immersionsgefrieren kann in dieser Region als der dominierende heterogene Gefriermechanismus angesehen werden (Kärcher und Lohmann, 2003).

Da bei der heterogenen Eisnukleation die Moleküle auf einer bereits bestehenden Oberfläche deponiert werden, wird die notwendige Keimbildungsenergie herabgesetzt. Daher sind beim heterogenen Gefrieren geringere Tropfenunterkühlungen notwendig. Die für die homogene Nukleation geltende Keimbildungsenergie  $\Delta F_{g,hom}$  (siehe Gleichung (2.19)) wird im heterogenen Fall folgendermaßen modifiziert (Pruppacher und Klett, 1997):

$$\Delta F_{g,het} = \Delta F_{g,hom} f(m, x) . \quad (2.21)$$

Der Faktor  $f(m, x)$  wird als Fletcher-Korrekturterm bezeichnet (Fletcher, 1962). Er ist abhängig von  $x = r_{IN}/r_g$  mit  $r_{IN}$  dem Radius des festen Gefrierkernes und  $r_g$  dem kritischen Eiskeimradius, und dem sogenannten Kontaktparameter  $m$ . Der Parameter  $m$  ist der Kosinus des Kontaktwinkels  $\Theta$ :

$$m = \cos\Theta = \frac{\sigma_{IN/w} - \sigma_{IN/i}}{\sigma_{i/w}} . \quad (2.22)$$

In (2.22) ist  $\sigma_{IN/w}$  die Grenzflächenspannung IN gegen Flüssigkeit,  $\sigma_{IN/i}$  die Spannung IN gegen Eis und  $\sigma_{i/w}$  gilt für Eis gegen Flüssigkeit. Der Faktor  $f(m, x)$  folgt aus der Kontaktgeometrie des Eiskeimes zum IN. Er ist ein Maß dafür, wie geeignet bestimmte feste Teilchen als Gefrierkerne sind. Gerade hier liegt die beschränkte Anwendbarkeit der klassischen Gefriertheorie für heterogenes Gefrieren. Die Oberflächenbeschaffenheit und chemische Struktur der Gefrierkerne in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre ist nämlich weitgehend unbekannt. Speziell die Morphologie der Gefrierkerne spielt aber eine große Rolle bei der Initiierung der Eisphase. So kann aufgrund von "aktiven Stellen" an der Oberfläche der Kerne die Gefrierwahrscheinlichkeit stark erhöht sein (Pruppacher und Klett, 1997). Allgemein sind die verschiedenartigen Eigenschaften von Gefrierkernen kompliziert, um in die klassische Gefriertheorie eingehen zu können. Die Oberflächenspannungen  $\sigma_{IN/w}$  und  $\sigma_{IN/i}$  für die Gefrierkerne sind praktisch nicht zu bestimmen. Eine quantitative Bestimmung von heterogenen Nukleationsraten auf diesem Wege ist daher nur unter einer Vielzahl von Annahmen und unter großen Vorbehalten möglich.

Aufgrund der genannten Probleme beschränkt man sich bei Experimenten auf einfachere Modelle, um den heterogenen Gefrierprozeß zu beschreiben. Pruppacher und Klett (1997) weisen dabei darauf hin, daß der heterogene Gefrierprozeß mit Hilfe von zwei unterschiedlichen Hypothesen beschrieben werden kann: Bei der *stochastischen Hypothese* wird angenommen, daß ein fester Gefrierkern im Tropfen zwar die Wahrscheinlichkeit der Eiskeimbildung erhöht, die stochastische Natur des Prozesses aber davon unberührt bleibt. Bei dieser Hypothese sollte sich also bei einer bestimmten Temperatur nach einer gewissen Zeit die gleiche statistische Verteilung der gefrorenen Tropfen zeigen wie bei der

homogenen Nukleation. Auf der anderen Seite geht die *singulare Hypothese* davon aus, daß jeder einzelne IN eine charakteristische Temperatur hat, bei der der Gefrierprozeß initiiert wird, d.h. der Gefrierprozeß ist nur von der Gefriertemperatur der Eiskerne abhängig. Die Anzahl der gefrorenen Tropfen wird dadurch unabhängig von der Zeit.

## 2.3 Aktivitätsparametrisierung für homogenes Gefrieren

Wie in Abschnitt 2.2 erwähnt wurde, besteht bei der Anwendung der klassischen Gefriertheorie die Schwierigkeit, in Abhängigkeit von der chemischen Zusammensetzung der flüssigen Aerosolpartikel Größen wie die Grenzflächenspannung  $\sigma_{i/w}$  und die Aktivierungsenergie  $\Delta F_{act}$  zu bestimmen. Zudem werden diese Größen meist bei relativ hohen Temperaturen gemessen, weshalb bei einer Simulation von Zirren extrapoliert werden muß und dadurch Fehler auftreten.

Koop et al. (2000) haben in einer Reihe von Labormessungen die kritische Übersättigung  $s_{cr} = S_{cr} - 1$  in Bezug auf Eis gemessen, bei der homogene Nukleation in unterkühlten Lösungstropfen initiiert wird, wobei eine Vielzahl von verschiedenen binären und ternären Lösungen untersucht wurde. Dabei hat sich überraschenderweise gezeigt, daß die Abhängigkeit von  $s_{cr}$  von der Temperatur für alle untersuchten Aerosoltypen ähnlich war,  $s_{cr}$  also unabhängig von der chemischen Natur der Lösungen ist. Koop et al. (2000) haben deshalb eine Parametrisierung für die homogene Nukleationsrate  $J_{hom}$  entwickelt, in welcher  $J_{hom}$  nur eine Funktion der Übersättigung und der Temperatur ist, oder äquivalent nur von der Wasseraktivität der Aerosolpartikel abhängig ist.

Das Sättigungsverhältnis der Luft in Bezug auf Eis kann auch über die Wasseraktivität der Aerosole ausgedrückt werden:

$$S = \frac{p_{\infty,w}}{p_{sat,i}} = \frac{a_w}{a_w^i} . \quad (2.23)$$

Für Aerosole im Gleichgewicht mit dem Wasserdampf ist  $a_w$  äquivalent der relativen Feuchte RH:

$$a_w = \frac{p_{e,s}}{p_{e,w}} = \frac{RH}{100\%} . \quad (2.24)$$

In (2.23) ist  $a_w^i$  die Wasseraktivität einer Lösung im Gleichgewicht mit Eis, für die in Abhängigkeit von der Temperatur  $T$  (in K) gilt (Koop et al., 2000):

$$a_w^i = \exp \left( \frac{210368 + 131.438T - 3.32373 \times 10^6 T^{-1} - 41729.1 \ln(T)}{8.3145 T} \right) \quad (2.25)$$

Für die homogene Nukleationsrate (in  $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$ ) gilt nun:

$$\log(J_{hom}) = -906.7 + 8502\Delta a_w - 26924(\Delta a_w)^2 + 29180(\Delta a_w)^3 , \quad (2.26)$$

mit

$$\Delta a_w = a_w - a_w^i . \quad (2.27)$$

Diese Parametrisierung der Nukleationsrate in Abhängigkeit von  $\Delta a_w$ ,

$$J_{\text{hom}} = J_{\text{hom}}(\Delta a_w) , \quad (2.28)$$

hat nun bei der Anwendung in mikrophysikalischen Modellen den Vorteil, daß die temperatur- und konzentrationsabhängige homogene Nukleationsrate relativ einfach mit Hilfe von (2.26) berechnet werden kann. Ist  $n_{\text{aer}}$  eine bestimmte Anzahl monodisperser Lösungstropfen mit dem Volumen  $V$ , dann gilt für die Anzahl der Eispartikel  $n_{\text{ice}}$ , die im Zeitintervall  $t = 0$  bis  $t$  gebildet werden (Pruppacher und Klett, 1997):

$$n_{\text{ice}} = n_{\text{aer}} [1 - \exp(-V J_{\text{hom}} t)] . \quad (2.29)$$

Der Faktor

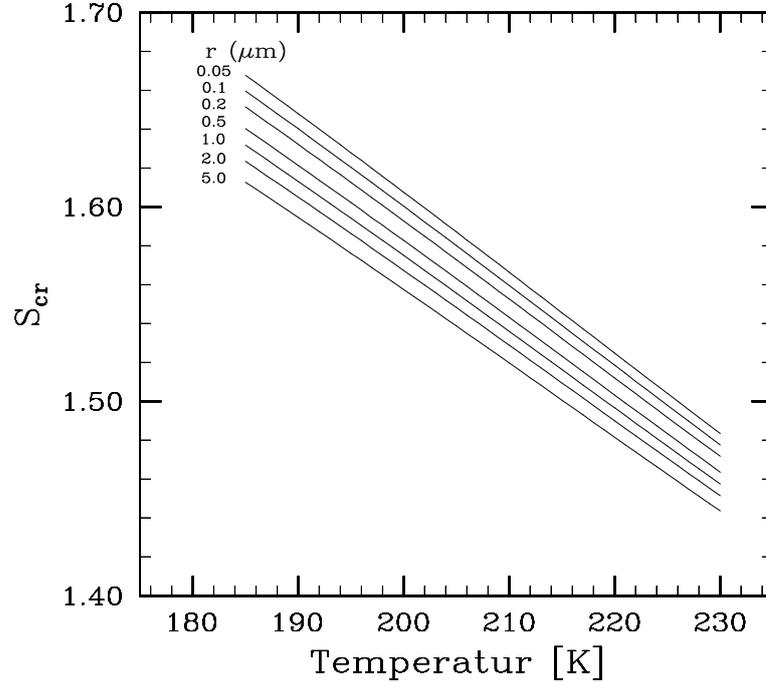
$$P = 1 - \exp(-V J_{\text{hom}} t) \propto V \quad (2.30)$$

wird auch als Gefrierwahrscheinlichkeit bezeichnet. Je größer  $V$ , desto größer die Wahrscheinlichkeit  $P$  der Eiskeimbildung mit anschließender Kristallisation des Tropfen (Volumeneffekt). Das Produkt  $\omega = V J_{\text{hom}}$  wird als Gefriertrate bezeichnet (in  $\text{s}^{-1}$ ). Die kritische Übersättigung  $s_{\text{cr}}$  bezogen auf Eis in Abhängigkeit von der Temperatur und der Partikelgröße kann mit Hilfe von (2.26) berechnet werden, wenn gilt:

$$\omega \Delta t = V J_{\text{hom}} \Delta t = \frac{4\pi}{3} r^3 J_{\text{hom}} \Delta t = 1 . \quad (2.31)$$

Löst man (2.31) nach  $a_w$  auf, erhält man  $s_{\text{cr}}$  aus (2.23). Setzt man für  $\Delta t = 1$  sec, dann ist  $s_{\text{cr}}$  jene kritische Übersättigung, bei der ein Partikel mit der Radius  $r$  im Zeitraum von 1 sec gefriert. Setzt man  $\Delta t = 1$  min, bezieht sich  $s_{\text{cr}}$  auf eine Gefrierdauer von 1 min. Abbildung 2.2 zeigt das kritische Sättigungsverhältnis  $S_{\text{cr}}$  für verschiedene Partikelgrößen und Temperaturen berechnet mit Hilfe von (2.31). Als Folge des Volumeneffektes gefrieren bei gleicher Temperatur große Lösungstropfen homogen bei geringeren Übersättigungen als kleine. Weiter prognostiziert die Aktivitätsparametrisierung von Koop et al. (2000), daß  $S_{\text{cr}}$  zunimmt, wenn die Temperatur abnimmt.

Bei den Gefrierexperimenten von Koop et al. (2000), auf welchen die vorgestellte Aktivitätsparametrisierung für die Nukleationsraten basiert, wurden stets monodisperse Tropfen im Gleichgewicht mit der  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphase untersucht. Bei polydispersen Aerosolen und bei starken Kühlraten in der realen Atmosphäre können jedoch deutliche Abweichungen von diesem Gleichgewicht vorkommen. Trotzdem kann diese Parametrisierung sehr gut zur Simulation von Zirrusbildung in der realen Atmosphäre angewandt werden, da sie von der aktuellen Aktivität  $a_w$  der Aerosolpartikel abhängt (und nicht von der relativen Feuchte). Dies wird anhand der Simulationen in Kapitel 4 gezeigt.



**Abb. 2.2:** Kritisches Sättigungsverhältnis  $S_{\text{cr}}$  in Bezug auf Eis für homogenes Gefrieren von Lösungstropfen nach Koop et al. (2000). Die Kurven beziehen sich auf monodisperse Partikel mit unterschiedlichen Radien, die innerhalb 1 min gefrieren.

## 2.4 Anpassung für heterogenes Gefrieren

Eine Berechnung der heterogenen Nukleationsraten  $J_{\text{het}}$  in numerischen Modellen mit Hilfe der klassischen Gefriertheorie ist mit großen Schwierigkeiten und Unsicherheiten verbunden (siehe Abschnitt 2.2). Basierend auf der Aktivitätsparametrisierung von Koop et al. (2000) haben deshalb Kärcher und Lohmann (2003) eine relativ einfache Methode vorgestellt, heterogene Nukleationsraten in numerischen Modellen konsistent zur Aktivitätsparametrisierung für die homogene Nukleation zu berechnen.

Prinzipiell lassen sich die kritischen Übersättigungen bzw. Gefrierfeuchten mit Hilfe von Messungen bestimmen (siehe Kapitel 5). Es braucht aber entsprechende Formulierungen für  $J_{\text{het}}$ , um Eisinitiation und Eispartikelwachstum (Wolkenbildung) in numerischen Modellen prognostizieren zu können. Hier setzt die Parametrisierung von Kärcher und Lohmann (2003) an: Wird das kritische Sättigungsverhältnis  $S_{\text{cr}}^{\text{het}}$ , bei der heterogenes Gefrieren einsetzt, vorgeschrieben, kann die diesem Wert entsprechende heterogene Nukleationsrate berechnet werden. Dies geschieht, indem die Wasseraktivität  $a_w^{\text{hom}}$ , mit welcher Aerosole homogen bei  $S_{\text{cr}}^{\text{hom}}$  gefrieren, um einen Betrag  $\delta a_w$  verringert wird, so daß Gefrieren bereits bei  $S_{\text{cr}}^{\text{het}} < S_{\text{cr}}^{\text{hom}}$  einsetzt. Dabei gilt:

$$a_w^{\text{het}} + \delta a_w - a_w^i \equiv a_w^{\text{hom}} - a_w^i = \Delta a_w = \text{const} ; \quad (2.32)$$

Letztere Beziehung ist durch die Messungen von Koop et al. (2000) begründet. Mit  $S_{\text{cr}}^{\text{hom}} =$

$a_w^{\text{hom}}/a_w^i$  und  $S_{\text{cr}}^{\text{het}} = a_w^{\text{het}}/a_w^i$  erhält man dann aus (2.32):

$$\delta a_w = (S_{\text{cr}}^{\text{hom}} - S_{\text{cr}}^{\text{het}}) a_w^i . \quad (2.33)$$

Für  $a_w^i$  gilt Gleichung (2.25). Die heterogene Nukleationsrate ist nun gegeben durch:

$$J_{\text{het}}(a_w, T) = \Delta \cdot J_{\text{hom}}(a_w + \delta a_w, T) . \quad (2.34)$$

Für  $J_{\text{hom}}$  in (2.34) gilt die Gleichung (2.26). Der Faktor  $\Delta \simeq 30$  nm berücksichtigt die verschiedenen Vorfaktoren in den Formulierungen für die Nukleationsraten für homogenes und heterogenes Gefrieren (Kärcher und Lohmann, 2003). Im Fall von Immersionsgefrieren, wo die heterogene Nukleation an der Oberfläche eines im Tropfen eingefangenen Gefrierkernes stattfindet, gleichzeitig aber auch homogene Nukleation in der umgebenden Flüssigkeit stattfinden kann, lautet die Formulierung für die Gefrierate  $\omega_{\text{mix}}$ :

$$\omega_{\text{mix}} = 4\pi r_{\text{IN}}^2 J_{\text{het}} + \frac{4\pi (r^3 - r_c^3)}{3} J_{\text{hom}} . \quad (2.35)$$

In Gleichung (2.35) ist  $r_{\text{IN}}$  der Radius des unlöslichen heterogenen Gefrierkernes in einem Lösungstropfen mit dem Radius  $r$ . Angenommen wird hier, daß heterogene und homogene Nukleation voneinander unabhängig agieren. Für den Grenzfall  $r_{\text{IN}} \ll r$  reduziert sich (2.35) auf homogenes Gefrieren. Der Fall  $r_{\text{IN}} \rightarrow r$  (trockener Gefrierkern) kann als grobe Näherung für Depositionsgefrieren verstanden werden, bei der sich die Keime sehr rasch über die gesamte Oberfläche des Gefrierkernes ausbreiten.

# Kapitel 3

## Modellsystem APSC

### 3.1 Allgemeines und Hauptmerkmale

Für die numerischen Simulationen in der vorliegenden Arbeit kommt das DLR-eigene Modellsystem APSC zum Einsatz. Es handelt sich hierbei um einen Simulationscode, der im Rahmen der Arbeit je nach Anwendungsform entweder als Boxmodell für stationäre Luftmassen oder für experimentell bestimmte thermodynamische Bedingungen in einer Aerosolkammer betrieben wird (siehe Kapitel 4), oder im Lagrange'schen Sinn entlang von atmosphärischen Trajektorien (siehe Kapitel 5 und 6) verwendet wird. Neben mikrophysikalischen und dynamischen Prozessen können auch eine Gasphasenchemie für die Aerosol-Vorläufergase, Entrainment- und Detrainmentprozesse (Vermischung) und optische Partikeleigenschaften behandelt werden. Das Modell hat eine modulare Struktur, d.h. die einzelnen Prozesse werden in getrennten Modulen innerhalb eines Zeitschrittes nacheinander berechnet. Ist  $c$  beispielsweise die Anzahlkonzentration der  $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle in der Gasphase, dann ist im Modell die zeitliche Änderung dieser Konzentration die Summe aller Änderungen zufolge der verschiedenen physikalischen Prozesse:

$$\frac{dc}{dt} = \underbrace{\left(\frac{dc}{dt}\right)}_{\text{Dynamik}} + \underbrace{\left(\frac{dc}{dt}\right)}_{\text{Mikrophysik}} + \underbrace{\left(\frac{dc}{dt}\right)}_{\text{Gasphasenchemie}} + \underbrace{\left(\frac{dc}{dt}\right)}_{\text{Vermischung}} . \quad (3.1)$$

Dieser Modellaufbau hat den Vorteil, daß durch einfaches Ein- oder Ausschalten von Modulen in den Simulationen die behandelten Prozesse gewählt werden können. Für die Simulationen in dieser Arbeit spielen nur mikrophysikalische und dynamische Prozesse eine Rolle. Nachfolgend werden daher nur jene Modelleigenschaften und Modellteile beschrieben, welche für diese Arbeit von Bedeutung sind.

#### 3.1.1 Partikeltypen

Im Modell werden grundsätzlich zwei Partikeltypen unterschieden: flüssige Aerosolpartikel und Eispartikel, wobei der Einschluß von festen Kernen wie Rußpartikel in den flüssigen

Aerosolen möglich ist. Flüssige Partikel sind entweder reine Wassertropfen oder Gemische bestehend aus maximal fünf Lösungskomponenten ( $\text{H}_2\text{O}/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{HCl}/\text{HBr}$ -Gemische). Bei der Simulation von Gefrierprozessen werden dann die gefrorenen Lösungstropfen als eigener Partikeltyp (Eiskristalle) behandelt. Bei den Aerosolkomponenten wird im Modell unterschieden zwischen flüchtigen Substanzen, welche durch Kondensation und Verdunstung in die Aerosolphysik involviert sind und daher sowohl in gasförmiger als auch partikulärer Form vorkommen (beispielsweise  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{HNO}_3$  bei ternären Lösungen), weiter nichtflüchtige aber chemisch aktive Substanzen wie  $\text{H}_2\text{SO}_4$  in kondensierter Phase unter Temperaturbedingungen der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre, und daneben noch ausschließlich feste Substanzen wie beispielsweise Ruß. Bei den flüchtigen Substanzen kann die Konzentration in den verschiedenen Phasen unabhängig voneinander initialisiert werden.

### 3.1.2 Größenverteilung und Gitterstrukturen

**Diskretisierung** Im Fall von binären  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen erfolgt die Initialisierung der Größenverteilung der Aerosolpartikel als Lognormalverteilung mit den Inputparametern trockene  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Masse, Massen-Medianradius  $r_m$  und geometrische Standardabweichung  $\sigma$ , wobei eine trimodale Initialisierung mit Nukleationsmode, Akkumulationsmode und einer Grobpartikelmode möglich ist. Die Größenverteilung wird beginnend mit einem Minimalradius  $r_{\min}$  der Partikel über eine Anzahl  $N_B$  von Größenbins diskretisiert, wobei die Diskretisierung nach einem konstanten Volumenverhältnis  $V_{\text{rat}}$  erfolgt, d.h. das initialisierte Volumen der Partikel in einem bestimmten Größenbin  $v_i$  ist immer gleich dem Volumen der Partikel im nächst kleineren Bin  $v_{i-1}$  multipliziert mit dem Volumenverhältnis  $V_{\text{rat}}$ :

$$v_i = V_{\text{rat}} v_{i-1} \quad i = 1, \dots, N_B \quad (3.2)$$

Das Volumen  $v_i$  repräsentiert das mittlere Volumen der Partikel in einem Bin:

$$v_i = \frac{v_{i,hi} + v_{i,lo}}{2} \quad (3.3)$$

In (3.3) ist  $v_{i,hi}$  das größtmögliche Partikelvolumen in einem Bin,  $v_{i,lo}$  das kleinste Partikelvolumen:

$$v_{i,hi} = V_{\text{rat}} v_{i,lo}, \quad v_{i,lo} = \frac{2v_i}{1 + V_{\text{rat}}} \quad (3.4)$$

Die Parameter  $N_B$ ,  $V_{\text{rat}}$  und  $r_{\min}$  können unabhängig voneinander spezifiziert werden, wodurch je nach Art der Modellanwendung sehr hochaufgelöst diskretisiert oder nur ein sehr grobes Größengitter verwendet werden kann. Je feiner das Größengitter bzw. je größer die Anzahl der Bins, desto größer der Rechenaufwand, weshalb vor allem bei Langzeit-Simulationen auf vielen Trajektorien (siehe Kapitel 5 und 6) aus Gründen der Rechenzeit die Anzahl der Bins möglichst kleingehalten wird.

Wie bereits weiter oben erwähnt, unterscheidet das Modell zwischen den Partikeltypen fest und flüssig. Bei der Simulation von Gefrierprozessen gelten daher die nachfolgenden Beziehungen gleichzeitig immer für die Lösungstropfen und die Eispartikel. Für die Anzahlkonzentration  $n_i$  und die Volumenkonzentration  $v_i$  der Partikel gilt in einem Bin die Beziehung

$$n_i = \frac{v_i}{v_i} , \quad (3.5)$$

und unter der Annahme sphärischer Partikel mit einem Binradius  $r_i$  gilt für die Oberflächenkonzentration  $a_i$ :

$$a_i = n_i 4\pi r_i^2 . \quad (3.6)$$

Die totale Anzahl von festen oder flüssigen Partikeln  $n_t$  im Modell ist die Summe der Anzahlkonzentrationen über alle Größenbins:

$$n_t = \sum_{i=1}^{N_B} n_i . \quad (3.7)$$

Sind die Partikel aus mehreren Komponenten zusammengesetzt, wobei  $N_K$  die Anzahl der Komponenten ist (binäre Lösungstropfen,  $N_K = 2$ ), dann ist

$$v_i = \sum_{q=1}^{N_K} v_{q,i} , \quad (3.8)$$

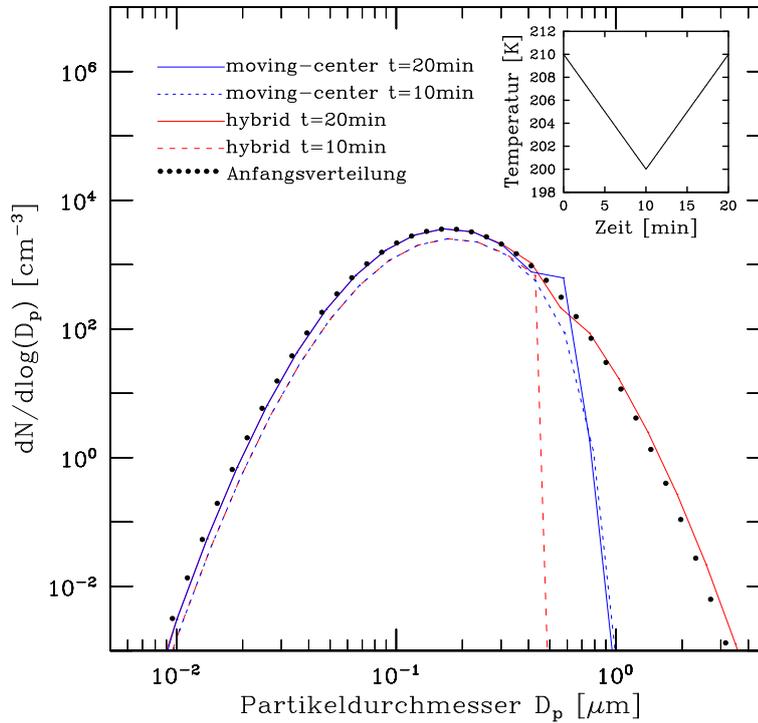
wobei  $v_{q,i}$  die Volumenkonzentration einer Komponente  $q$  im Bin  $i$  ist. Für die Massenkonzentration  $m_i$  im Bin gilt dann

$$m_i = \sum_{q=1}^{N_K} m_{q,i} , \quad (3.9)$$

mit  $m_{q,i} = \rho_q v_{q,i}$  der Massenkonzentration der Komponente  $q$  und  $\rho_q$  der Dichte von  $q$ .

**Gitterstrukturen** Das APSC-Modell erlaubt eine Simulation von Wachstums- und Gefrierprozessen mit drei verschiedenen Gitter- bzw. Größenstrukturen, welche die zeitliche Entwicklung der Größenverteilung bestimmen. Je nach Problemstellung kann wahlweise ein diffusives quasi-stationäres Gitter, ein nicht-diffusives quasi-stationäres Gitter (‘‘Moving-Center’’-Gitter) oder ein quasi-Lagrange’sches Gitter (hybrides Gitter) verwendet werden (Jacobson, 1999). Bei allen von diesen Gitterstrukturen haben alle Partikel in einen Größenbin ein bestimmtes Volumen und dieselbe chemische Zusammensetzung.

Je nach Art der simulierten Prozesse haben die verschiedenen Gitterstrukturen bestimmte Vor- und Nachteile. In der vorliegenden Arbeit wird das Modell APSC nur zur Simulation von Wachstums- und Gefrierprozessen genutzt, weshalb nachfolgend nur die



**Abb. 3.1:** Zeitliche Entwicklung der Aerosolgrößenverteilung während eines APSC-Testlaufes für homogenes Gefrieren von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Aerosolen. Die roten Kurven zeigen die Größenverteilung der flüssigen Lösungstropfen bei Verwendung des hybriden Gitters, bei den blauen Kurven wurde mit dem Moving-Center-Gitter gerechnet.

Eigenschaften der Größenstrukturen bei Partikelwachstum und Gefrieren beschrieben werden.

In einer quasi-stationären Größenstruktur wird bei Partikelwachstum das Volumen der Partikel in einem Bin während eines Zeitschrittes real erhöht. Dieses aktuelle Partikelvolumen im Bin wird allerdings nach jedem Zeitschritt auf das ursprüngliche mittlere Volumen  $v_i$  zurückgesetzt und der Wachstumsanteil des Volumens wird auf die benachbarten Bins aufgeteilt, indem in diesen Bins die Anzahl- und Volumenkonzentration der Partikel erhöht wird. Aufgrund dieser Partitionierung von Anzahl- und Volumenkonzentration bei Partikelwachstum ist die quasi-stationäre Größenstruktur numerisch stark diffusiv, d.h. bei Wachstumsprozessen wird die Größenverteilung des Aerosols künstlich verbreitert. Aus diesem Grund ist die quasi-stationäre Struktur bei der Simulation von Partikelwachstum nur bedingt anwendbar.

Die Moving-Center-Struktur ist ähnlich der quasi-stationären Struktur, jedoch mit dem Vorteil, daß numerische Diffusion weitgehend eliminiert wird. Bei dieser Struktur wird das mittlere Partikelvolumen  $v_i$  in einem Bin nicht festgehalten, sondern es kann zwischen den fixen Bingrenzen  $v_{i,lo}$  und  $v_{i,hi}$  variieren. Über- bzw. unterschreitet dann bei Wachstumsprozessen das Volumen der Partikel die entsprechenden Werte  $v_{i,hi}$  bzw.  $v_{i,lo}$  an den Bingrenzen, werden alle Partikel in jenen Bin verschoben, in dem das neue

Partikelvolumen innerhalb seiner Binngrenzen liegt. Indem alle Partikel in denselben Bin verschoben und nicht zwischen benachbarten Bins aufgeteilt werden, ist diese Größenstruktur weitgehend frei von numerischer Diffusion.

Bei einer hybriden Größenstruktur werden flüchtige Substanzen wie  $\text{H}_2\text{O}$  oder  $\text{HNO}_3$  und nichtflüchtige Substanzen in fester (z.B. Gefrierkerne) oder kondensierten Phase (z.B.  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) getrennt behandelt. Auf die flüchtigen Substanzen wird ein Lagrange'sches Gitter angewandt, auf die Nichtflüchtigen das quasi-stationäre Gitter. Bei Kondensation der flüchtigen Substanzen im Lagrange'schen Gitter können die Partikel zu ihrer exakten Größe anwachsen, ohne daß eine Verschiebung von Partikeln in andere Größenbins erfolgt. Dadurch wird numerische Diffusion eliminiert.

Abbildung 3.1 zeigt die zeitliche Entwicklung der Anzahlgrößenverteilung der flüssigen Aerosole bei ein Testlauf mit dem APSC-Modell für homogenes Gefrieren von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen. Bei diesem Testlauf wurde für die Dauer von 10 min gekühlt und dadurch ein Gefrierprozeß bei den Aerosolen am rechten Rand des Partikelspektrums initiiert. Anschließend wird das Gas mit der gleichen Rate wieder erwärmt, wodurch die Eispartikel wieder verdampfen (Temperaturverlauf, siehe kleine Abb.). Die Abbildung verdeutlicht, worin der Nachteil des Moving-Center-Gitters gegenüber der hybriden Gitterstruktur besteht. Wird die Moving-Center-Struktur verwendet (blaue Kurven), dann wird nach der Bildung und dem Verdampfen der Eispartikel die ursprüngliche Größenverteilung der Schwefelsäureaerosole nicht wieder hergestellt (vergleiche blaue durchgezogene Kurve und gepunktete Kurve). Dies kommt daher, weil allgemein durch das Verschieben von Partikeln in andere Größenbins bei Partikelwachstum in diesem Gitter die Information über die ursprüngliche Größe der nichtflüchtigen Substanzen ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ , feste Kerne) teilweise verloren geht, da das Volumen dieser nichtflüchtigen Kerne in einem Größenbin immer über die totale Anzahl der Partikel im Bin gemittelt wird. Bei der hybriden Gitterstruktur (rote Kurven) bleibt hingegen dieses mittlere Volumen der nichtflüchtigen Partikelkerne erhalten, da kein Verschieben von Partikeln in andere Größenbins erfolgt. Dieses Gitter hat daher den Vorteil, daß die ursprüngliche Größenverteilung der Partikel näherungsweise wiederhergestellt wird, wenn die Eispartikel verdampft sind.

Für die Simulationen in dieser Arbeit wird das Moving-Center-Gitter verwendet, weil es Vorteile bei der Simulation von Gefrierprozessen hat (siehe Abschnitt 3.2). In Kapitel 6 werden Simulationen präsentiert, bei denen Zyklen von Zirrusbildungen durchlaufen werden. Der eben beschriebene Nachteil des Moving-Center-Gitters bezüglich der Größenverteilung der Aerosolpartikel wird in diesen Simulationen dadurch umgangen, indem nach Auflösung einer Zirruswolke im Modell wieder die Anfangsgrößenverteilung der Aerosolpartikel reinitialisiert wird.

## 3.2 Physikalische Prozesse

### 3.2.1 Massenerhaltung und Dynamik

**Massenerhaltung** Die totale Anzahlkonzentration von Molekülen  $c_{q,\text{tot}}$  einer Substanz  $q$  ( $\text{H}_2\text{O}$  oder  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) muß bei gegebenen Temperatur- und Druckbedingungen erhalten

bleiben:

$$c_{q,\text{tot}} = c_{q,g} + \sum_{i=1}^{N_B} c_{q,i,\text{aer}} + \sum_{i=1}^{N_B} c_{q,i,\text{ice}} . \quad (3.10)$$

Mikrophysikalische Prozesse bestimmen die Partitionierung der Moleküle zwischen der Gasphase  $c_{q,g}$ , der flüssigen  $c_{q,i,\text{aer}}$  und der festen Phase  $c_{q,i,\text{ice}}$  in den Größenbins  $i$ .

**Dynamische Änderung** Bei Druck- und Temperaturänderungen ändern sich die auf das Luftvolumen bezogenen Konzentrationen infolge von Expansion oder Kontraktion des Luftvolumens. Ausgehend von der Zustandsgleichung für ideale Gase erhält man für diese Änderung:

$$\frac{dX}{dt} = \left( \frac{1}{p} \frac{dp}{dt} - \frac{1}{T} \frac{dT}{dt} \right) X \quad (3.11)$$

In (3.11) gilt  $X$  für die Molekülkonzentrationen  $c_{q,g}$ ,  $c_{q,i,\text{aer}}$ ,  $c_{q,i,\text{ice}}$  und für die Partikelkonzentrationen von Aerosolen  $n_{\text{aer},i}$  und Eispartikeln  $n_{\text{ice},i}$ .

### 3.2.2 Mikrophysik

**Gefrierprozeß** Wird im Modell ein Gefrierprozeß eingeleitet, dann gilt für die zeitliche Änderung der Eispartikelkonzentration  $n_{\text{ice},i}$  und der Konzentration der flüssigen Aerosole  $n_{\text{aer},i}$  in einem Größenbin  $i$ :

$$\frac{dn_{\text{ice},i}}{dt} = \omega n_{\text{aer},i} \quad , \quad \frac{dn_{\text{aer},i}}{dt} = -\omega n_{\text{aer},i} . \quad (3.12)$$

Im Fall von homogenem Gefrieren gilt für die Gefriertrate  $\omega = v_i J_{\text{hom}}$ . Für  $J_{\text{hom}}$  gilt Gleichung (2.26),  $v_i$  ist hier das Volumen der Tropfen im Bin  $i$ . Im Fall von heterogenem Gefrieren gilt für  $\omega$  die Gleichung (2.35). Integriert man (3.12) über einen Modellzeitschritt  $\Delta t$ , erhält man für die Anzahl der Eispartikel, die im Zeitraum  $\Delta t$  im Bin  $i$  gebildet werden (siehe auch Gleichung (2.29))

$$n_{\text{ice},i,\Delta t} = n_{\text{aer},i,t-\Delta t} [1 - \exp(-\omega \Delta t)] \quad , \quad (3.13)$$

und für die Abnahme der flüssigen Lösungstropfen über einen Modellzeitschritt

$$n_{\text{aer},i,\Delta t} = n_{\text{aer},i,t-\Delta t} \exp(-\omega \Delta t) . \quad (3.14)$$

In (3.13) und (3.14) ist  $n_{\text{aer},i,t-\Delta t}$  die Konzentration von Lösungstropfen im Bin  $i$  zum vorherigen Modellzeitpunkt  $t - \Delta t$ . Im Fall von binären  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen mit oder ohne Immersion von festen Teilchen werden beim Gefrierprozeß sämtliche Moleküle der Komponenten im Tropfen in die Eispartikel eingebunden, d.h. für die Änderung der Anzahlkonzentration der Moleküle von  $q$  in flüssiger und fester Phase im Bin  $i$  gilt:

$$\frac{dc_{q,i,\text{aer}}}{dt} = -\omega c_{q,i,\text{aer}} \quad , \quad \frac{dc_{q,i,\text{ice}}}{dt} = \omega c_{q,i,\text{ice}} . \quad (3.15)$$

Umgekehrt wird bei der Verflüssigung von Eispartikeln die Anzahlkonzentration der Moleküle von  $q$  in fester Phase innerhalb eines Zeitschrittes in die flüssige Phase rückgeführt. Dieser Schmelzvorgang erfolgt im Modell zu jenem Zeitpunkt, bei dem verdampfende Eispartikel durch Abgabe von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen eine  $\text{H}_2\text{O}$ -Massenkonzentration erreichen, die dem lokalen thermodynamischen Gleichgewichtswert entspricht.

Zufolge von Gleichung (3.13) ist partielles Gefrieren der Tropfen in den einzelnen Größenbins prinzipiell möglich. Hier spielt aber das verwendete Größengitter eine Rolle (siehe Abschnitt 3.1.2). Würde beim hybriden Größengitter dieses partielle Gefrieren zugelassen werden, dann würde dies zu einer Mittelung des nichtflüchtigen Schwefelsäurevolumens in den Bins über eine unterschiedliche Zahl von Partikeln führen, wodurch die Information über das ursprüngliche Schwefelsäurevolumen in den einzelnen Bins verloren gehen würde. Der Vorteil des hybriden Gitters (siehe Abschnitt 3.1.2) wäre dann im Falle eines solchen Phasenübergangs nicht mehr gegeben. Aus diesem Grund wird beim hybriden Gitter partielles Gefrieren nicht zugelassen, sondern alle Lösungstropfen in einem Bin innerhalb eines Zeitschrittes  $\Delta t$  in Eispartikel übergeführt, wenn  $\omega\Delta t = 1$  ist (siehe Gleichung (2.31)). Mit dieser Vorgangsweise wird dann nach dem Verdampfen der Eispartikel die ursprüngliche Aerosolgrößenverteilung wieder reproduziert. Der Nachteil dieser Methode ist allerdings, daß es zu deutlichen Unterschieden bei der simulierten totalen Eispartikelkonzentration im Vergleich zu Simulationen mit dem Moving-Center-Gitter mit partiellem Gefrieren kommen kann (vergleiche die gestrichelten Linien in Abb. 3.1). Daher ist das Moving-Center-Gitter dem hybriden Gitter vorzuziehen, wenn das Hauptaugenmerk einer Simulation auf dem Gefrierprozeß liegt.

**Sedimentation** In Kapitel 2 wurde bereits darauf hingewiesen, daß die größenabhängige Anzahlkonzentration von Eispartikeln in Zirruswolken stark durch Sedimentation beeinflusst werden kann. Für den Verlust von Eispartikeln je Zeiteinheit aus einer Box mit der Höhe  $\Delta z$  kann angesetzt werden:

$$\frac{dn_{\text{ice},i}}{dt} = -\frac{v_s(r_i)}{\Delta z} n_{\text{ice},i} = -\frac{n_{\text{ice},i}}{\tau}. \quad (3.16)$$

Dabei ist  $\tau = \Delta z/v_s$  die Zeit, die Eispartikel mit der Größe  $r_i$  brauchen, um über die vertikale Strecke  $\Delta z$  zu fallen. Die Berechnung der größenabhängigen Fallgeschwindigkeit  $v_s$  erfolgt mit Gleichung (2.15) oder Gleichung (2.17). Das Kriterium dabei ist die Reynoldszahl (siehe Abschnitt 2.1).

Integriert man (3.16) über einen Modellzeitschritt  $\Delta t$ , erhält man für die exponentielle Abnahme der Eispartikelkonzentration in einem Bin  $i$  zufolge von Sedimentation im APSC-Modell:

$$n_{\text{ice},i,t} = n_{\text{ice},i,t-\Delta t} \exp\left(-\frac{\Delta t}{\tau}\right). \quad (3.17)$$

Dabei ist  $n_{\text{ice},i,t}$  die Eispartikelkonzentration im Bin  $i$  zum Zeitpunkt  $t$ ,  $n_{\text{ice},i,t-\Delta t}$  ist die Konzentration zum Zeitpunkt  $t - \Delta t$ .

**Wachstum** Während des Flüssigwasserwachstums ist die zeitliche Änderung der Anzahlkonzentration von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen in flüssiger Phase  $c_{w,i,\text{aer}}$  im Bin  $i$  durch

$$\frac{dc_{w,i,\text{aer}}}{dt} = 4\pi r_i D \beta_i n_{\text{aer},i} (c_{w,g} - K_i n_{\text{satw}}) \quad (3.18)$$

gegeben. Dabei ist  $c_{w,g}$  die Gasphasenkonzentration von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen und  $n_{\text{satw}}$  ist die Gleichgewichtskonzentration (Sättigungsdampfdruck) von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen über einer planen Tropfenoberfläche. Der Faktor  $K_i$  ist die größenabhängige Kelvinkorrektur für gekrümmte Oberflächen (siehe Gleichung (2.6)). Zur Berechnung von  $n_{\text{satw}}$  verwendet das Modell die Parametrisierung von Luo et al. (1995). Gleichung (3.18) folgt mit Hilfe der Zustandsgleichung für ideale Gase aus (2.2), multipliziert mit der Anzahl von Lösungstropfen  $n_{\text{aer},i}$  im Bin  $i$ .

Aus Gleichung (2.9) erhält man analog für die Änderung der  $\text{H}_2\text{O}$ -Anzahlkonzentration in den Eispartikel bei  $\text{H}_2\text{O}$ -Deposition:

$$\frac{dc_{w,i,\text{ice}}}{dt} = 4\pi D \beta_i \kappa_i \phi_i n_{\text{ice},i} (c_{w,g} - K_i n_{\text{sati}}) . \quad (3.19)$$

In (3.19) ist  $n_{\text{sati}}$  die Sättigungskonzentration von Wasser über einer planen Eisoberfläche. Für  $n_{\text{sati}}$  gilt die Parametrisierung von Marti und Mauersberger (1993).

Der Faktor  $\beta_i$  (siehe Gleichung (2.3)) enthält den Massenakkommodationskoeffizienten  $\alpha$ . Im Fall von Kondensation von Wasser ( Gleichung (3.18)) gilt im Modell ein Wert von  $\alpha = 1$ . Bei Deposition auf Eisoberflächen (Gleichung (3.19)) wird  $\alpha = 0.5$  gesetzt (Haynes et al., 1992). Die Wahl dieses Wertes für  $\alpha$  ist auch durch die eigenen Simulationen motiviert (siehe Abschnitt 4.2.4).

Im APSC-Modell werden Eiskristalle mit einem Radius  $< 7.5 \mu\text{m}$  als sphärisch angenommen. Diese Annahme wird durch Messungen in Kondensstreifen und Zirren in der oberen Troposphäre unterstützt (Schröder et al., 2000). Ab einer Kristallgröße  $r > 12.5 \mu\text{m}$  werden hexagonale Eissäulen angenommen mit einem Aspektverhältnis  $A = 3$  (siehe Abschnitt 2.1). Für den Kapazitätsfaktor  $\kappa_i$  in (3.19) gilt dann die Gleichung (2.10). Um einen glatten Übergang zwischen der sphärischen und nicht-sphärischen Kristallform zu gewährleisten wird  $\kappa_i$  bei Radien zwischen  $7.5 \mu\text{m}$  und  $12.5 \mu\text{m}$  linear interpoliert. Der Ventilationsfaktor  $\phi_i$  in (3.19) für hexagonale Eissäulen mit  $A = 3$  wird mit Hilfe der Gleichungen (2.11), (2.13) und (2.14) berechnet.

### 3.3 Numerische Lösungsschemata

Zur numerischen Lösung der Wachstumsgleichungen (3.18) und (3.19) werden im APSC-Modell Schemata verwendet, die nicht-iterativ sind, bedingungslos stabil und voll massenerhaltend. Bei Deposition von Wasser auf Eispartikel wird das Schema *APC* verwendet (“analytical predictor of condensation”, Jacobson (1999)), bei Wachstum der Lösungstropfen das Schema *APD* (“analytical predictor of dissolution”, Jacobson (1999)).

Führt man einen Massentransfer-Koeffizienten

$$k_{i,\text{aer},t-\Delta t} = 4 \pi r_{i,t-\Delta t} D_{t-\Delta t} \beta_{i,t-\Delta t} n_{\text{aer},i,t-\Delta t} , \quad (3.20)$$

und den dimensionslosen Henrykoeffizienten

$$H_{i,t-\Delta t} = \frac{c_{w,i,\text{aer},t-\Delta t}}{K_{i,t-\Delta t} n_{\text{satw},t-\Delta t}} \quad (3.21)$$

ein, dann schreibt sich die Gleichung (3.18) zum Modellzeitpunkt  $t$ :

$$\frac{dc_{w,i,\text{aer},t}}{dt} = k_{i,\text{aer},t-\Delta t} \left( c_{w,g,t} - \frac{c_{w,i,\text{aer},t}}{H_{i,t-\Delta t}} \right) . \quad (3.22)$$

Das Subskript  $t - \Delta t$  bezeichnet den vorherigen Modellzeitpunkt, das Subskript  $i$  wieder den Größenbin. Integriert man (3.22) über einen Modellzeitschritt  $\Delta t$ , erhält man für die Anzahlkonzentration der  $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle in den Lösungstropfen zum Zeitpunkt  $t$ :

$$c_{w,i,\text{aer},t} = H_{i,t-\Delta t} c_{w,g,t} + (c_{w,i,\text{aer},t-\Delta t} - H_{i,t-\Delta t} c_{w,g,t}) \exp\left(-\frac{\Delta t k_{i,\text{aer},t-\Delta t}}{H_{i,t-\Delta t}}\right) . \quad (3.23)$$

In Gleichung (3.23) ist die  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphasenkonzentration  $c_{w,g,t}$  momentan unbekannt.

Analog erhält man mit

$$k_{i,\text{ice},t-\Delta t} = 4 \pi r_{i,t-\Delta t} D_{t-\Delta t} \beta_{i,t-\Delta t} \kappa_{i,t-\Delta t} \phi_{i,t-\Delta t} n_{\text{ice},i,t-\Delta t} , \quad (3.24)$$

für Gleichung (3.19) zum Modellzeitpunkt  $t$ :

$$\frac{dc_{w,i,\text{ice},t}}{dt} = k_{i,\text{ice},t-\Delta t} (c_{w,g,t} - K_{i,t-\Delta t} n_{\text{sati},t-\Delta t}) . \quad (3.25)$$

Integration über  $\Delta t$  liefert die nicht-iterative Lösung für die Anzahlkonzentration von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen in Eispartikeln zum Zeitpunkt  $t$ :

$$c_{w,i,\text{ice},t} = c_{w,i,\text{ice},t-\Delta t} + \Delta t k_{i,\text{ice},t-\Delta t} (c_{w,g,t} - K_{i,t-\Delta t} n_{\text{sati},t-\Delta t}) . \quad (3.26)$$

In Gleichung (3.26) ist die  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphasenkonzentration  $c_{w,g,t}$  wieder die momentan Unbekannte.

Bei Integration über einen Modellzeitschritt bleibt die totale Anzahl von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen  $c_{w,\text{tot}}$  erhalten (Massenerhaltung):

$$\begin{aligned} c_{w,g,t} + \sum_{i=1}^{N_B} c_{w,i,\text{aer},t} + \sum_{i=1}^{N_B} c_{w,i,\text{ice},t} &= \\ c_{w,g,t-\Delta t} + \sum_{i=1}^{N_B} c_{w,i,\text{aer},t-\Delta t} + \sum_{i=1}^{N_B} c_{w,i,\text{ice},t-\Delta t} &= c_{w,\text{tot}} . \end{aligned} \quad (3.27)$$

Setzt man (3.23) und (3.26) in (3.27) ein und löst die Gleichung nach der gesuchten  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphasenkonzentration erhält man

$$c_{w,g,t} = \frac{c_{w,g,t-\Delta t} + X_{\text{aer}} + X_{\text{ice}}}{1 + Y_{\text{aer}} + Y_{\text{ice}}} , \quad (3.28)$$

mit

$$\begin{aligned}
X_{\text{aer}} &= \sum_{i=1}^{N_B} \left\{ c_{w,i,\text{aer},t-\Delta t} \left[ 1 - \exp \left( -\frac{\Delta t k_{i,\text{aer},t-\Delta t}}{H_{i,t-\Delta t}} \right) \right] \right\} , \\
X_{\text{ice}} &= \Delta t \sum_{i=1}^{N_B} (k_{i,\text{ice},t-\Delta t} K_{i,t-\Delta t} n_{\text{sati},t-\Delta t}) , \\
Y_{\text{aer}} &= \sum_{i=1}^{N_B} \left\{ H_{i,t-\Delta t} \left[ 1 - \exp \left( -\frac{\Delta t k_{i,\text{aer},t-\Delta t}}{H_{i,t-\Delta t}} \right) \right] \right\} , \\
Y_{\text{ice}} &= \Delta t \sum_{i=1}^{N_B} k_{i,\text{ice},t-\Delta t} .
\end{aligned}$$

Gleichung (3.28) gilt für Koexistenz von Aerosolen und Eisparkeln. Existieren keine Eisparkel, verschwinden die Terme  $X_{\text{ice}}$  und  $Y_{\text{ice}}$ . Die mit (3.28) ermittelte Gasphasenkonzentration  $c_{w,g,t}$  kann nun in die Gleichungen (3.23) und (3.26) eingesetzt werden und die partikulären Konzentrationen berechnet werden. Damit das numerische Verfahren unabhängig vom gewählten Zeitschritt stabil verbleibt, werden die ermittelten Konzentrationen numerisch zwischen 0 und  $c_{w,\text{tot}}$  eingegrenzt, d.h. es gelten die Bedingungen

$$\begin{aligned}
c_{w,g,t} &= \min(c_{w,g,t} , c_{w,\text{tot}}) , \\
c_{w,i,\text{aer},t} &= \max(c_{w,i,\text{aer},t} , 0) , \\
c_{w,i,\text{ice},t} &= \max(c_{w,i,\text{ice},t} , 0) .
\end{aligned} \tag{3.29}$$

Um Massenerhaltung sicherzustellen gilt dann letztendlich für die  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphase zum neuen Zeitpunkt  $t$ :

$$c_{w,g,t} = c_{w,\text{tot}} - \sum_{i=1}^{N_B} c_{w,i,\text{aer},t} - \sum_{i=1}^{N_B} c_{w,i,\text{ice},t} . \tag{3.30}$$

# Kapitel 4

## Interpretation der AIDA-Gefrierexperimente

### 4.1 Die Aerosolkammer AIDA

Die AIDA-Aerosolkammer des Forschungszentrums Karlsruhe (Möhler et al., 2003) zeichnet sich dadurch aus, daß in ihr unter realistischen dynamischen Bedingungen sehr langlebige (Zeitskala: Stunden bis wenige Tage) polydisperse Aerosolsysteme erzeugt werden können. Weiter erlaubt ihre Thermostatierbarkeit in einem weiten Temperaturbereich (bis  $-90^{\circ}\text{C}$ ) experimentelle Untersuchungen in für die obere Troposphäre und untere Stratosphäre typischen Druck-, Temperatur- und Feuchtebedingungen. Diese Eigenschaft macht sie zu einem idealen Werkzeug zur Untersuchung von Gefrierprozessen in Zirren und polaren Stratosphärenwolken.

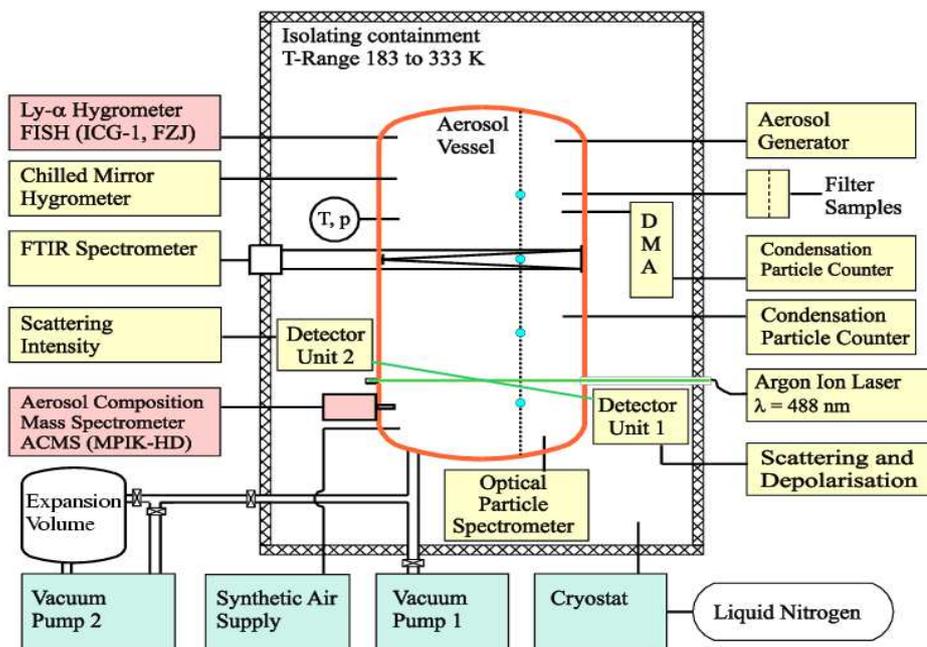
Trotz bestimmter kammerspezifischer Einflüsse, welche bei den Modellsimulationen berücksichtigt werden müssen (siehe Abschnitt 4.1.2), haben bei Modellsimulationen von Gefrierprozessen die AIDA-Messungen gegenüber Flugzeugmessungen in der Atmosphäre den Vorteil, daß wichtige Größen wie z.B. das Wassermischungsverhältnis und die Temperatur mit hoher Präzision dort gemessen werden, wo der Phasenübergang tatsächlich stattfindet. Lagrange'sche Messungen mit Flugzeugen in der Atmosphäre zur Beschreibung von Wolkenbildung sind jedoch äußerst schwierig, außer vielleicht bei Bewölkung in stationären Wellen. In vielen Fällen sind deshalb die resultierenden Unsicherheiten bei wichtigen simulierten Größen wie etwa der relativen Feuchte zu groß, um definitive Aussagen über die zugrundeliegenden Gefrierprozesse machen zu können.

#### 4.1.1 Anlagentechnik, Aerosolerzeugung und Meßgeräte

**Anlagentechnik** Abbildung 4.1 gibt einen Überblick über die AIDA-Kammer und ihre Instrumentierung. Neben den technischen Geräten zur Kammerkühlung und Aerosolerzeugung befinden sich auf drei vertikalen Ebenen um die Kammer herum eine Vielzahl

von Meßgeräten zur Analytik von Spurengasen und zur physikalischen und chemischen Charakterisierung des Aerosols.

Der Aerosolbehälter (Volumen  $84 \text{ m}^3$ ) befindet sich in einer umhüllenden Klimakammer, in der Temperaturen von  $+60$  bis  $-90^\circ\text{C}$  ( $333$  bis  $183 \text{ K}$ ) eingestellt werden können. Innerhalb dieser Klimakammer wird die gekühlte Luft mit Hilfe von zwei Wärmetauschern um den Aerosolbehälter zirkuliert, um in Phasen ohne Kühlung eine räumliche und zeitliche Stabilität der Temperatur von  $\pm 0.3 \text{ K}$  zu erreichen. Bis  $-40^\circ\text{C}$  erfolgt die Kühlung der Klimakammer durch eine konventionelle Kältemaschine. Unterhalb  $-40^\circ\text{C}$  kommt flüssiger Stickstoff zum Einsatz, der in den Wärmetauschern verdampft wird. Der Aerosolbehälter ist aus Aluminium gefertigt und hat einen Durchmesser von  $4 \text{ m}$  und eine Höhe von  $7 \text{ m}$ . Mit Hilfe von Vakuumpumpen unterhalb der Kammer kann die Luft unterschiedlich schnell aus dem Behälter auf einen Druck von minimal  $0.01 \text{ hPa}$  abgepumpt werden.



**Abb. 4.1:** Experimenteller Aufbau der AIDA-Kammer. Die vier Kreise auf der gestrichelten Linie innerhalb des Aerosolbehälters markieren die Positionen der Temperaturmessungen, mit deren Hilfe die mittlere Gastemperatur bestimmt wird.

**Aerosolherzeugung** Binäre Lösungströpfchen werden bei den AIDA-Experimenten auf externem Wege erzeugt (Möhler et al., 2003). Mit einer Zweistoffdüse wird eine 20 massenprozentige  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösung in einem Strom von synthetischer Luft zerstäubt. Anschließend durchlaufen die so erzeugten Partikel ein Glasrohr, welches zu etwa einem Drittel mit 96 massenprozentiger Schwefelsäure gefüllt ist. Der deutlich niedrigere Sättigungsdampf-

druck von Wasser über der konzentrierten Schwefelsäurelösung gegenüber dem Sättigungsdampfdruck über den binären Lösungstropfen bewirkt eine Diffusion von Wasser aus den Partikeln in die konzentrierte Schwefelsäure und dadurch eine Trocknung der Partikel. Die Länge des Glasrohres ist dabei so dimensioniert, daß die Partikel bei Verlassen des Rohres beinahe die selbe Schwefelsäurekonzentration aufweisen wie die hochkonzentrierte Lösung im Rohr. Anschließend wird das getrocknete Aerosol direkt in die Kammer eingeleitet. Diese Trocknung des Aerosols wird durchgeführt, um die etablierte Kammerfeuchte möglichst wenig zu stören.

**Meßgeräte** Bei den verschiedenen AIDA-Meßkampagnen kommt eine Vielzahl von Geräten zur Bestimmung der Partikeleigenschaften und zur Spurengasanalytik zum Einsatz. Nachfolgend wird kurz auf jene Meßtechniken eingegangen, die für die durchgeführten numerischen Simulationen in diesem Kapitel von Bedeutung sind. Eine ausführliche Beschreibung der AIDA-Instrumentierung findet sich z.B. bei Möhler et al. (2003).

Um eine höhere zeitliche Auflösung der Feuchtemessungen von 1 s zu erhalten, stand bei den Experimenten neben einem Frostpunkthygrometer auch ein Lyman- $\alpha$ -Hygrometer (FISH) zur Verfügung. Dieses Gerät des Forschungszentrums Jülich (Zöger et al., 1999) mißt den Gesamtwassergehalt in der Kammer, also die Summe aus partikulärem Wasser und Gasphasenwasser, wobei die Meßgenauigkeit bei ca.  $\pm 6\%$  liegt.

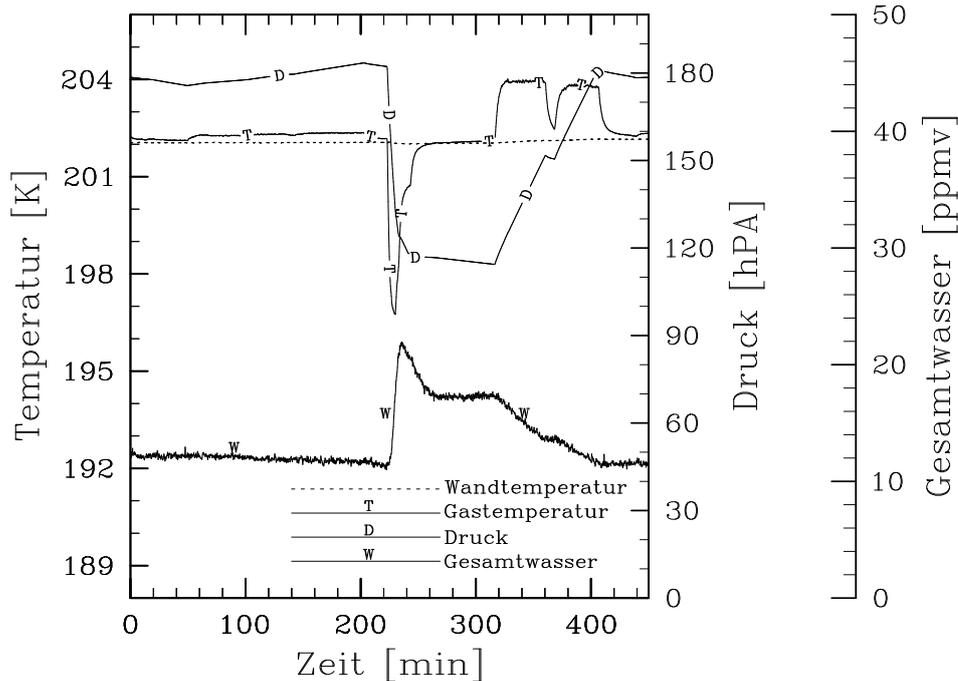
Die Anzahlkonzentrationen und Größenverteilungen der flüssigen Aerosolpartikel werden mit Kondensationskernzählern (CNC) und einem differentiellen Mobilitätsanalysator (DMA) gemessen. Feste Phasen werden an der AIDA mit einem optischen Partikelspektrometer (PCS) detektiert, indem unterhalb des Aerosolbehälters eine Gasprobe kontinuierlich durch eine vertikale Probenahmeleitung geleitet wird. An dieser Probenahmeleitung kann das Spektrometer Eispartikel anhand ihrer Lichtstreuung nachweisen, wenn sie größer als ca.  $1.5\ \mu\text{m}$  im Durchmesser sind. Die Genauigkeit der ermittelten Anzahlkonzentrationen der Eispartikel liegt derzeit noch bei  $\pm 50\%$  (Pers. Mitteilung O. Möhler und S. Schaefers, FZK, 2001).

Der Einsatzzeitpunkt der Eisbildung wird durch Messungen der Intensität und Depolarisation von aus der Kammermitte rückwärtsgestreutem Argon-Laserlicht bestimmt. Dabei zeigt ein sprunghafter Anstieg der Depolarisation eindeutig den Einsatz der Eisbildung (siehe Möhler et al. (2003) und Abb. 4.8).

#### 4.1.2 Experimentelle Methode und kammerspezifische Einflüsse

**Experimentelle Methode** Abbildung 4.2 zeigt den Verlauf eines typischen AIDA-Gefrierexperimentes. Bei allen Experimenten wird zunächst solange synthetische Luft in die Kammer geleitet, bis der gewünschte Anfangsdruck erreicht ist. Anschließend werden die getrockneten Schwefelsäurepartikel eingeleitet (Ende der Aerosolerzeugung = Nullpunkt der Zeitskala in Abb 4.2), welche mit dem verfügbaren Wasserdampf ins Gleichgewicht gelangen und  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen bilden. In der Folge wird über mehrere Stunden der Druck und die Temperatur möglichst konstant gehalten. Während dieser Zeitspanne ändert sich die Größenverteilung des Aerosols nur geringfügig aufgrund von

Abscheideprozessen in der Kammer. Die Kammerfeuchte wird durch eine dünne Eisschicht an den Kammerwänden kontrolliert. Durch diese Eisbedeckung herrscht an den Kammerwänden stets Sättigung in Bezug auf Eis bezogen auf die mittlere Wandtemperatur. Der anfängliche Gleichgewichtszustand zwischen Kammerwand und Gas erzeugt dann eine Ausgangsfeuchte nahe Eissättigung in der Kammer.



**Abb. 4.2:** Verlauf von Druck, Gas- und Wandtemperatur und Gesamtwasser innerhalb der AIDA-Kammer während eines typischen Gefrierexperimentes. Die Zeitskala beginnt mit Ende der Erzeugung der binären  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungen. In dem Zeitraum zwischen 220 und 240 min führt der schnelle Druckabfall zu einer raschen Temperaturabnahme, zu hoher Eisübersättigung des Gases und Initiierung von homogenem Gefrieren der unterkühlten Lösungstropfen.

Lokale Heizquellen (beheizte Probenahmeleitungen) führen sowohl im Gasvolumen als auch an den Kammerwänden zu Temperaturinhomogenitäten. Ein Mischventilator am Kammerboden sorgt aber dafür, daß das Gas thermisch gut durchmischt ist und ein möglichst homogener Temperaturzustand eingestellt wird. Bei konstanten Druckbedingungen reduziert dies die Temperaturinhomogenitäten im Gasvolumen auf weniger als  $\pm 0.1$  K, während der Pumpphasen auf weniger als  $\pm 0.3$  K. Sowohl die mittlere Wandtemperatur als auch die mittlere Gastemperatur (siehe Abb. 4.2) werden mit Hilfe von vier unabhängigen Temperaturmessungen in unterschiedlichen Kammerhöhen bestimmt (siehe Abb. 4.1). Da die Thermoelemente der Temperatursensoren eine druckabhängige Ansprechzeit von 3–10 s haben, könnten trotz der Durchmischung kurzfristig auch größere Temperaturabweichungen von der mittleren Gastemperatur als  $\pm 0.3$  K vorkommen (isolierte Wirbel). Im Gegensatz zum gut durchmischten Gas können die oben genannten Temperaturinhomogenitäten an den Messpunkten der Wandtemperatur nur unzureichend

erfaßt werden. Aus diesem Grund liegt anfänglich bei allen Experimenten die Gastemperatur knapp über der Wandtemperatur (siehe Abb. 4.2).

Das eigentliche Eiskondensations-Experiment wird eingeleitet, indem durch Abpumpen der Kammerluft der Druck schnell erniedrigt wird. Durch Expansion des Gasvolumens wird dabei eine schnelle Abnahme der Gastemperatur um mehrere K erreicht (siehe Abb. 4.2 ab 220 min). Obwohl durch die Druckabsenkung der Partialdruck des Wasserdampfes erniedrigt wird, bewirkt die schnellere Abnahme des Sättigungsdampfdruckes infolge der Kühlung eine Eisübersättigung des Gases. Je nach Experiment können mit dieser Methode des Volumenköhlens Eisfeuchten bis nahe 200 % erzeugt werden. Derart hohe Eisübersättigungen ermöglichen die Initiierung von homogenen Gefrierprozessen (vergleiche Abb. 2.2). Aufgrund der hohen Wärmekapazität der 2 cm dicken Aluminium-Kammerwand bleibt jedoch die Wandtemperatur während dieser schnellen Kühlung des Gases konstant, weshalb mit Beginn der Kammerkühlung ein mit Fortdauer der Kühlung zunehmender Wärmestrom von den Wänden in das Gas einsetzt. Wird das Pumpen eingestellt, gleicht sich dann durch diese Wärmenachlieferung von den Wänden die Gastemperatur sehr schnell wieder an die Wandtemperatur an. Nach Beendigung der Kühlphase wird die Kammer mit synthetischer Luft wiederbefüllt (siehe Abb. 4.2 bei 320 min). Analog zur Abkühlung durch Abpumpen erfolgt dadurch eine vorübergehende Erwärmung des Gases, ehe sich die Gastemperatur wieder an die Wandtemperatur angleicht.

Ähnlich wie beim adiabatischen Aufsteigen und Absinken von Luftpaketen in der Atmosphäre, beispielsweise in orographisch induzierten Leewellen, verlaufen diese schnellen Druck- und Temperaturänderungen an der AIDA quasi-adiabatisch. Quasi-adiabatisch deshalb, weil der Wärmestrom von den Kammerwänden die Kühlung des Gases während der Pumpphasen gegenüber einer rein adiabatischen Temperaturänderung etwas abschwächt. Die maximal erzielbaren Kühlraten sind dabei durch die Pumpleistung begrenzt. Derzeit sind maximale Kühlraten von bis zu 2–3 K min<sup>-1</sup> möglich.

**Kammerspezifische Einflüsse** Wie oben erwähnt, ist bei den Gefrierexperimenten an der AIDA die Feuchte durch die Eisbedeckung an den Wänden kontrolliert. An den Wänden herrscht stets Eissättigung bei konstant bleibender Wandtemperatur. Eine Absenkung der Temperatur unter die Wandtemperatur in der Kammerkühlphase bedeutet daher eine Untersättigung des Gases relativ zur Feuchte an den Wänden. In der Kühlphase diffundieren dann H<sub>2</sub>O-Moleküle von den Wänden in das Gasvolumen. Das Ausmaß dieser Wassernachlieferung von den Wänden ist eine wichtige Fragestellung für Modellsimulationen von AIDA-Experimenten. Die zeitliche Auflösung des Frostpunkthygrometers reicht nicht aus, um die Veränderung der Wasserdampfkonzentration beim schnellen Köhlen zu bestimmen. Da außerdem das FISH-Hygrometer das Gesamtwasser-Mischungsverhältnis mißt, waren zum Zeitpunkt der Durchführung der hier analysierten Gefrierexperimente keine zuverlässigen Aussagen über die zeitliche Änderung des Wasserdampfpartialdruckes während der Kühlungsphase möglich.

Abbildung 4.2 zeigt den Verlauf der FISH-Messung während eines Gefrierexperimentes. Für die Modellsimulationen in diesem Kapitel dienen diese Gesamtwassermessungen mit dem FISH-Gerät als Modell-Input. Wenn die Kammer rasch gekühlt wird, weist das

zuvor nahezu konstante  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis zunächst einen starken Anstieg auf. Dieser Anstieg resultiert aus dem oben erwähnten Fluß von Wasserdampf von den eisbedeckten Kammerwänden in das kühlere Gasvolumen, wobei dieser  $\text{H}_2\text{O}$ -Fluß auf der selben Zeitskala abläuft wie der im vorigen Abschnitt erwähnte Wärmestrom von den Wänden.

In der Erwärmungsphase der Kammer nimmt der FISH-Wert wieder ab, bis zu einem konstant bleibenden Wert bei Erreichen der Ausgangstemperatur. Für diese Abnahme können mehrere Prozesse verantwortlich sein: Sedimentation von großen Eiskristallen, Abscheidung sowohl von festen als auch von flüssigen Partikeln an der Kammerwänden und am Mischventilator oder auch ein unvollständiges Sammeln der Eispartikel durch das FISH-Instrument. Bis zu Partikelgrößen von  $7 \mu\text{m}$  liegt die Sammeleffizienz bei 100 %. Bei größeren Eispartikeln können jedoch Verluste auftreten, weil sie an der horizontalen Probenahmeleitung quasi vorbeifallen oder hängenbleiben. Eine Quantifizierung dieser Prozesse ist derzeit nicht möglich, bei der Modellierung wird diese Abnahme des Gesamtwassers aber berücksichtigt (siehe Abschnitt 4.2.1).

## 4.2 Homogenes Gefrieren von wäßrigen Schwefelsäurelösungen

### 4.2.1 Modellierung

Bei den Simulationen der AIDA-Gefrierexperimente wurde das Boxmodell APSC angewandt. Eine allgemeine Beschreibung dieses Modells wurde in Kapitel 3 präsentiert. Nachfolgend wird beschrieben, welche speziellen Modellanpassungen für die AIDA-Simulationen durchgeführt wurden.

Die Modellsimulationen basieren auf der gemessenen Anfangsgrößenverteilung des Aerosols und auf den Meßwerten von Temperatur, Druck und Gesamtwasser. Die Aerosol- und Eispartikelgrößenverteilungen wurden über 80 Größenbins mit einem konstanten Volumenverhältnis  $V_{\text{rat}} = 1.6$  diskretisiert, beginnend mit einem minimalen Partikelradius von 1 nm. Um eine möglichst exakte Berechnung der Eispartikelkonzentration zu gewährleisten, wurde als Größengitter das nicht-diffusive Moving-Center-Gitter verwendet. Für den konstanten Zeitschritt  $\Delta t$  wurde ein Wert von 0.1 s gewählt, welcher hinreichend klein ist um möglichst exakte numerische Lösungen zu erzielen.

Bezüglich der physikalisch relevanten Prozesse wurde Nichtgleichgewichts-Wachstum und Verdunstung der flüssigen Aerosole und der Eispartikel berechnet (numerische Lösungsschemata *APD* und *ACP*). Bei der Form der Eiskristalle wurde eine rein sphärische Form angenommen, d.h. in Gleichung (3.19) wurde  $\kappa = 1$  gesetzt. FTIR-Messungen haben bestätigt, daß die Eiskristalle in der AIDA-Kammer nahezu sphärische Form haben (Pers. Mitteilung O. Möhler, FZK, 2001). Bei den Simulationen wird weiter ein konstanter Verlust von flüssigen  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Partikeln berücksichtigt, welcher quantitativ der beobachteten Abnahme der totalen Aerosolanzahlkonzentration bei konstanten Druckbedingungen in der AIDA-Kammer entspricht. Dieser Verlust ist hauptsächlich eine Folge

der Abscheidung von Aerosolen an den Kammerwänden (Möhler et al., 2003). Koagulation spielt nur eine untergeordnete Rolle und wird daher auch bei den Simulationen nicht berücksichtigt. Bezüglich der homogenen Nukleationsraten wurde die Parametrisierung von Koop et al. (2000) verwendet (siehe Kapitel 2).

Bei den untersuchten Gefrierexperimenten ist eine möglichst genaue Simulation der relativen Feuchte von großer Wichtigkeit. Unabhängige Messungen der H<sub>2</sub>O-Gasphasenkonzentration sind jedoch nicht verfügbar, sondern nur die Gesamtwassermessungen. Mit Hilfe von Abb. 4.2 wurde gezeigt, daß das totale H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnis aufgrund von Wechselwirkungen zwischen Gas und Kammerwänden variiert. Dieser Wandeffekt muß bei der Modellierung berücksichtigt werden. In den Simulationen wird das gemessene Gesamtwasser vorgeschrieben, aber die zeitabhängige Partitionierung zwischen H<sub>2</sub>O-Gasphase, flüssiger Aerosolphase und fester Eisphase explizit berechnet. In jedem Zeitschritt wird das Mischungsverhältnis der H<sub>2</sub>O-Gasphase entsprechend der Zunahme der FISH-Messung während der Kühlphase erhöht,

$$\text{H}_2\text{O}(\text{Gesamt})_{\text{FISH}} \uparrow \longrightarrow \text{H}_2\text{O}(\text{Gasphase})_{\text{APSC}} \uparrow .$$

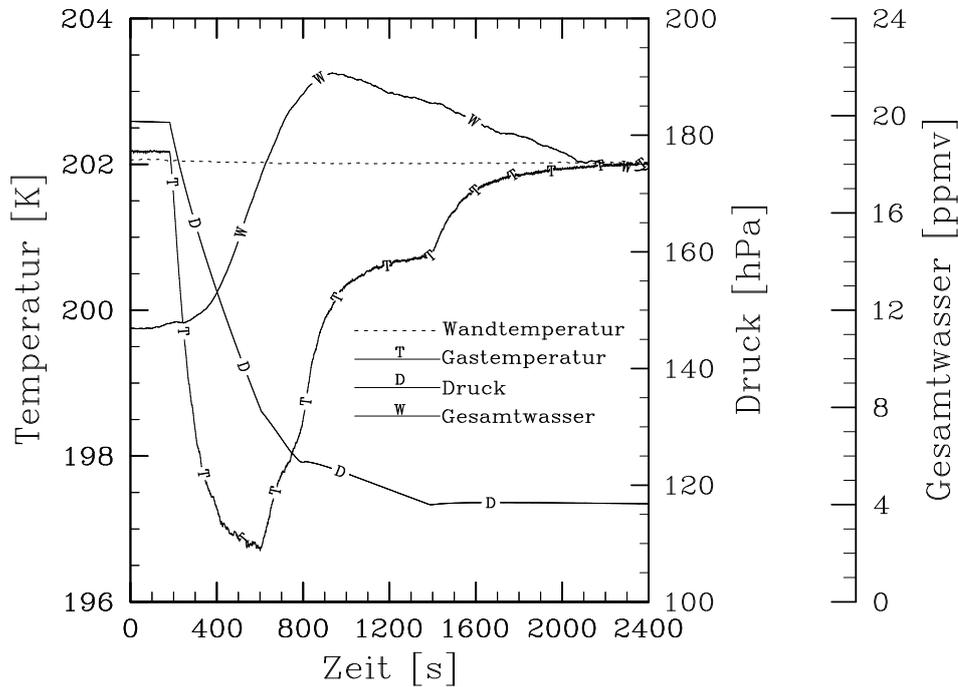
Weiter wird entsprechend der Abnahme der FISH-Messung nach dem Gefrierprozeß Eiswasser im Modell entfernt,

$$\text{H}_2\text{O}(\text{Gesamt})_{\text{FISH}} \downarrow \longrightarrow \text{H}_2\text{O}(\text{Eisphase})_{\text{APSC}} \downarrow .$$

Mit Hilfe dieses Ansatzes werden H<sub>2</sub>O-Wandflüsse (Gesamtwasser nimmt zu) und Verluste von Eiswasser (Gesamtwasser nimmt ab) implizit berücksichtigt und Unsicherheiten bei der simulierten relativen Feuchte werden dadurch reduziert. In Abschnitt 4.1.2 wurden die Gründe für die Eiswasserverluste nach der Kühlphase bereits angesprochen: Sedimentation, Abscheidung an den Kammerwänden und am Mischventilator und unvollständiges Sammeln der Partikel durch das FISH-Instrument. In den Modellsimulationen wird dann in jedem Zeitschritt solange Eiswasser entfernt, bis der modellierte Eiswassergehalt dem gemessenen FISH-Wert entspricht. Dabei erfolgt dieses Entfernen zuerst in den größten Bins der Eispartikelgrößenverteilung entsprechend der Größenabhängigkeit der Sedimentations- und Abscheideprozesse. Diese einfache Modellannahme erlaubt natürlich nicht eine realistische Berechnung der oben genannten Verlustprozesse, jedoch sind diese Prozesse nach Beendigung der Kühlphase für die vorliegenden Gefrierstudien auch nicht von großer Bedeutung, da der Gefrierprozeß selbst während der Zunahme des Gesamtwassers initiiert wird. Inwieweit experimentelle Unsicherheiten aufgrund der Genauigkeit der FISH-Messung die Simulationsergebnisse beeinflussen können wird zusammen mit anderen Sensitivitätsstudien in Abschnitt 4.2.4 untersucht.

### 4.2.2 Fallstudie: Experiment bei 202 K

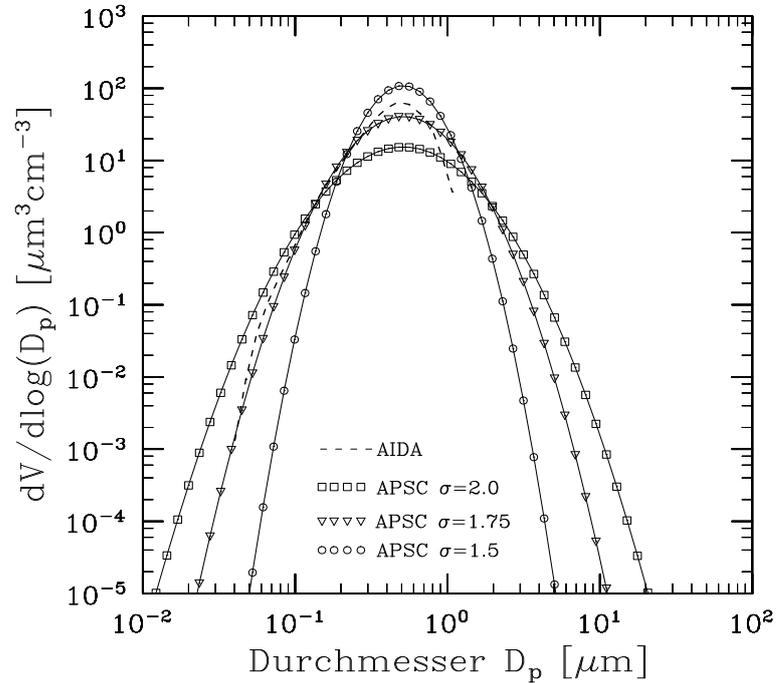
In diesem Abschnitt wird detailliert ein Gefrierexperiment mit einer Anfangstemperatur von 202 K bei einem Anfangsdruck von 180 hPa beschrieben (siehe Abb. 4.3). Die Simulationszeit beträgt 40 min, beginnend 3 min vor der Kammerkühlung.



**Abb. 4.3:** Modellierter Kühlperiode der Fallstudie mit einer Anfangstemperatur von 202 K, einem Anfangsdruck von 180 hPa und Gesamtwasser von 11 ppmv. Die Kurven sind der Abb. 4.2 in der Zeit zwischen 217 und 257 min entnommen. Auf der neuen Zeitskala startet die Pumpphase nun bei 180 s.

**Anfangsgrößenverteilung Aerosol** Die gestrichelte Kurve in Abb. 4.4 zeigt die mit Hilfe eines differentiellen Mobilitätsanalysators gemessene Volumenverteilung des Aerosols. An diese gemessene Verteilung wurde in der APSC-Simulation mit einem trockenen Massen-Medianradius  $r_m = 0.16 \mu\text{m}$  und einer geometrischen Standardabweichung  $\sigma = 1.75$  eine logarithmische Normalverteilung angepaßt und das Aerosol mit dem verfügbaren Wasserdampf in Gleichgewicht gebracht (Kurve mit Dreiecksymbolen in Abb. 4.4).

Das Gefrieren der Aerosolpartikel erfolgt am rechten Rand der Größenverteilung, da die homogene Nukleationswahrscheinlichkeit mit zunehmendem Flüssig-Aerosolvolumen zunimmt (siehe Abschnitt 2.3). Leider liefert die gemessene Größenverteilung keine Information über Partikelgrößen größer als ca.  $1 \mu\text{m}$  im Durchmesser. Um den möglichen Einfluß der Größenverteilung auf die Anzahl der nukleierten Eispartikel zu untersuchen, wurde deshalb je eine Modellsimulation mit einer schmälere Verteilung ( $\sigma=1.5$ ), und eine Simulation mit einer breiteren Verteilung ( $\sigma=2.0$ ) durchgeführt. Durch die schmale Verteilung wird das gemessene totale Partikelvolumen gut repräsentiert, während die breite Verteilung eine bessere Anpassung an die totale Anzahlkonzentration der Aerosolpartikel ist. Die Resultate dieser Sensitivitätsstudien bezüglich der Größenverteilung des Aerosols werden in Abschnitt 4.2.4 präsentiert.



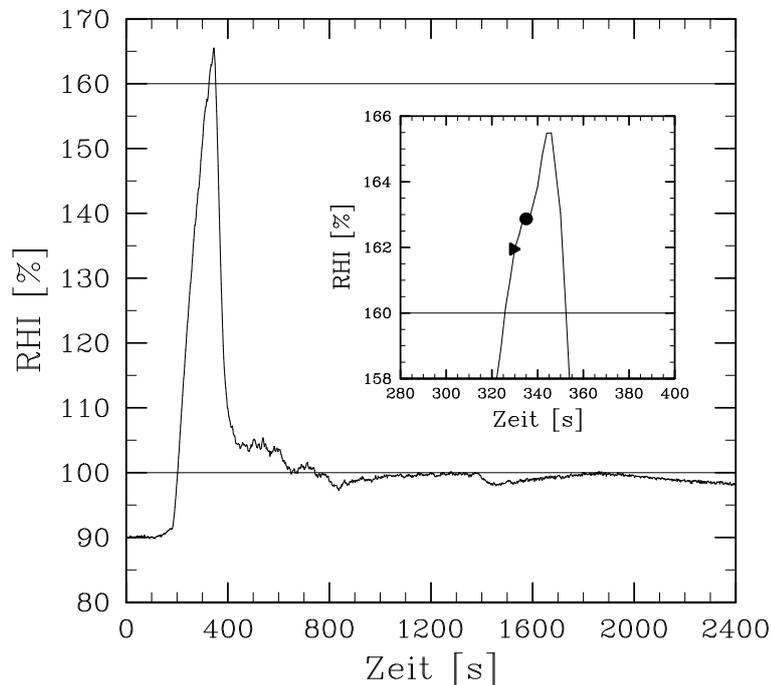
**Abb. 4.4:** Feuchte Volumenanzfangsverteilungen des Aerosols für die Fallstudie dargestellt in Abb. 4.3. Die durchgezogenen Kurven sind Modellanpassungen der gemessenen Größenverteilung (gestrichelte Kurve). Die Verteilung mit den Dreiecksymbolen wurde für die Simulationen in Abschnitt 4.2.2 verwendet.

**Relative Feuchte** Abbildung 4.5 zeigt den zeitlichen Verlauf der simulierten relativen Eisfeuchte (RHI). Wie in Abschnitt 4.1.2 bereits erwähnt wurde, ist vor der Kammerkühlphase gasförmiges Wasser im Gleichgewicht mit den eisbedeckten Kammerwänden. Dennoch startet die Simulation mit einer Eisfeuchte von nur 90 %. Grund dafür sind experimentelle Unsicherheiten bei der Temperatur- und Gesamtwassermessung und die leichte Erhöhung der Gastemperatur gegenüber der Wandtemperatur (Möhler et al., 2003).

Mit Beginn der Kühlphase kommt es zu einer sehr raschen Zunahme der Eisfeuchte. Bei den gegebenen thermodynamischen Bedingungen prognostizieren die Messungen von Koop et al. (2000) einen kritischen Wert der relativen Eisfeuchte für homogene Eiskondensation von ca. 160 %. Genauer variiert dieser Wert zwischen 161 % und 157 % für Tropfenradien zwischen  $0.1 \mu\text{m}$  und  $5 \mu\text{m}$ , bei einer Dauer des Gefrierprozesses (Dauer der Phasenumwandlung) von 1 min. Nach einer Simulationszeit von ca. 300 s wird diese kritische Gefrierfeuchte überschritten, wodurch bei einem Teil der Aerosolpartikel der Gefrierprozeß initiiert wird. In Abb. 4.5 markieren das Dreiecksymbol und der Punkt den modellierten bzw. experimentell bestimmten Einsatzzeitpunkt des Gefrierprozesses. Wie weit die relative Feuchte die kritische Gefrierfeuchte im weiteren Verlauf überschreiten kann, hängt von der totalen Anzahl der gebildeten Eispartikel ab, was wiederum von Temperatur, Kühlrate und den Gefriereigenschaften des Aerosols kontrolliert wird. Allgemein gilt: Je niedriger die Temperatur (langsames Eispartikelwachstum) und je höher

die Kühlrate, desto länger kann die aktuelle Feuchte über der Gefrierfeuchte verbleiben und desto mehr Eispartikel können sich bilden. Diese kontrollierenden Faktoren werden anhand von Abb. 4.12 noch diskutiert werden.

Nach Einsatz des Gefrierprozesses wird durch schnelles Depositionswachstum der gebildeten Eispartikel die  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphasenkonzentration verringert und dadurch ein weiterer Anstieg der relativen Feuchte trotz anhaltender Kühlung der Kammer verhindert (Temperaturabnahme bis  $t = 600$  s, siehe Abb. 4.3). Trotz der niedrigen Temperatur und der hohen Kühlrate bei diesem Experiment, beides würde eine große Differenz zwischen kritischer und maximaler relativer Feuchte favorisieren, ist die maximale Eisfeuchte von 165.6 % nur um 3.5 % größer als die kritische Gefrierfeuchte. Fällt die Feuchte nachfolgend wieder unter die kritische Übersättigung für homogenes Gefrieren, werden zwar keine neuen Eispartikel mehr gebildet, aber das starke Wachstum der existierenden Partikel wird fortgesetzt, was die schnelle Abnahme der Eisfeuchte zur Folge hat. Gleichzeitig stattfindende Umsätze von Wasser zwischen Gasphase und den flüssigen Aerosolen haben keinen wesentlichen Einfluß auf den zeitlichen Verlauf der relativen Feuchte, da der Flüssigwassergehalt im Aerosol sehr klein verbleibt gegenüber der  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration in der Gasphase und dem Eiswassergehalt (siehe dazu Abb. 4.11).



**Abb. 4.5:** Modellierte relative Feuchte in Bezug auf Eis. Die horizontale Linie bei 160 % markiert die kritische Übersättigung für homogene Eisnukleation bei einer Temperatur von 198 K für Partikel mit einem Durchmesser von ca.  $0.4 \mu\text{m}$  und einer Gefrierdauer von 1 min (Koop et al., 2000). Das Dreiecksymbol im Bereich des Maximums der Eisfeuchte markiert den Einsatzzeitpunkt des Gefrierprozesses in der Modellsimulation, der Punkt zeigt den Gefrierzeitpunkt ermittelt mit Depolarisationsmessungen in der AIDA-Kammer (siehe Abb. 4.8).

Wenn die Temperatur nach ca. 600 s aufgrund des Wärmestroms von den Kammerwänden anzusteigen beginnt, kommt die Eisfeuchte nahe 100 % zu liegen. Zur gleichen Zeit fällt jedoch weiterhin der Druck, wodurch der  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdruck reduziert wird. Durch die Wassernachlieferung von den Kammerwänden (FISH-Messung nimmt zu) wird jedoch diese druckinduzierte Feuchteabnahme kompensiert und ein Gleichgewicht zwischen Feuchte in der Kammer und eisbedeckten Kammerwänden wird wiederhergestellt.

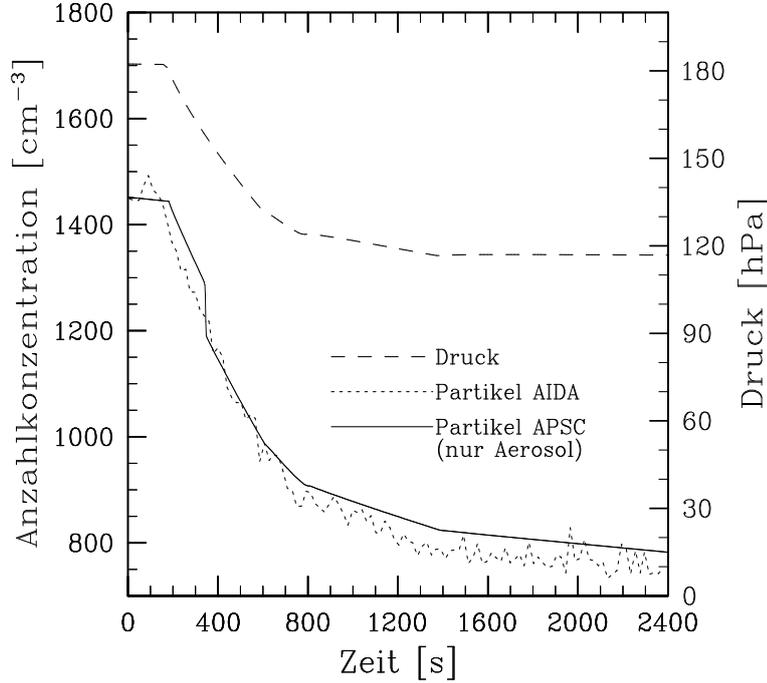
Es wurde für dieses Experiment auch eine Modellrechnung mit konstantem  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis durchgeführt, bei dem der beobachtete Anstieg des Gesamtwassers während der Kühlphase ignoriert wird. Bei dieser Simulation (Feuchteverlauf hier nicht gezeigt) zeigte sich ein kontinuierlicher Abfall der relativen Eisfeuchte auf 70 % mit ansteigender Temperatur, im Gegensatz zur Gleichgewichtssituation nahe Eissättigung auf Grundlage der FISH-Messungen. Dies unterstreicht die Wichtigkeit von möglichst exakten Feuchte- und Temperaturmessungen bei derartigen Gefriersimulationen.

Bei ca. 800 s und 1400 s fällt die Eisfeuchte knapp unter die Eissättigung. Diese kurzfristigen Untersättigungen stehen in Zusammenhang mit einer geringeren Pumpgeschwindigkeit (geringere Druckabnahme) bzw. mit dem Ende der Pumpphase und dadurch einer erhöhten Temperaturzunahme (siehe Abb. 4.3). Diese Untersättigungen forcieren ein teilweises Verdampfen der Eispartikel, was zur Wiederherstellung des Gleichgewichtes bei Eissättigung führt.

**Partikelanzahlkonzentrationen** Die Simulation startet mit einer totalen Anzahlkonzentration von  $1460 \text{ cm}^{-3}$  Schwefelsäureaerosolen. Dies entspricht der zum selben Zeitpunkt in der AIDA-Kammer beobachteten Anzahlkonzentration. Die Volumenexpansion mit Beginn des Pumpens bewirkt eine dynamische Abnahme der Aerosolanzahlkonzentration (siehe Abb. 4.6 und Abschnitt 3.2.1), wobei über die meiste Simulationszeit die gemessene und die simulierte Partikelkonzentration sehr gut übereinstimmen und deren zeitliche Entwicklung weitgehend dem Druckverlauf folgt. Bei konstanten Druckbedingungen vor 200 s und nach 1400 s nimmt jedoch die Anzahlkonzentration auch geringfügig ab. Dies ist eine Folge der Abscheideprozesse von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Aerosolen in der AIDA-Kammer, welche bereits in Abschnitt 4.2.1 angesprochen wurden.

Bei 345 s markiert die simulierte Aerosolanzahlkonzentration durch den scharfen Abfall der Kurve den Zeitpunkt des Gefrierprozesses. Die Abnahme der Partikelkonzentration beträgt hier ca.  $90 \text{ cm}^{-3}$ , entsprechend der Anzahl der gebildeten Eispartikel (siehe dazu Abb. 4.7). Bei der Kammermessung der Partikelkonzentration kann dieser scharfe Abfall nicht beobachtet werden, da der Kondensationskernzähler die Anzahl von Aerosolen und Eispartikeln in Summe mißt.

In Abb. 4.7 wird der Einsatzzeitpunkt des Gefrierprozesses bei 330 s definiert. Nach diesem Zeitpunkt wird innerhalb von ca. 20 s eine maximale Eispartikelkonzentration von  $94 \text{ cm}^{-3}$  erreicht. Die Nukleation weiterer Eispartikel wird nachfolgend durch den Fall der relativen Eisfeuchte unterhalb der kritischen Gefrierfeuchte verhindert. Die charakteristische Zeit  $\tau_{\text{fr}}$  des Gefrierprozesses bei einer Gefriertemperatur von 198 K ist umgekehrt



**Abb. 4.6:** Verlauf von Druck und totaler Partikelanzahlkonzentration. Die fein gestrichelte Kurve zeigt den Verlauf der Partikelmessung in der Kammer (Summe aus Aerosolen und Eisparkeln mit einem Durchmesser von 20 nm bis 3  $\mu\text{m}$ ). In der Simulation (durchgezogene Kurve, nur flüssige Partikel) wird das Gefrieren von einem kleinen Teil der Aerosole durch einen scharfen Abfall der Anzahlkonzentration bei 345 s angezeigt.

proportional der Kühlrate  $dT/dt$  (Kärcher und Lohmann, 2002):

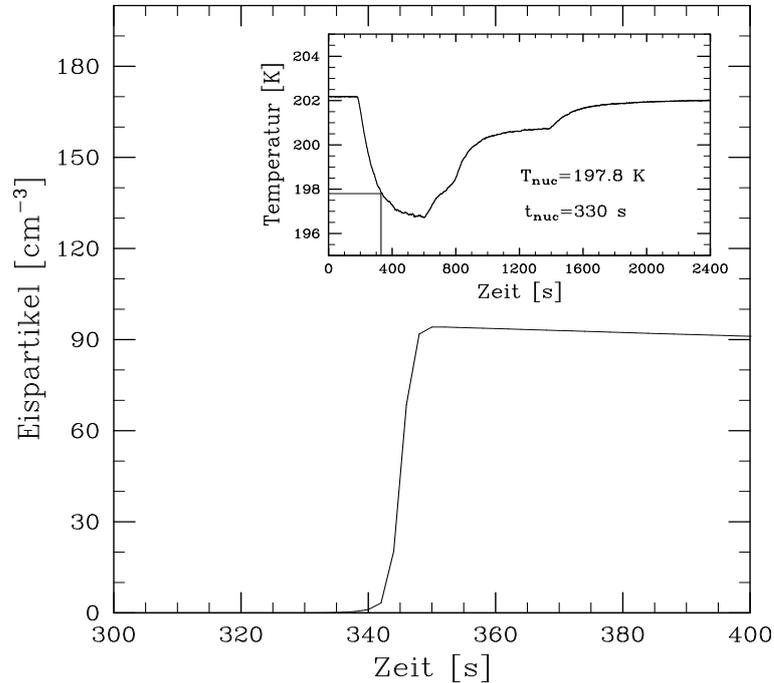
$$\tau_{\text{fr}}[\text{s}] = \left(78.5 \frac{dT}{dt} [\text{K s}^{-1}]\right)^{-1}. \quad (4.1)$$

Setzt man die beobachtete Kühlrate  $dT/dt = 0.012 \text{ K s}^{-1}$  bei 198 K in Gleichung (4.1) ein, erhält man für  $\tau_{\text{fr}} \sim 1 \text{ s}$ . Diese charakteristische Gefrierzeit wurde mit der vollen Breite bei halbem Maximalwert (Halbwertsbreite) des größtenintegrierten Nukleationspulses

$$J(t) = \sum_{i=1}^{N_B} \frac{dn_{\text{ice},i}}{dt} = \sum_{i=1}^{N_B} v_i J_{\text{hom}} n_{\text{aer},i} \quad (4.2)$$

in der APSC-Simulation verglichen. Dabei stimmt der ermittelte Wert von  $\sim 3 \text{ s}$  gut mit der charakteristischen Gefrierzeit  $\tau_{\text{fr}}$  überein.

Abbildung 4.8 vergleicht die simulierte totale Eisparkelanzahlkonzentration mit der AIDA-Messung für Eisparkel mit einem Durchmesser größer als 1.5  $\mu\text{m}$  (durchgezogene Kurve rechts). Bei der Kammermessung mit dem optischen Partikelspektrometer werden nur Partikel  $> 1.5 \mu\text{m}$  als Eisparkel gezählt, da sie unterhalb dieses Limits nicht von großen flüssigen Schwefelsäurepartikeln unterschieden werden können (Möhler et al.,

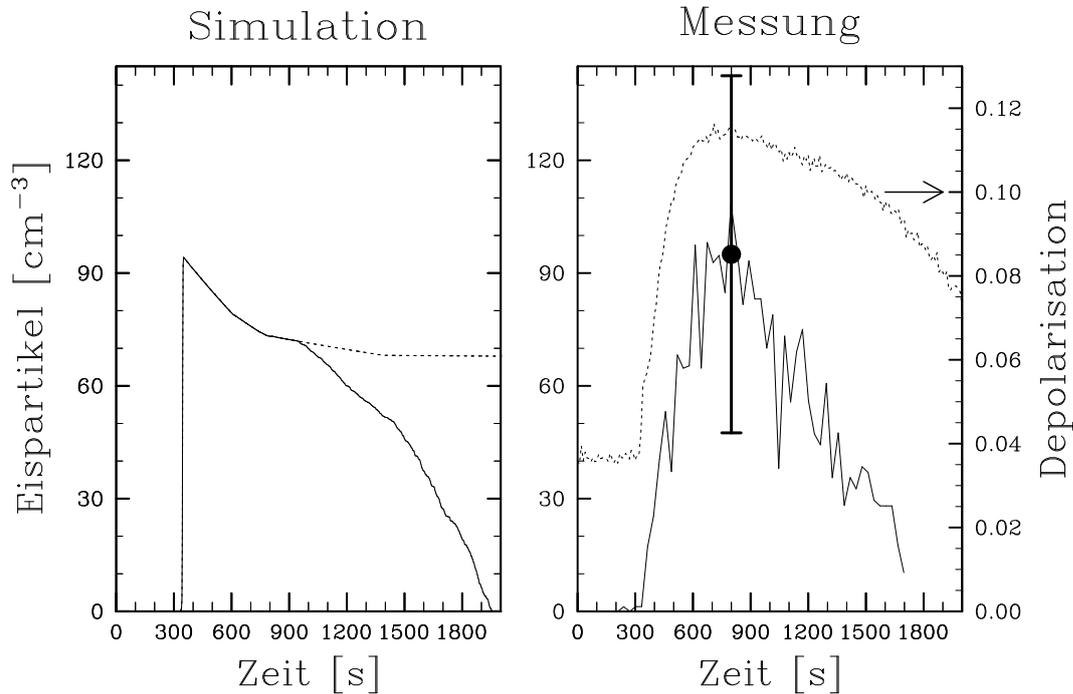


**Abb. 4.7:** Zeitlicher Verlauf der modellierter Anzahlkonzentration der Eispartikel. Der definierte Gefrierzeitpunkt  $t_{\text{nuc}} = 330$  s ist im Modell jener Zeitpunkt, wo die Eispartikelkonzentration den Wert von  $10^{-3} \text{ cm}^{-3}$  überschreitet (nicht ersichtlich auf der linearen y-Achse). Die entsprechende Gefriertemperatur  $T_{\text{nuc}}$  beträgt 197.8 K (siehe kleine Abb.).

2003). Im Modell ist der Unterschied zwischen der Gesamtzahl der Eispartikel und der Zahl der Eispartikel  $> 1.5 \mu\text{m}$  sehr klein (hier nicht gezeigt).

Berücksichtigt man bei der Simulation die mehrfach erwähnten Verlustprozesse von Eiswasser (siehe Abschnitt 4.2.1), dann nimmt die simulierte Eispartikelanzahlkonzentration in ähnlicher Weise ab, wie die in der AIDA-Kammer gemessene Konzentration (vergleiche durchgezogene Kurve links mit durchgezogener Kurve rechts in Abb. 4.8). Der Vergleich mit der Kammermessung zeigt weiter, daß sowohl der Einsatz des Gefrierprozesses als auch die maximale Eispartikelkonzentration von der Simulation sehr gut erfaßt werden. Obwohl wie oben erwähnt die Partikelmessung mit dem optischen Partikelspektrometer nur für große Eispartikel sensitiv ist, stimmt die Messung der ersten Eispartikel mit dem scharfen Anstieg des Depolarisationssignals sehr gut überein.

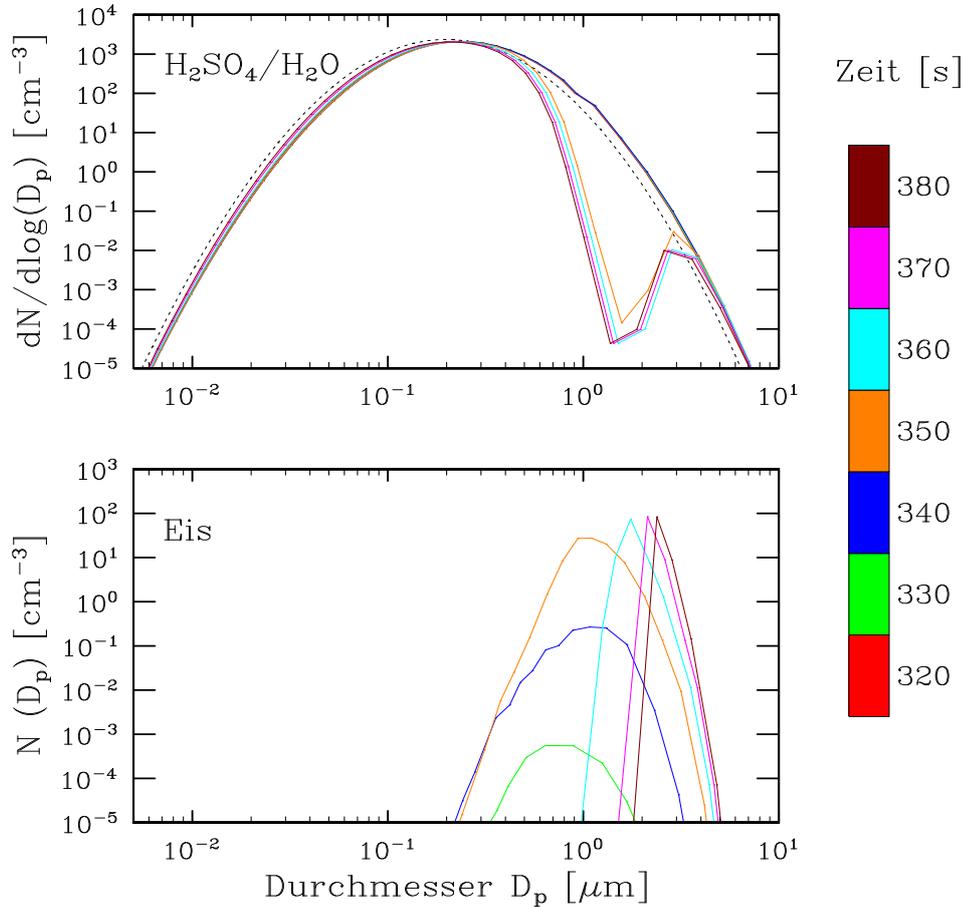
Der im Vergleich zur APSC-Simulation verzögerte Anstieg der Eispartikelkonzentration wird durch teilweises Verdampfen von Eispartikeln in der beheizten Probenahmeleitung zum Partikelspektrometer verursacht (Möhler et al., 2003). Durch dieses teilweise Verdampfen kann der Durchmesser von anfänglich sehr kleinen Eispartikeln unter das Detektionslimit von  $1.5 \mu\text{m}$  schrumpfen, wo sie dann nicht mehr von den flüssigen Aerosolen unterschieden werden können. Mit zunehmendem Wachstum der Eispartikel wird dieser Effekt jedoch immer unwichtiger, weshalb es auch unwahrscheinlich ist, daß die Kammermessung die maximale Anzahl der Eispartikel unterschätzt.



**Abb. 4.8:** Modellierte (linke Abb.) und gemessene (rechte Abb.) Eispartikelanzahlkonzentrationen. Bei der gemessenen Anzahlkonzentration wurden nur Eispartikel mit einem Durchmesser größer als  $1.5 \mu\text{m}$  gezählt. Die Simulation zeigt sowohl das Resultat unter Berücksichtigung der Eiswasserverluste (durchgezogene Kurve), als auch den Verlauf bei Vernachlässigung der Verlustprozesse (gestrichelte Kurve). Der vertikale Balken kennzeichnet die experimentelle Unsicherheit der mit dem optischen Partikelspektrometer gemessenen Eispartikelkonzentration. Die gestrichelte Kurve rechts zeigt die gemessene Depolarisation des rückwärtsgestreuten Argon-Lasers zur Bestimmung des Einsatzzeitpunktes des Gefrierens.

**Größenverteilungen und chemische Zusammensetzung des Aerosols** Anhand von Abb. 4.9 soll zunächst die zeitliche Entwicklung der Anzahlgrößenverteilung der Eispartikel (Bild unten) diskutiert werden. Dargestellt ist die Anzahlkonzentration der Eispartikel in jedem Größenbin. Die erste Eismode mit einem Mediandurchmesser von ca.  $0.8 \mu\text{m}$  ist bei  $t = 330 \text{ s}$  zu sehen. Durch sehr langsames Wachstum der frisch gebildeten Eispartikel, jedoch sehr rasches Gefrieren weiterer Aerosole, bleibt bis ca.  $t = 350 \text{ s}$  die mittlere Größe der Eispartikel nahezu unverändert, die Anzahlkonzentration erhöht sich jedoch um einen Faktor  $10^4$ . Danach ist der Gefrierprozeß abgeschlossen und die existierenden Eispartikel wachsen zu einer mittleren Größe von  $2.4 \mu\text{m}$  im Durchmesser. In diesem Größenbereich wird das Partikelwachstum durch Diffusion kontrolliert. Dabei ist das radiale Wachstum der Partikel umgekehrt proportional der Partikelgröße, d.h. kleine Partikel wachsen schneller als große, weshalb die Größenverteilung der Eispartikel mit zunehmender Zeit immer schmaler wird.

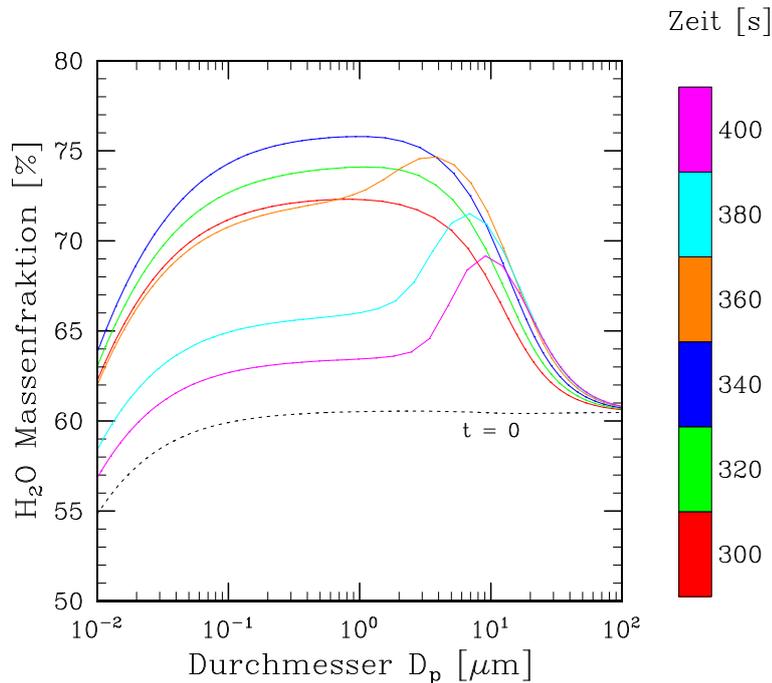
Betrachtet man die Größenverteilung des Aerosols in Abb. 4.9 zeigt sich, daß die flüssigen Schwefelsäureaerosole mit einem Durchmesser größer als ca.  $4 \mu\text{m}$  nicht gefrie-



**Abb. 4.9:** Zeitliche Entwicklung der modellierten Anzahlgrößenverteilungen der Aerosole (oben) und der Eispartikel (unten) während des Gefrierprozesses. Die unterschiedlichen Farben kennzeichnen die fortlaufende Zeit in Intervallen von 10 s. Die gestrichelte Kurve oben zeigt die Anfangsgrößenverteilung des Aerosols.

ren. Dieser Umstand erscheint zunächst überraschend zu sein, denn die homogene Gefrierwahrscheinlichkeit sollte mit zunehmendem Partikelvolumen ansteigen. Der Grund ist die Diffusionslimitierung der großen Partikel. Beim schnellen Kühlen der Kammer können dann diese Partikel im Vergleich zu den kleineren Aerosolen nicht schnell genug das verfügbare Wasser mit ansteigender relativer Feuchte aufnehmen. Dies hat zur Folge, daß bei Initiierung des Gefrierprozesses in einem Größenbereich nahe  $1 \mu\text{m}$  der Wassergehalt bzw. die Wasseraktivität der größeren Partikel zu gering ist, d.h. diese Lösungstropfen sind zu schwefelsäurehaltig um gefrieren zu können.

Mit Hilfe von Abb. 4.10, welche die  $\text{H}_2\text{O}$ -Massenfraktion als Funktion der Zeit und der Partikelgröße zeigt, kann dies nochmals verdeutlicht werden. Solange kein Gefrieren auftritt erfahren mit Beginn der Kühlung die Aerosole im mittleren Größenbereich ein starkes Kondensationswachstum. Bei  $t = 340 \text{ s}$  gipfelt der Wasseranteil in der  $1 \mu\text{m}$  großen Tropfen bei einem Wert von ca. 75 %. Die Tropfen mit einem Durchmesser größer



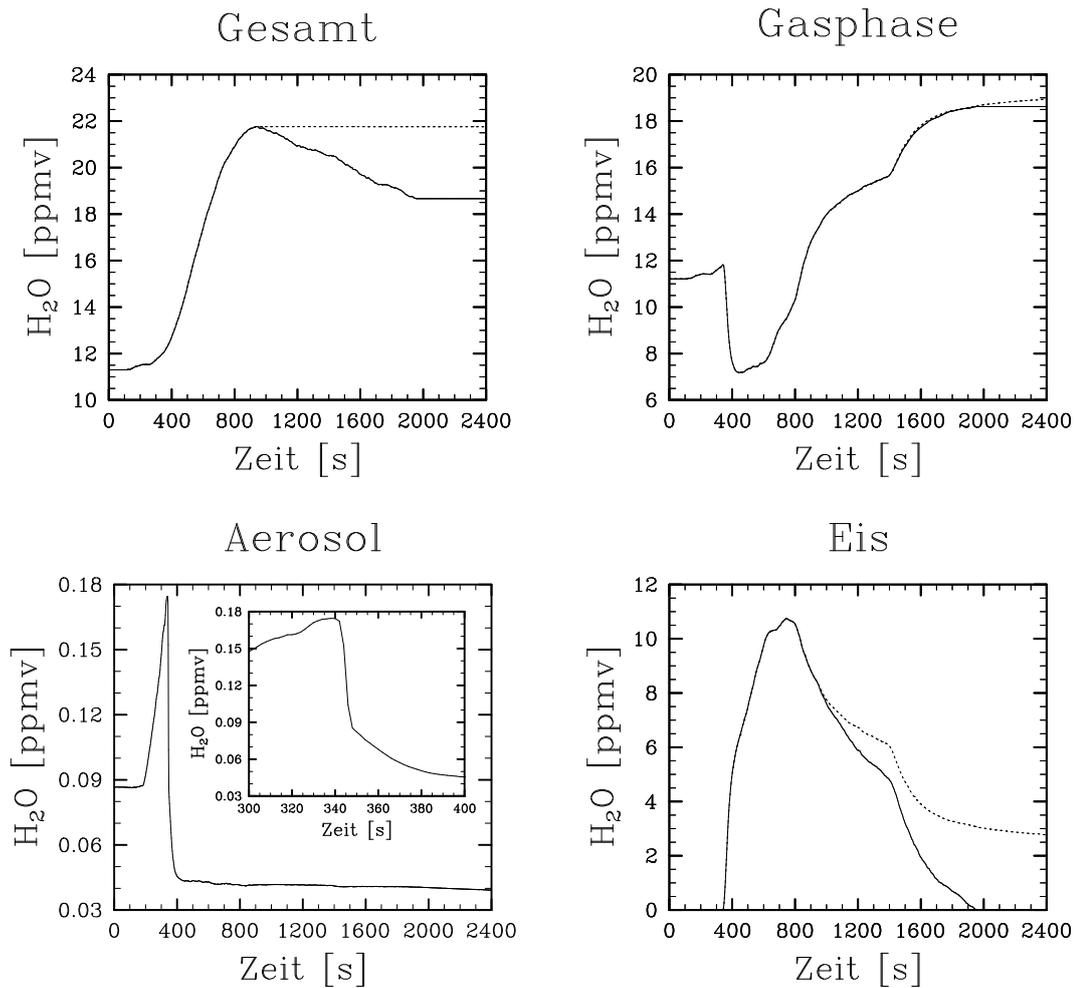
**Abb. 4.10:** Größenaufgelöste  $\text{H}_2\text{O}$ -Massenfraktion der  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen zum Zeitpunkt des Gefrierens. Die gestrichelte Kurve gibt den anfänglichen Wassergehalt der Aerosole vor der Kammerkühlung an.

als  $20 \mu\text{m}$  nehmen in dieser Zeitspanne nur sehr wenig Wasser auf, und verbleiben fast bei ihrer anfänglichen  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration vor der Kammerkühlung. Bei sehr kleinen Aerosolen unterhalb  $0.1 \mu\text{m}$  ist der Wassergehalt aufgrund des Kelvin-Effekts sehr gering. Im Gegensatz zu den großen Lösungstropfen sind diese kleinen Tropfen jedoch nicht diffusionslimitiert, sondern sie verbleiben stets im Gleichgewicht mit dem verfügbaren Wasser in der Gasphase, d.h. sie reagieren instantan auf Änderungen der relativen Feuchte. Aufgrund ihrer Diffusionslimitierung verdunsten die größeren Aerosole Wasser auch langsamer mit fallender Eisfeuchte nach  $t = 340 \text{ s}$ , wodurch die Beulen der Kurven in Abb. 4.10 im Durchmesserbereich zwischen  $5\text{--}10 \mu\text{m}$  zustandekommen.

**Partitionierung von Wasser** Wie bereits in Abschnitt 4.2.1 beschrieben wurde, wird bei allen Simulationen das Gesamtwasser gemäß den FISH-Messungen vorgeschrieben, sodaß zu jeder Zeit das totale Mischungsverhältnis von Wasser im Modell dem gemessenen Wert entspricht. In Abbildung 4.11 ist die berechnete Partitionierung des Gesamtwassers in Gasphase, Flüssigwassergehalt und Eiswassergehalt dargestellt, welche experimentell nicht bestimmt werden kann.

Anfänglich befindet sich der Großteil des Gesamtwassers in der Gasphase. Im Vergleich dazu ist der Flüssigwassergehalt der Aerosole äußerst gering. Wird die Kammer gekühlt, erhöht sich zunächst der Flüssigwassergehalt durch Kondensationswachstum der unterkühlten Tropfen, mit Einsatz des Gefrierprozesses nimmt er jedoch wieder ab. Un-

tersucht man diese Abnahme genauer (siehe kleine Abb. innerhalb von Abb. 4.11), findet man in der Zeit zwischen 340 s und 350 s eine steile Abnahme des Flüssigwassers, gefolgt von einer langsameren Abnahme. Der steile Abfall kommt durch den Gefrierprozeß zustande, d.h. dieser Wasseranteil wird durch Gefrieren eines Teils der Aerosole in Eis umgewandelt. Die nachfolgende langsamere Abnahme resultiert aus der Verdunstung von Wasser mit fallender relativer Eisfeuchte, verursacht durch das Eispartikelwachstum.



**Abb. 4.11:** Modellierter Partitionierung von Wasser. Die durchgezogenen Kurven sind die Ergebnisse unter Berücksichtigung der Eiswasserverluste nach 900 s. Die Ergebnisse ohne diese Prozesse sind als gestrichelte Kurven eingezeichnet.

Das H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnis in der Gasphase wird durch Deposition von Wasser an den Eispartikeln zwischen 300 s und 400 s verringert. Dieser Verlust in der Gasphase wird jedoch gleichzeitig durch die Wassernachlieferung von den Kammerwänden teilweise kompensiert (siehe beginnende Zunahme des Gesamtwassers), bis schließlich das Mischungsverhältnis aus dem selben Grund wieder zunimmt.

Bei ca. 800 s erreicht der Eiswassergehalt seinen Maximalwert von fast 11 ppmv.

Andererseits wurde aber die  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphase durch das Eispartikelwachstum nur um ca. 5 ppmv verringert. Demzufolge resultiert ein großer Teil des Eispartikelwachstums aus der Wassernachlieferung von den Kammerwänden, wobei dieses Wasser sehr schnell an die Eispartikel angelagert wird. Die Zeitskala  $\tau_{\text{gas}}$ , auf welcher der verfügbare Wasserdampf an wachsenden Partikeln deponiert wird (Zeitskala, auf der die  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphase entleert wird), ist durch

$$\tau_{\text{gas}} = \frac{1}{4\pi D r \beta n_{\text{ice}}} \quad (4.3)$$

gegeben. Setzt man bei einer Temperatur von  $T = 200$  K und einem Druck von  $p = 180$  hPa für den  $D \simeq 0.9 \text{cm}^2 \text{s}^{-1}$  (Gleichung (2.4)), für  $\beta = 0.6$  (Gleichung (2.3)), für den Eispartikelradius  $r = 1 \mu\text{m}$ , und für die Eispartikelkonzentration  $n_{\text{ice}} = 94 \text{cm}^{-3}$ , dann erhält man für  $\tau_{\text{gas}} \sim 15$  s.

Bei ca. 800 s und 1400 s fällt die Eisfeuchte knapp unter 100 % (siehe Abb. 4.5), wodurch die Eispartikel teilweise verdampfen. Dies führt wiederum zu einer Zunahme des Gasphasenwassers bis die Kühlphase beendet ist. Berücksichtigt man in der Simulation die Abnahme des Gesamtwassers zufolge der Eiswasserverluste nach 900 s, führt dies zwar zu einer viel schnelleren Abnahme des Eiswassergehaltes als durch Verdunstung alleine, einen Einfluß auf die  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphasenkonzentration hat dies aber nur in geringem Umfang am Ende der Kühlphase. Zusammenfassend sei erwähnt, daß die Partitionierung von Wasser, vor allem die Umsätze von Wasser zwischen der Gasphase und der Eisphase, großteils durch den  $\text{H}_2\text{O}$ -Wandfluß bestimmt ist.

### 4.2.3 Experimente in anderen Temperaturbereichen

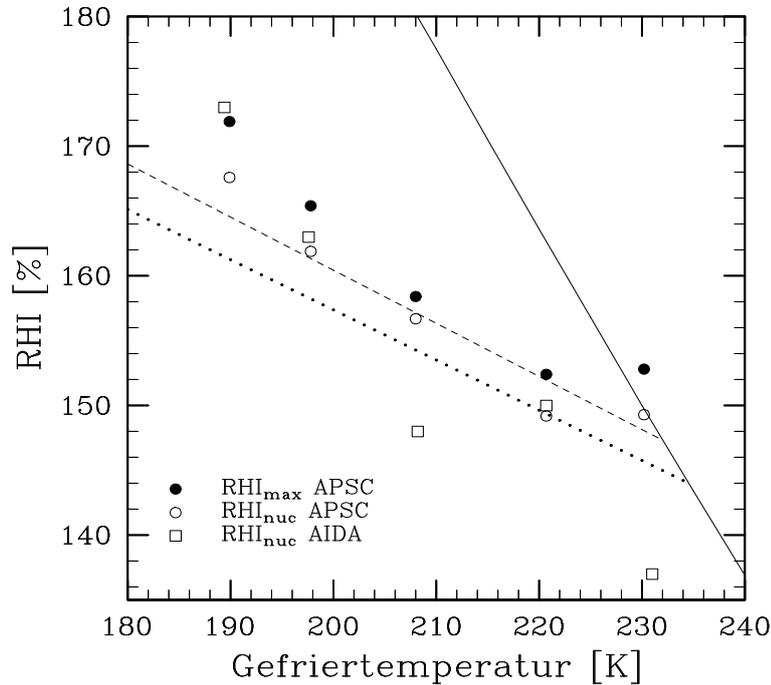
Neben der im vorigen Abschnitt präsentierten Fallstudie bei 202 K wurden weitere APSC-Simulationen von homogenen Gefrierexperimenten mit unterkühlten  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen durchgeführt. Die Anfangstemperaturen der Experimente erstreckten sich von 194 K bis 235 K. Die Kühlraten zum Zeitpunkt des Gefrierens betragen zwischen  $0.5 \text{K min}^{-1}$  und  $2.6 \text{K min}^{-1}$  (siehe Tab. 4.1). Unter der Annahme von adiabatischer Kühlung entsprechen diese Kühlraten vertikalen Windgeschwindigkeiten in der Größenordnung von  $1\text{--}2 \text{m s}^{-1}$ , vergleichbar mit konvektiven Aufwinden oder den Aufwinden in starken mesoskaligen Wellen. Im Gegensatz zur Fallstudie bei 202 K wurde bei den übrigen Experimenten keine Anfangsgrößenverteilung bestimmt. Bei der Initialisierung der Größenverteilung in den APSC-Simulationen wurde daher bei diesen Experimenten die gemessene  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration in der Kammer herangezogen, und dann der Median-durchmesser und die geometrische Standardabweichung derart angepaßt, daß die modellierte totale Anzahlkonzentration des Aerosols mit der gemessenen Konzentration übereinstimmt. Nachfolgend konzentriert sich der Vergleich zwischen Modellergebnissen und Kammermessungen auf die kritischen Gefrierfeuchten, die maximalen Übersättigungen, die Gefrierzeitpunkte, die totale Anzahl der Eispartikel und die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Massenfraktion.

**Tabelle 4.1:** Zusammenschau der simulierten Gefrierexperimente mit den Anfangstemperaturen  $T_o$  und mit den Kühlraten  $(dT/dt)_{\text{nuc}} = \gamma$ . Die Kühlraten sind zum Zeitpunkt des Gefriereinsatzes bestimmt. Gegenübergestellt sind die modellierten und gemessenen Gefriereinsatzzeitpunkte  $t_{\text{nuc}}$ , die Gefriertemperaturen  $T_{\text{nuc}}$  und die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Massenfraktionen  $W_{\text{nuc}}$  zum Zeitpunkt  $t_{\text{nuc}}$ . Die Zeitpunkte  $t_{\text{nuc}}$  beziehen sich hier auf den Beginn der Kammerkühlung. Die modellierten Schwefelsäurekonzentrationen gelten für Partikel im Nicht-Gleichgewicht mit einem Durchmesser von  $1 \mu\text{m}$ , die gemessenen Werte wurden mit Hilfe von Filterprobenahmen unter der Annahme von Wassergleichgewicht ermittelt. In den beiden letzten Spalten werden die simulierten und die gemessenen totalen Eispartikelkonzentrationen verglichen, wobei die experimentelle Unsicherheit  $\pm 50 \%$  beträgt.

| $T_o$ [K] | APSC                               | AIDA                               | APSC                    |                         |                         | AIDA                    |                         |                         | APSC                                    | AIDA                                    |
|-----------|------------------------------------|------------------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|---|---|
|           | $\gamma$<br>[K min <sup>-1</sup> ] | $\gamma$<br>[K min <sup>-1</sup> ] | $t_{\text{nuc}}$<br>[s] | $W_{\text{nuc}}$<br>[%] | $T_{\text{nuc}}$<br>[K] | $t_{\text{nuc}}$<br>[s] | $W_{\text{nuc}}$<br>[%] | $T_{\text{nuc}}$<br>[K] | $n_{\text{ice}}$<br>[cm <sup>-3</sup> ] | $n_{\text{ice}}$<br>[cm <sup>-3</sup> ] |
| 194.4     | -0.72<br>(-0.06)                   | 0.09                               | 190<br>(268)            | 27.0<br>(27.1)          | 189.9<br>(189.4)        | 270                     | 22.2                    | 189.4                   | 90<br>(41)                              | keine Daten                             |
| 202.2     | -0.78                              | -0.57                              | 150                     | 24.8                    | 197.8                   | 160                     | 22.6                    | 197.6                   | 94                                      | $108 \pm 54$                            |
| 212.6     | -0.9                               | -0.88                              | 152                     | 21.2                    | 208.0                   | 127                     | 23.3                    | 208.2                   | 34                                      | $42 \pm 21$                             |
| 225.9     | -0.48                              | -0.43                              | 268                     | 13.4                    | 220.7                   | 261                     | 15.2                    | 220.7                   | 20                                      | $8 \pm 4$                               |
| 235.3     | -2.58<br>(-2.58)                   | -2.75                              | 96<br>(91)              | 4.3<br>(3.9)            | 230.2<br>(230.4)        | 72                      | 16.2                    | 231.0                   | 346<br>(245)                            | $> 40$                                  |

**Eisübersättigungen** Abbildung 4.12 vergleicht die modellierten maximalen Eisfeuchten (ausgefüllte Kreise) und Gefrierfeuchten (offene Kreise) mit den gemessenen Gefrierfeuchten in der AIDA-Kammer (offene Quadrate). Die durchgezogene Linie in Abb. 4.12 markiert die relative Eisfeuchte, bei der Sättigung in Bezug auf flüssiges Wasser eintritt. Die gestrichelte Linie kennzeichnet die kritische Eisfeuchte als Funktion der Temperatur, bei der ein Tropfen mit einem Durchmesser von  $0.5 \mu\text{m}$  in einem Zeitraum von 1 s gefriert. Die gepunktete Linie gilt für Tropfen mit einem Durchmesser von  $2 \mu\text{m}$  und einer Gefrierdauer von 1 min. Diese kritischen Feuchten wurden mit Hilfe der Nukleationsraten-Parametrisierung von Koop et al. (2000) berechnet (siehe Gleichung (2.31)). Im ersten Fall (gestrichelte Linie) beträgt die kritische Nukleationsrate  $J_{\text{hom}} = 1.5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  und die Differenz zwischen kritischer Wasseraktivität und Wasseraktivität bei Eisgleichgewicht  $\Delta a_w = a_w - a_w^i = 0.3204$ , im zweiten Fall (gepunktete Linie) ist  $J_{\text{hom}} = 4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  und  $\Delta a_w = 0.305$ . Die beiden Linien umgrenzen näherungsweise die beobachteten Partikelgrößen und Gefrierzeitskalen in der AIDA-Kammer.

Vergleicht man in den Modellsimulationen die maximalen Eisfeuchten mit den kritischen Gefrierfeuchten, zeigt sich zwischen diesen Feuchten eine Differenz von ein paar Prozenten, wobei diese Differenz mit abnehmender Temperatur zunimmt (siehe Fälle bei Temperaturen unterhalb 210 K in Abb. 4.12). Dies wird durch ein langsames Wachstum der Eispartikel mit abnehmender Temperatur verursacht, wodurch dem Anstieg der Eisfeuchte zufolge der Kühlung weniger schnell entgegengewirkt wird als bei hohen Temperaturen. Beim wärmsten Experiment mit einer Gefriertemperatur nahe 230 K kommt



**Abb. 4.12:** Modellerte maximale Eisfeuchten  $RHI_{\max}$  und Gefrierfeuchten  $RHI_{\text{nuc}}$  (ausgefüllte und offene Kreise) zusammen mit den gemessenen kritischen Gefrierfeuchten in der AIDA-Kammer (offene Quadrate). Der absolute Meßfehler der Gefrierfeuchten in der AIDA-Kammer erhöht sich von  $\pm 8\%$  bei einer Temperatur von 230 K auf  $\pm 12\%$  bei 190 K (Möhler et al., 2003).

trotzdem eine große Differenz zwischen kritischer und maximaler Feuchte zustande, weil bei diesem Experiment die Kühlrate sehr viel größer war (Faktor 3–4) als bei den anderen Experimenten (siehe Tab. 4.1), wodurch der reine Temperatureffekt kompensiert wird.

Mit abnehmender Gefriertemperatur beobachtet man die Tendenz, daß die kritischen Gefrierfeuchten in Abb. 4.12 oberhalb der gestrichelten und der gepunkteten Linie zu liegen kommen. Dieses Verhalten ist eine Folge des Nicht-Gleichgewichtes der großen Aerosolpartikel (Durchmesser  $> 2 \mu\text{m}$ ) mit der  $\text{H}_2\text{O}$ -Konzentration in der Gasphase, was anhand Abb. 4.10 bereits diskutiert wurde. Bei den Modellsimulationen wurde als Gefrierzeitpunkt jener Zeitpunkt definiert, wo die Eispartikelkonzentration den Wert  $10^{-3} \text{ cm}^{-3}$  überschreitet (siehe Abb. 4.7). Bei einer so geringen Partikelkonzentration würden normalerweise die großen Partikel aufgrund des Volumeneffektes zuerst gefrieren, was aber aufgrund ihrer zu geringen Wasseraktivität nicht geschieht. Im Gegensatz dazu sind die kleineren Aerosole im Durchmesserbereich  $0.1\text{--}1 \mu\text{m}$  nahezu im Wassergleichgewicht und gefrieren deshalb zuerst (siehe Abb. 4.9 und 4.10). Je niedriger die Temperatur, desto kleiner sind nun aufgrund einer geringeren Wachstumsrate diese zuerst gefrierenden Aerosole und desto höher sind daher ihre Gefrierfeuchten aufgrund der geringeren Gefrierwahrscheinlichkeit bei kleinerem Volumen. Aus diesem Grund liegen nun die tatsächlichen Gefrierfeuchten über den entsprechenden kritischen Feuchten nach Koop et al. (2000), bei

welchen ein monodisperses Aerosol im Gleichgewicht mit der H<sub>2</sub>O-Gasphase angenommen wurde.

Mit Ausnahme der beiden Experimente nahe 210 K und 230 K unterscheiden sich die modellierten Gefrierfeuchten von den gemessenen AIDA-Werten um nicht mehr als 3 %, was deutlich innerhalb der absoluten experimentellen Unsicherheit von  $\pm 8\text{--}12\%$  liegt. Im Fall des Experimentes nahe 210 K ist die große Differenz zwischen modellierter und gemessener Gefrierfeuchte wahrscheinlich auf heterogene Gefrierartefakte zurückzuführen, wodurch der Gefrierprozeß bei einer sehr niedrigen Eisfeuchte initiiert wurde (Möhler et al., 2003). Die Differenz im Fall nahe 230 K ist schwieriger zu erklären. Eine Erklärung könnte hier sein, daß durch Temperaturinhomogenitäten im Gasvolumen (siehe Abschnitt 4.1.2), verursacht durch sehr kurzzeitige isolierte Wirbel mit nahezu adiabatischer Abkühlung, der Gefrierprozeß bei einer niedrigeren Temperatur als der ermittelten mittleren Gastemperatur stattgefunden hat. Eine Bestimmung der AIDA-Gefrierfeuchte mit niedriger Temperatur würde dann zu einer besseren Übereinstimmung zwischen modellierten und gemessener Gefrierfeuchte führen. Eine zweite Erklärung könnte die extrem hohe Kühlrate bei diesem Experiment liefern. Bei einer derart schnellen Kühlung ist die Gefrierfeuchte extrem sensitiv bezüglich des ermittelten Gefrierzeitpunktes, dessen gemessener und modellierter Wert sich deutlich unterscheiden (siehe Tab. 4.1).

Die kritische Gefrierfeuchte für das wärmste Experiment mit einer Gefriertemperatur um 230 K liegt bei der Modellsimulation sehr nahe an der Linie wo Sättigung bezüglich Flüssigwasser eintritt (siehe Abb. 4.12). Durch die sehr große Kühlrate und die warme Temperatur weisen hier die unterkühlten Lösungstropfen vor dem Gefrierprozeß ein starkes Kondensationswachstum auf und werden dadurch sehr stark verdünnt. Der simulierte H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Massenanteil beträgt hier zum Zeitpunkt des Gefrierens im Modell nur 4.3 %. Von der experimentellen Seite betrachtet scheint bei diesem Experiment aber keine Aktivierung von Flüssigwasser stattgefunden zu haben (siehe niedrige AIDA-Gefrierfeuchte). Anhand einer zusätzlichen Simulation wurde deshalb untersucht, inwieweit das Modellergebnis durch die Genauigkeit der Parametrisierung für den H<sub>2</sub>O-Sättigungsdampfdruck über den nahezu reinen Wassertropfen beeinflusst wird, dessen Unsicherheit im Bereich von ein paar Prozenten liegt. In dieser Simulation wurde der Sättigungsdampfdruck um 2.5 % verringert, wenn die relative Feuchte den Wert von 95 % überschreitet. Als Modellergebnis erhält man dann eine um 3.6 % niedrigere Gefrierfeuchte und weiter auch eine maximale Übersättigung knapp unterhalb der Sättigungslinie bezogen auf flüssiges Wasser. Die weiteren Modellergebnisse für diese Simulation mit reduziertem Sättigungsdampfdruck sind in Tab. 4.1 (letzte Zeile) in Klammern dargestellt.

**Gefrierzeitpunkte** Wie in Abschnitt 4.2.2 bereits gezeigt wurde, wird bei den Kammerexperimenten der Gefrierzeitpunkt durch die sehr scharfe Zunahme der Depolarisation eines Argon-Lasers bestimmt, während in den Modellsimulationen dieser Zeitpunkt dann gegeben ist, wenn die Eispartikelkonzentration den Wert  $10^{-3}\text{ cm}^{-3}$  übersteigt. Dies erschwert einen exakten Vergleich der gemessenen und der modellierten Einsatzzeitpunkte des Gefrierprozesses. Trotzdem werden die experimentell bestimmten Gefrierzeitpunkte von den APSC-Simulationen sehr gut erfaßt (siehe Tab. 4.1). Dasselbe gilt auch für die

Gefriertemperaturen.

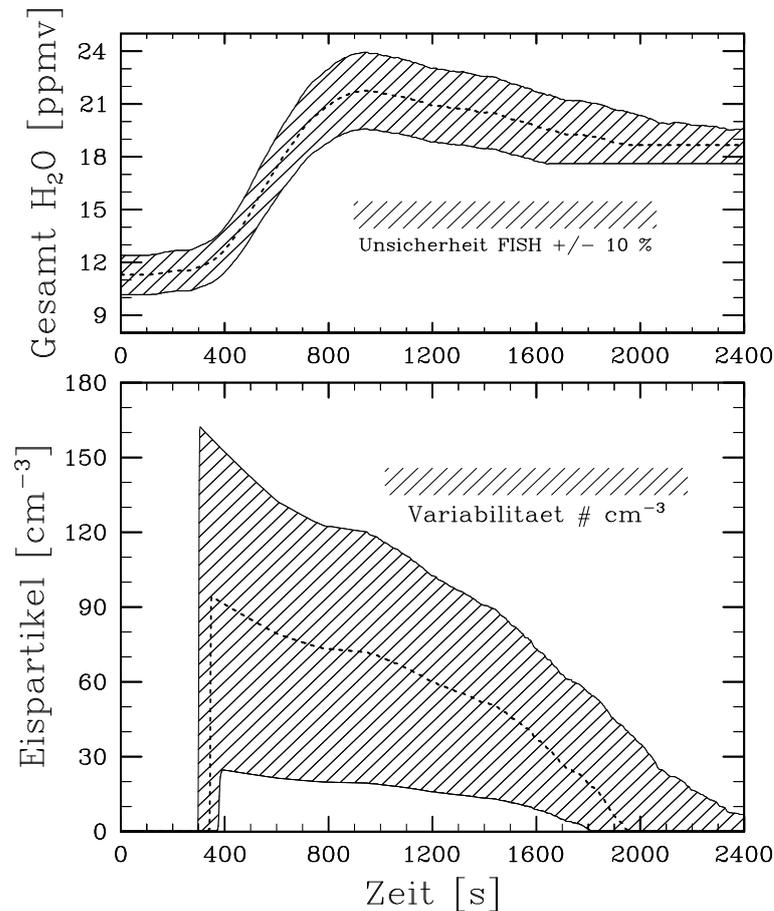
Eine Ausnahme bildet das kälteste Experiment mit einer Anfangstemperatur  $T_o = 194.4$  K. In diesem Fall ist der ermittelte Gefrierzeitpunkt in der Kammer viel später als in der Modellsimulation, wodurch auch der deutliche Unterschied bei den angegebenen Kühlraten erklärt wird. Hierfür könnte die experimentelle Unsicherheit bei der Gesamtwassermessung mit dem FISH-Instrument die Erklärung sein, welche die Modellergebnisse deutlich beeinflussen kann (siehe dazu Abschnitt 4.2.4). Reduziert man in einer Simulation den FISH-Meßwert um 7.5 %, was noch im Bereich der experimentellen Unsicherheit liegt, dann stimmen auch bei diesem Experiment der modellierte und der gemessene Gefrierzeitpunkt sehr gut überein (siehe Modellergebnisse in Klammern bei  $T_o = 194.4$  K in Tab. 4.1).

**Eispartikelkonzentrationen** In Tab. 4.1 werden auch die modellierten und die gemessenen maximalen Eispartikelkonzentrationen verglichen. Man beachte die sehr gute Übereinstimmung zwischen diesen Konzentrationen, was wiederum sehr gut die Anwendbarkeit der Nukleationsraten-Parametrisierung von Koop et al. (2000) zur Simulation von homogenen Gefrierprozessen demonstriert. Bei den Experimenten von  $T_o = 194.4$  K bis  $T_o = 212.6$  K nimmt die Kühlrate geringfügig zu, die Temperatur erhöht sich jedoch um ca. 18 K. Aus diesem Grund nimmt die Anzahl der gebildeten Eispartikel ab, da schnelleres Eispartikelwachstum bei höheren Temperaturen zu einer schnelleren Abnahme der Eisübersättigung führt und dadurch der Gefrierprozeß früher abgebrochen wird (Kärcher und Lohmann, 2002).

#### 4.2.4 Sensitivitätsanalysen

In diesem Abschnitt wird gezeigt, welchen Einfluß die experimentellen Unsicherheiten der Kammermessungen von Gesamtwasser, Temperatur und der Anfangsgrößenverteilung des Aerosols auf die Modellsimulationen haben können. Dabei richtet sich das Hauptaugenmerk dieser Sensitivitätsstudien auf die modellierte Eispartikelanzahlkonzentration für die Fallstudie mit  $T_o = 202.2$  K, welche in Abschnitt 4.2.2 diskutiert wurde. Weiter wird die Sensitivität der Simulationen bezüglich des Depositionskoeffizienten von Wasserdampf auf Eis gezeigt.

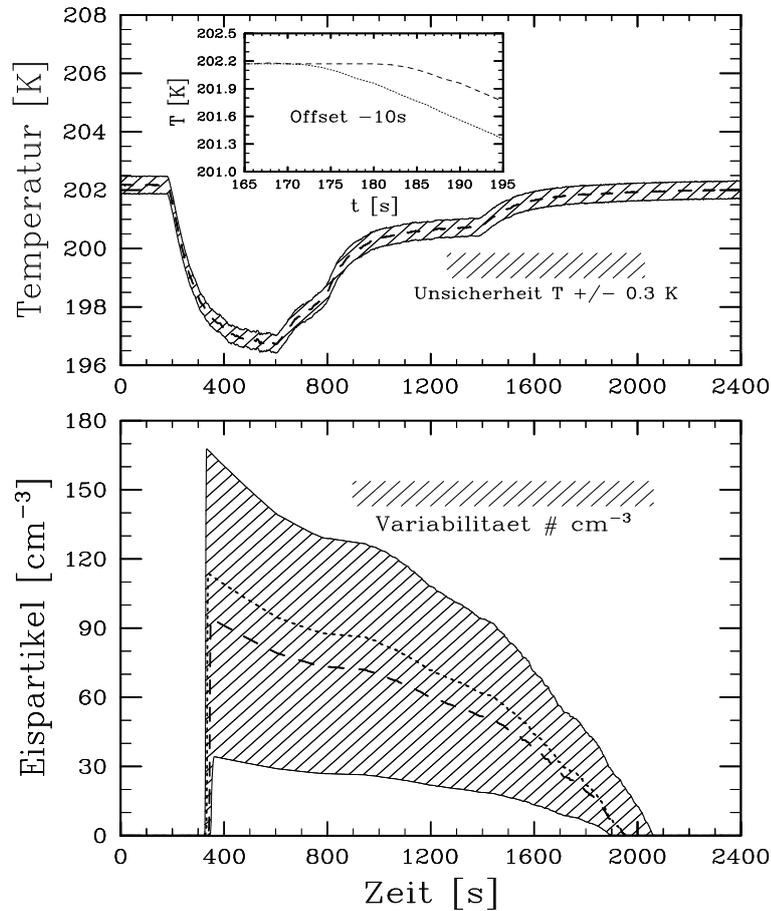
**Mischungsverhältnis Gesamtwasser** Das totale  $H_2O$ -Mischungsverhältnis dargestellt in Abb. 4.3 hat eine Genauigkeit von  $\pm 6$  %. Um zu zeigen, wie sehr diese experimentelle Unsicherheit die Modellsimulation bei 202 K beeinflusst, wurde eine Reihe von Simulationen durchgeführt, in denen die FISH-Werte entweder um maximal 10 % erhöht oder erniedrigt wurden. Die anderen Input-Größen blieben dabei unverändert. Diese Änderungen des  $H_2O$ -Mischungsverhältnisses um  $\pm 10$  % (siehe oberer Teil von Abb. 4.13) führen zu einer Variabilität der simulierten totalen Anzahl der Eispartikel von ca.  $\pm 80$  % (siehe unterer Teil von Abb. 4.13). Solange keine Eispartikel vorhanden sind, bewirken höhere oder niedrige Werte des Gesamtwassers direkt eine Erhöhung oder Verringerung der  $H_2O$ -Gasphasenkonzentration in den Simulationen, wodurch wiederum die kritische



**Abb. 4.13:** Variation der modellierten Eispartikelkonzentration bei einer Änderung der FISH-Messung von  $\pm 10\%$ . Die gestrichelten Kurven markieren die Originalwerte der Fallstudie diskutiert in Abschnitt 4.2.2.

Gefrierfeuchte früher oder später erreicht wird. Dies wird in Abb. 4.13 durch die deutlich unterschiedlichen Gefrierzeitpunkte ersichtlich.

Trotz der deutlichen Abhängigkeit der simulierten Eispartikelkonzentration von der FISH-Messung führt ein höherer (niedrigerer) FISH-Wert nicht zwangsläufig zu einer höheren (niedrigeren) Eispartikelkonzentration. Aufgrund der unterschiedlichen Nukleationszeitpunkte findet nämlich der Phasenübergang der Aerosole bei verschiedenen Temperaturen und Kühlraten statt. Dies hat wiederum Auswirkungen auf den eng begrenzten Bereich zwischen kritischer Gefrierfeuchte und maximaler Übersättigung. In Abschnitt 4.2.2 wurde bereits ausgeführt, daß die Anzahl der gebildeten Eispartikel aus der Kombination von Temperatur, Kühlrate und relativer Eisfeuchte rund um den Zeitpunkt der maximalen Eisübersättigung resultiert. So ergibt eine Simulation mit einer Erhöhung des FISH-Wertes um 2.5 % eine höhere Eispartikelkonzentration als eine Simulation mit einem FISH-Wert +5 % (nicht dargestellt in Abb. 4.13). Zusammen mit der gezeigten totalen Variabilität der simulierten Eispartikelkonzentration unterstreicht dies aber umso



**Abb. 4.14:** Variation der modellierten Eispartikelkonzentration aufgrund von Variationen der mittleren Gastemperatur um  $\pm 0.3$  K und aufgrund einer Verschiebung der Zeitskala der Temperaturmessung um -10 s (fein gestrichelte Kurve unten). Die grob gestrichelten Kurven markieren die Originalwerte der Fallstudie diskutiert in Abschnitt 4.2.2.

mehr die Wichtigkeit von möglichst genauen Messungen des H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnisses, wenn es gilt die Bildung von Zirren in der realen Atmosphäre zu simulieren.

**Temperatur** Boxmodellierungen wie die vorliegenden Simulationen der AIDA-Gefrierexperimente implizieren immer eine homogene Luftmasse. Tatsächlich liegen die Zeitskalen, auf denen die AIDA-Kammer thermisch durchmischt wird im Bereich von wenigen Sekunden, wodurch die Annahme eines homogenen Gasvolumens in den meisten Fällen auch erfüllt ist. Dennoch könnten die geringfügigen Temperaturinhomogenitäten in der Kammer den Gefrierprozeß beeinflussen.

Die Sensitivität der Modellsimulationen bezüglich der gemessenen mittleren Gastemperatur wurde auf zwei Arten untersucht. Erstens wurde in mehreren Simulationen die Temperatur um  $\pm 0.3$  K variiert, entsprechend der experimentellen Unsicherheit der Temperaturmessung aufgrund der möglichen Inhomogenitäten im Gasvolumen (siehe Tempe-

raturprofile im oberen Teil von Abb. 4.14). Zweitens wurde untersucht, welche Auswirkungen eine Verschiebung der Zeitachse der gemessenen Temperatur um  $-10$  s hat, d.h. die Kammerkühlung würde 10 s früher beginnen (siehe fein gestrichelte Kurve der kleinen Abb. innerhalb von Abb. 4.14). Die Zeitachse von Druck und  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis wird jedoch nicht verschoben. Dieser Offset bei der Temperaturmessung kommt durch eine gewisse Ansprechzeit der Thermoelemente zustande, welche sich abhängig vom Druck von ca. 3 s bei 1000 hPa auf ca. 10 s bei 180 hPa erhöht. Die gemessene Temperatur hinkt also der tatsächlichen Temperatur bei den Kammerkühlungen etwas hinterher.

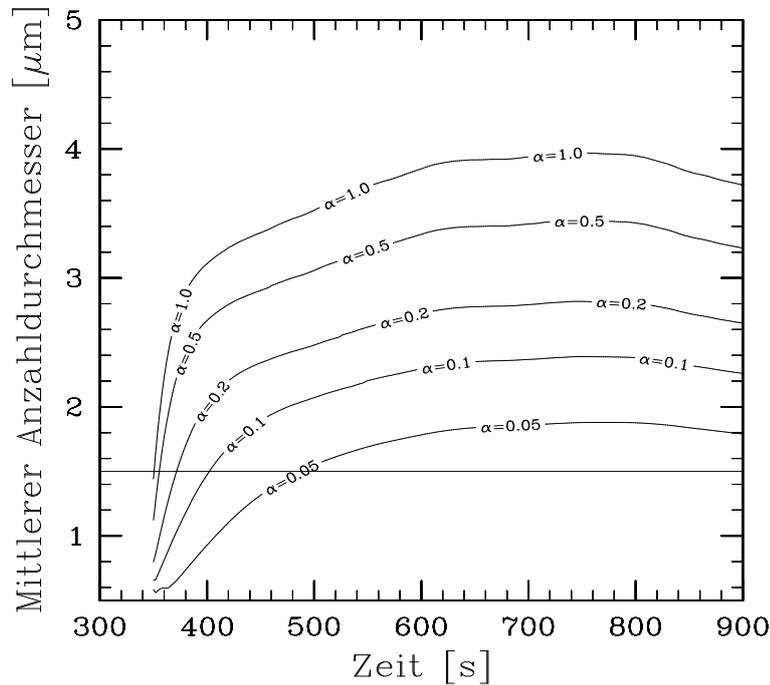
Die Variabilität der totalen Anzahlkonzentration der Eispartikel aufgrund angenommener Temperaturabweichungen von  $\pm 0.3$  K (siehe Abb. 4.14 unten) liegt in der selben Größenordnung wie die Unsicherheit der Eispartikelkonzentration zufolge von möglichen Fehlern bei den FISH-Daten. Ebenso führt ein angenommener Offset bei der Temperaturmessung zu einer deutlichen Abweichung der simulierten Eispartikelkonzentration vom Referenzfall mit der gemessenen Temperatur (siehe fein und grob gestrichelte Kurve in Abb. 4.14 unten).

**Tabelle 4.2:** Sensitivität der simulierten Eispartikelkonzentration  $n_{\text{ice}}$  für das Experiment bei  $T_o = 202.2$  K bezüglich des Depositionskoeffizienten  $\alpha$ .

| $\alpha$                                    | 0.05 | 0.1 | 0.2 | 0.5 | 1.0 |
|---|------|-----|-----|-----|-----|
| $n_{\text{ice}} [\text{cm}^{-3}]$           | 549  | 278 | 171 | 94  | 61  |
| $n(D_p > 1.5 \mu\text{m}) [\text{cm}^{-3}]$ | 482  | 264 | 168 | 93  | 61  |

**Depositionskoeffizient** Der Depositionskoeffizient  $\alpha$  von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen auf Eispartikel geht in die effektive Diffusionsrate von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen ein (Pruppacher und Klett, 1997). Im kinetischen Wachstumsregime ist die Massenwachstumsrate direkt proportional zu  $\alpha$ , im diffusiven Regime ist sie von  $\alpha$  unabhängig (siehe Abschnitt 2.1). In der oberen Troposphäre gilt das kinetische Regime typischerweise für sub-mikrometer große Partikel. In diesem Regime wird bei kleinen Werten von  $\alpha$  das anfängliche Wachstum von nukleierten Eispartikeln verlangsamt.

Unter sonst unveränderten Bedingungen können bei einem verlangsamteten Wachstum der frisch nukleierten Eispartikel insgesamt mehr Eispartikel gebildet werden, da der  $\text{H}_2\text{O}$ -Dampfdruck über eine längere Zeit erhöht bleibt. Aus Abb. 4.9 geht hervor, daß der mittlere Anzahlradius der frisch gefrorenen Eispartikel in der untersuchten Fallstudie bei  $0.5 \mu\text{m}$  liegt. Weiters ist der charakteristische Radius, welcher den Übergangsbereich zwischen kinetischem und diffusivem Wachstumsregime angibt, durch  $4\lambda/3\alpha$  gegeben. Mit einer mittleren freien Weglänge  $\lambda = 0.25 \mu\text{m}$  (Gleichung (2.5)) bei  $T = 200$  K und  $p = 180$  hPa und mit  $\alpha = 0.5$  erhält man für diesen Radius den Wert von  $\sim 0.7 \mu\text{m}$ , d.h. eine Sensitivität der Modellsimulation bezüglich unterschiedlicher Werte von  $\alpha$  kann erwartet werden.



**Abb. 4.15:** Zeitliche Entwicklung des modellierten mittleren Anzahldurchmessers unter der Annahme von verschiedenen Depositionskoeffizienten  $\alpha$  von Wasserdampf auf Eis. Die Linie bei  $1.5 \mu\text{m}$  markiert die Detektionsgrenze des optischen Partikelzählers in der AIDA-Kammer.

Tabelle 4.2 zeigt die simulierte totale Anzahlkonzentration der Eispartikel unter der Annahme von unterschiedlichen Werten von  $\alpha$ . Wie erwartet erhöht sich die Anzahl der gebildeten Eispartikel mit abnehmenden Werten von  $\alpha$ . Bei Werten von  $\alpha < 0.2$  ändert sich die Eispartikelkonzentration um mehr als einen Faktor 2. Bei höheren Werten ist die Sensitivität weniger stark ausgeprägt. Dieses Verhalten wurde auch bei anderen Studien gefunden (Lin et al., 2002).

In Abschnitt 4.2.2 wurde erwähnt, daß bei den Kammermessungen der Eispartikelkonzentration der optische Partikelzähler nur Eispartikel mit einem Durchmesser  $> 1.5 \mu\text{m}$  zählt. Untersucht man die Abhängigkeit der Eispartikelkonzentration von  $\alpha$  nur für Partikel  $> 1.5 \mu\text{m}$ , findet man den selben Trend wie ohne Anwendung dieses Kriteriums (3 Zeile in Tab. 4.2). Jedoch ist bei sehr kleinen Werten von  $\alpha$  die Partikelkonzentration oberhalb  $1.5 \mu\text{m}$  etwas geringer als die totale Eispartikelkonzentration, da ein Teil der Partikel nicht mehr über dieses Limit hinauswächst. Die mittlere Größe der Eispartikel nimmt mit kleinerem  $\alpha$  ab, weil der verfügbare Wasserdampf auf mehr Eispartikel verteilt wird. Dies wird anhand von Abb. 4.15 verdeutlicht, ebenso wie das langsamere Wachstum der Eispartikel bei abnehmenden Werten von  $\alpha$ . Dennoch wachsen mit Ausnahme des Falles  $\alpha = 0.5$  die Eispartikel im Mittel sehr schnell über die Detektionsgrenze des optischen Partikelzählers hinaus.

Wäre der Depositionskoeffizient die einzig unsichere Größe in den Simulationen, könnte allein durch die Annahme von unterschiedlichen Werten von  $\alpha$  zwischen den Grenzen

**Tabelle 4.3:** Sensitivität der simulierten Eispartikelkonzentration  $n_{\text{ice}}$  bezüglich der geometrischen Standardabweichung  $\sigma$  der Anfangsgrößenverteilung des Aerosols.

| $\sigma$                          | 1.3 | 1.5 | 1.75 | 2.0 |
|-----------------------------------|-----|-----|------|-----|
| $n_{\text{ice}} [\text{cm}^{-3}]$ | 74  | 53  | 94   | 74  |

0.2 und 1 eine bessere Übereinstimmung zwischen modellierten und gemessenen Eispartikelkonzentrationen erzielt werden (vergleiche Tab. 4.1 mit Tab. 4.2). Auf der anderen Seite konnte bei einer Modellsimulation des Experimentes mit  $T_o = 202.2$  K bei einer Annahme von  $\alpha = 0.05$  keine Kombination von Temperatur und  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis innerhalb deren Fehlergrenzen gefunden werden, die die simulierte Eispartikelkonzentration in Übereinstimmung mit der Messung bringt. Aus diesem Grund wird anhand der vorliegenden Analyse der Gebrauch von Werten  $\alpha < 0.2$  nicht unterstützt.

**Aerosolgrößenverteilung** In Bezug auf die totale Anzahl der gebildeten Eispartikel wird die Aerosolgrößenverteilung vor allem dann von Bedeutung, wenn der Gefrierprozeß sehr schnell im Vergleich zum anschließenden Depositionswachstum der Eispartikel ist (Kärcher und Lohmann, 2002). Dieses Regime, schnelles Gefrieren und langsames Wachstum, gilt für alle simulierten Gefrierexperimente zusammengefaßt in Tab. 4.1, weshalb in den Simulationen Aerosolgrößeneffekte beim Gefrierprozeß eine Rolle spielen.

Um den Einfluß der Anfangsgrößenverteilung des Aerosols auf die simulierte Anzahlkonzentration der Eispartikel zu untersuchen, wurde die geometrische Standardabweichung  $\sigma$  variiert (siehe Abb. 4.4). Das Ergebnis kann Tab. 4.3 entnommen werden. Bei der Fallstudie mit  $T_o = 202.2$  K wurde der Wert  $\sigma = 1.75$  verwendet. Die Annahme einer breiteren oder schmälere Aerosolverteilung führt zu einer Variabilität der Eispartikelkonzentration die weit kleiner ist als die experimentelle Unsicherheit der Messung. In Übereinstimmung mit Kärcher und Lohmann (2002) ist deshalb bei den vorliegenden Simulationen die Aerosolgrößenverteilung von untergeordneter Bedeutung im Vergleich zu Unsicherheiten bei der Temperatur und der Feuchte.

## 4.3 Kurzzusammenfassung

Folgende Ergebnisse der numerischen Simulationen von AIDA-Gefrierexperimenten lassen sich zusammenfassen:

- Die berechneten kritischen Gefrierfeuchten, die Gefrierzeitpunkte und die Eispartikelkonzentrationen stimmen sehr gut mit den Kammermessungen überein.
- Anhand von Sensitivitätsstudien wurde gezeigt, daß die totale Anzahl der gebildeten Eispartikel sehr sensitiv durch Variationen der Temperatur und des  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnisses ist, d.h. stark von der relativen Feuchte kontrolliert wird.

Demgegenüber spielt die Aerosolgrößenverteilung eine untergeordnete Rolle. Weiter wird der Gebrauch von Werten  $< 0.2$  für den Depositionskoeffizienten  $\alpha$  von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen auf Eispartikel nicht unterstützt.

- Die gute Übereinstimmung zwischen Kammermessungen und Modellsimulationen zeigt, daß die Aktivitätsparametrisierung von Koop et al. (2000) für homogenes Gefrieren von unterkühlten Lösungstropfen sehr gut zur Simulation dieses Prozesses bei der Zirrusbildung in der realen Atmosphäre angewandt werden kann.
- Bei polydispersen Aerosolen und bei starken Kühlraten in der realen Atmosphäre müssen jedoch Abweichungen der kritischen Gefrierfeuchten von den entsprechenden parametrisierten Werten (siehe Abb. 2.2) erwartet werden, da diese Werte für monodisperse Tropfen im Gleichgewicht mit der  $\text{H}_2\text{O}$ -Gasphase bestimmt wurden.

# Kapitel 5

## Statistik der relativen Feuchte

### 5.1 Häufigkeitsverteilung der relativen Feuchte

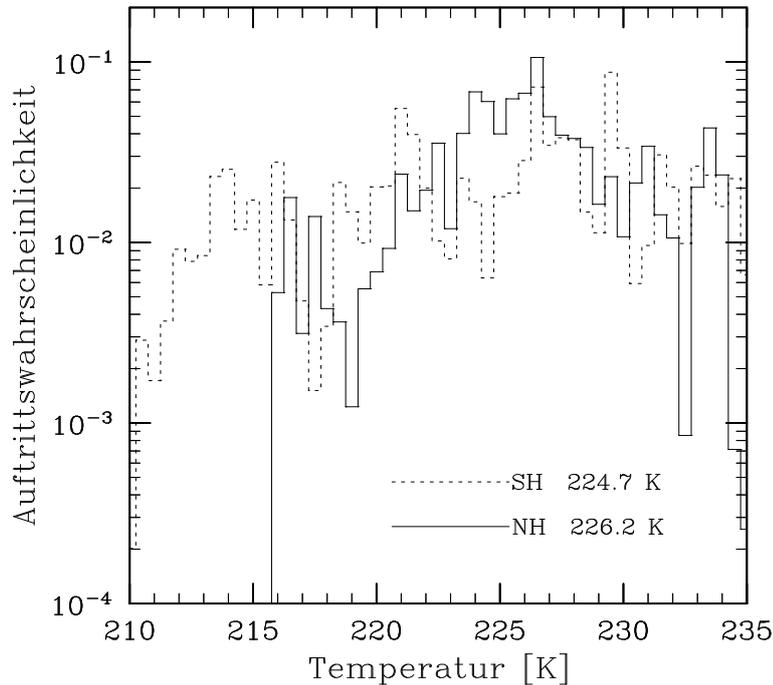
Jüngere *in-situ*-Messungen von Wasserdampf und Temperatur in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre haben gezeigt, daß dort relative Feuchten gefunden werden, die häufig weit oberhalb der Eissättigung liegen (z.B. Jensen et al., 2001). Dies hat wiederum große Bedeutung für die Bildung und Persistenz von Zirren im Bereich der Tropopause. Die Beobachtungen zeigen weiter, daß in eisübersättigten Gebieten die Wahrscheinlichkeit einen bestimmten Wert der relativen Feuchte zu finden, quasi-exponentiell abnimmt (Gierens et al., 1999; Spichtinger et al., 2002).

In diesem Abschnitt werden Verteilungen der relativen Eisfeuchte RHI gezeigt, die mit Hilfe von mikrophysikalischen Simulationen entlang von atmosphärischen Trajektorien bestimmt wurden. Durch Annahme von unterschiedlichen Gefrierprozessen im mikrophysikalischen Modell wird der Einfluß dieser Prozesse auf die Feuchteverteilungen untersucht. Im speziellen werden jene Faktoren untersucht, die die Steigung und den “Cut-off” (höchstvorkommende Feuchtwerte) der Verteilungen kontrollieren, und es wird der Zusammenhang zwischen diesen Verteilungen und der Bildung von Zirren hergestellt.

#### 5.1.1 Kontrollierende Faktoren

Es wurde bereits erwähnt, daß die gemessenen Feuchteverteilungen einen näherungsweise exponentiellen Abfall zu hohen eisübersättigten Werten hin aufweisen. Dabei stellt sich die grundlegende Frage, von welchen Faktoren atmosphärische Feuchteverteilungen kontrolliert werden. Kärcher und Haag (2003) haben zu diesem Zweck verschiedene Verteilungen der Temperatur und des Wasserdampfpartialdruckes angenommen, und die aus diesen Verteilungen resultierenden Feuchteverteilungen ermittelt. Dabei wurde die Auftrittswahrscheinlichkeit von Eisübersättigungen mit Hilfe des Sättigungsverhältnisses in Bezug auf Eis

$$S = \frac{\text{RHI}}{100\%} = \frac{p_{\infty,w}}{p_{\text{sat},i}(T)} = \frac{\chi P}{p_{\text{sat},i}(T)} \quad (5.1)$$



**Abb. 5.1:** Gemessene Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Temperatur für die INCA-Kampagnen in Punta Arenas (SH, gestrichelte Kurve) und in Prestwick (NH, durchgezogene Kurve), zusammen mit den mittleren Temperaturen während dieser Kampagnen in der Legende. In den Verteilungen sind alle Temperaturwerte  $< 235$  K enthalten. Die einzelnen Temperaturwerte wurden auf 0.5 K - Intervalle aufgeteilt.

berechnet, wobei hier  $p_{\infty,w}$  der Partialdruck des Wasserdampfes ist,  $p_{\text{sat},i}$  ist der  $\text{H}_2\text{O}$ -Sättigungsdampfdruck über Eis nach Marti und Mauersberger (1993),  $\chi$  ist das  $\text{H}_2\text{O}$ -Volumenmischungsverhältnis und  $p$  der Luftdruck. Durch Annahme von bestimmten Wahrscheinlichkeitsverteilungen für  $p_{\infty,w}$  bzw.  $\chi$  und für die Temperatur  $T$  kann dann die entsprechende Wahrscheinlichkeitsverteilung für  $S$  mit Hilfe von (5.1) berechnet werden. Der Einfluß einer möglichen Bildung von Zirren auf die Feuchteverteilungen wird jedoch dabei nicht berücksichtigt.

Diese simple Methode wird hier auf *in-situ*-Messungen von Wasserdampf und Temperatur während des Forschungsprojektes INCA angewendet. Während INCA wurden zwei Feldmeßkampagnen durchgeführt: Eine in den mittleren Breiten auf der Südhalbkugel (SH) nahe Punta Arenas ( $53^\circ\text{S}$ , Chile), eine in den mittleren Breiten auf der Nordhalbkugel (NH) nahe Prestwick ( $55^\circ\text{N}$ , Schottland). Abbildung 5.1 zeigt die Temperaturverteilungen während dieser Flugmeßkampagnen. Die Verteilungen sind sehr ähnlich, mit einer mittleren Temperatur  $\bar{T}$  von 224.7 K im Fall SH und 226.2 K im Fall NH. Die ermittelten Standardabweichungen  $\sigma_T$  der Temperaturverteilungen betragen 6.2 K (SH) und 3.9 K (NH). Die gemessenen Minimumtemperaturen lagen bei  $\sim 210$  K (SH) und  $\sim 216$  K (NH), jedoch war die Auftretswahrscheinlichkeit für diese niedrigen Temperaturen sehr gering. Die vorliegende Analyse soll sich auf das Gebiet der reinen Eiswolken in den oberen

Troposphäre und unteren Stratosphäre beschränken, weshalb nur Temperaturen  $< 235$  K berücksichtigt wurden.

Mit Hilfe dieser gemessenen Temperaturen wurden nun RHI-Verteilungen für die Fälle SH und NH ermittelt, indem ein konstanter mittlerer H<sub>2</sub>O-Partialdruck  $\bar{p}_{\infty,w}$  angenommen wurde. Änderungen des H<sub>2</sub>O-Partialdruckes durch trockenadiabatische Temperaturänderungen wurden jedoch zugelassen:

$$p_{\infty,w} = \bar{p}_{\infty,w} \left( \frac{T}{\bar{T}} \right)^{3.5} . \quad (5.2)$$

Dieser Partialdruck des Wasserdampfes wird in Gleichung (5.1) eingesetzt und RHI bestimmt. Der mittlere Partialdruck  $\bar{p}_{\infty,w}$  wurde mit Hilfe der mittleren gemessenen Eisfeuchten  $\overline{\text{RHI}}$  bestimmt. Diese betragen  $\sim 85$  % (SH) und  $\sim 75$  % (NH) (Ovarlez et al., 2002). Die schwarze Kurve in Abb. 5.2 zeigt die resultierende Wahrscheinlichkeitsverteilung für RHI. Die einzelnen RHI-Werte wurden in 4 % - Intervalle verteilt. Es zeigt sich ein Abfall der Kurven weit hinein in den eisübersättigten Bereich. Dabei ist die Wahrscheinlichkeit für hohe Eisübersättigungen im Fall SH etwas größer als im Fall NH.

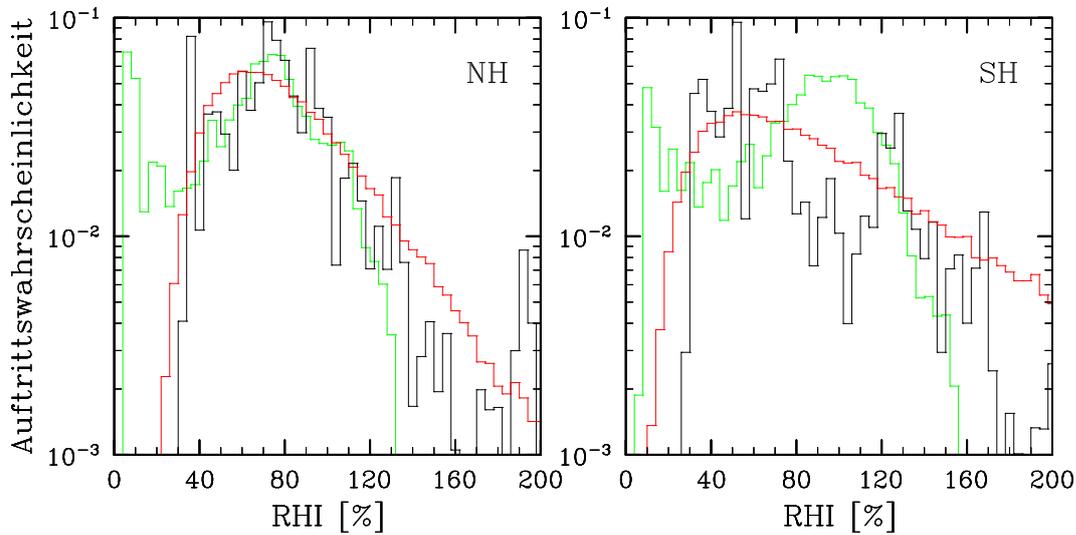
Zieht man zur Bestimmung der Feuchteverteilung nicht die einzelnen gemessenen Temperaturwerte heran, sondern legt eine Gauß'sche Normalverteilung der Temperatur  $f(T)$  zugrunde,

$$f(T) = \frac{1}{\sigma_T \sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{(T - \bar{T})^2}{2\sigma_T^2} \right] , \quad (5.3)$$

wobei die Parameter  $\bar{T}$  und  $\sigma_T$  (Werte siehe oben) aus den Temperaturmessungen abgeleitet werden, dann ergeben sich als resultierende Feuchteverteilungen die roten Kurven in Abb. 5.2. Die angenommene Gaußverteilung der Temperatur führt bereits zu einer guten Übereinstimmung der Feuchteverteilungen mit den Verteilungen auf Grundlage der beobachteten Temperaturen (schwarze Kurven), vor allem im NH-Fall. Im Fall SH ist die rote Verteilung aber deutlich breiter als die schwarze. Grund für diese Abweichungen von den schwarzen Kurven ist die Tatsache, daß die gemessenen Temperaturen nicht exakt normalverteilt sind, speziell im Fall SH. Eine etwas bessere Übereinstimmung mit den schwarzen Verteilungen kann erzielt werden, wenn zusätzlich zur Temperatur noch die Wasserdampfkonzentration  $p_{\infty,w}$  variiert und normalverteilt wird (hier nicht gezeigt).

Generell gilt, daß die Wahrscheinlichkeitsverteilungen von RHI aufgrund der exponentiellen Temperaturabhängigkeit in  $p_{\text{sat},i}$  durch die Variabilität von  $T$  aufgrund von Vertikalbewegungen von atmosphärischen Luftpaketen dominiert werden (Kärcher und Haag, 2003). Die Variabilität der Wasserdampfkonzentration ist von geringerer Bedeutung. Wie hier mit Hilfe der schwarzen und roten Kurven in Abb. 5.2 gezeigt wird, reicht alleine die Variabilität der Temperatur aus, um sehr hohe Eisübersättigungen, welche zur Bildung von Zirren benötigt werden, zu erzeugen.

Die grünen Kurven in Abb. 5.2 entsprechen den wirklich während der beiden INCA-Kampagnen gemessenen Eisfeuchten außerhalb von Zirren, ermittelt mit Hilfe von *in-situ*-Messungen von Temperatur und H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnis (siehe Abschnitt 5.2). Diese



**Abb. 5.2:** Auftretswahrscheinlichkeit von RHI für die INCA-Kampagne in Prestwick (NH, linke Abb.), und für die Messungen in Punta Arenas (SH, rechte Abb.). Die schwarzen Kurven resultieren aus den gemessenen Temperaturen (siehe Abb. 5.1). Die roten Kurven gelten für eine Normalverteilung der Temperatur, mit den Parametern  $\bar{T}$  und  $\sigma_T$  abgeleitet aus den Messungen. Die grünen Kurven resultieren direkt aus den INCA-Messungen für die relative Eisfeuchte außerhalb von Zirren (siehe Abschnitt 5.2).

Verteilungen zeigen eine trockene Mode bei  $\text{RHI} \simeq 5\text{--}10\%$  und eine feuchte Mode nahe der beobachteten mittleren Feuchten  $\overline{\text{RHI}}$  (siehe oben). Die trockenen Moden rühren wahrscheinlich von sehr trockenen Luftmassen stratosphärischen Ursprungs her mit geringem Einfluß auf die gesamte Feuchteverteilung, da diese sehr rasch im untersättigten Bereich abfallen.

Im Fall NH wird die feuchte Mode der beobachteten RHI-Verteilung (grüne Kurve) sehr gut durch die schwarze Verteilung wiedergegeben. Der wesentliche Unterschied ist aber, daß bei der Beobachtung in wolkenfreien Gebieten keine Werte oberhalb von  $\sim 130\%$  auftreten. Im Fall SH findet sich die gemessene feuchte Mode bei deutlich höheren RHI-Werten als bei der schwarzen Verteilung, ebenso wie im Fall NH zeigt sich aber auch hier im Vergleich zur schwarzen Verteilung ein Abschneiden der Feuchteverteilung bei einem bestimmten Maximalwert (bei  $\sim 155\%$ ). Dieser Unterschied zwischen den beobachteten und den mit Gleichung (5.1) berechneten Verteilungen ist auf den Einfluß der Zirrusbildung auf die Feuchteverteilungen zurückzuführen. Darauf wird in den Abschnitten 5.1.3 und 5.2.2 noch ausführlich eingegangen werden.

Die für die nachfolgenden INCA-Analysen wesentliche Aussage ist hier, daß die Temperaturvariabilität während der INCA-Kampagnen ausreichend war, damit Eisfeuchten weit über den typischen Gefrierfeuchten für homogenes und heterogenes Gefrieren generiert werden können, wenn von einer möglichen Bildung von Zirren zunächst abgesehen wird.

### 5.1.2 Trajektorien und mikrophysikalische Simulationen

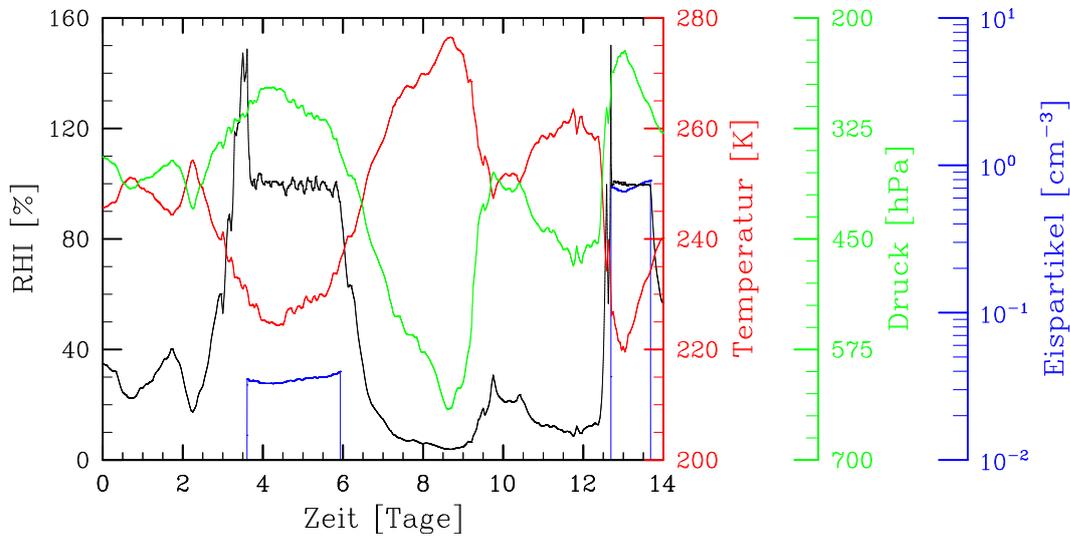
Die Trajektorien, welche den Modellsimulationen in diesem Kapitel zugrunde liegen, wurden mit dem Trajektorienmodell FLEXTRA berechnet (Stohl und Seibert, 1998). Das Modell wurde mit operationellen ECMWF-Daten betrieben. Zum Zeitpunkt der Simulationen hatte das operationelle ECMWF-Modell eine spektrale Auflösung von T511 und 60 vertikale Modellflächen. Als FLEXTRA-Inputdaten dienten Analysedaten in 6-stündiger Abfolge (0, 6, 12 und 18 UTC), und dazwischen 3-stündige Vorhersagedaten (“first guess” um 3, 9, 15 und 21 UTC) um eine möglichst hohe zeitliche Auflösung der ECMWF-Felder zu gewährleisten. Die ECMWF-Daten lagen global auf einem Längen-Breiten-Gitter mit 1° Gitterpunktsdistanz vor. Im Gebiet zwischen 120°W–30°E und 18°N–66°N standen die Daten in höherer Auflösung zur Verfügung (0.5° Gitterpunktsdistanz).

Die Trajektorien wurden in der Horizontalen auf einem regelmäßigen Startgitter (1° Längen-Breiten-Gitter) zwischen 120°W–30°E und 25°N–65°N gestartet, in der Vertikalen alle 30 hPa zwischen 150 hPa und 450 hPa. Gerechnet wurden 14-tägige Rückwärts-trajektorien, wobei alle Trajektorien zum selben Termin (28. November 2001, 18 UTC) starten. Entlang der Trajektorien wurden die Größen wie Temperatur, Druck und spezifische Feuchte mit einer zeitlichen Auflösung von 1 Stunde abgespeichert. Bei den mikrophysikalischen Simulationen (siehe unten) wurden diese Input-Daten dann zwischen zwei Ausgabeterminen linear interpoliert.

Subskalige Prozesse, wie die Aktivität von mesoskaligen Schwerewellen oder Konvektion, sind auf den FLEXTRA-Trajektorien nicht explizit berücksichtigt. Diese Prozesse werden von den FLEXTRA-Simulationen nur in dem Ausmaß wiedergespiegelt, wie sie von den ECMWF-Windfeldern wiedergegeben werden. Da das ECMWF-Modell diese Prozesse aber nur unzureichend auflöst, wird im allgemeinen die mesoskalige Variabilität der Temperatur auf den FLEXTRA-Trajektorien unterschätzt. Diese Unterschätzung ist für die Untersuchungen in diesem Kapitel bedeutungslos, wird aber in Kapitel 6 wieder aufgegriffen.

Wie bereits oben erwähnt, bildeten diese Trajektorien die Grundlage für die mikrophysikalischen Simulationen. Zum Einsatz kam dabei das Modell APSC, welches bereits für die Simulationen in Kapitel 4 verwendet wurde. Das Modell wurde mit einer totalen Anzahlkonzentration von  $390 \text{ cm}^{-3}$  Aerosolpartikeln initialisiert. Der trockene Massen-Medianradius der Größenverteilung  $r_m$  betrug dabei 50 nm, für die geometrische Standardabweichung  $\sigma$  wurde ein Wert von 1.8 angenommen. Dies sind typische Werte für Aerosolpartikel in der Akkumulationsmode, wie sie in der oberen Troposphäre gemessen werden (z.B. Schröder et al., 2002).

Zwei unterschiedliche Simulationen bezüglich der Aerosolpartikel wurden durchgeführt: In einer Simulation bestand das obige Aerosolspektrum aus binären  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen, welche homogen entsprechend Koop et al. (2000) gefrieren, in einer zweiten Simulation wurde heterogenes Gefrieren von festen Gefrierkernen (IN) bei einem vorgeschriebenen kritischen Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis von  $S_{cr}^{het} = 1.3$  berechnet. Die heterogene Gefrierfeuchte kann zwischen  $\text{RHI} = 100 \%$  und Sättigung in Bezug auf Flüssigwasser variieren (Kärcher und Lohmann, 2003). Die spezielle Wahl von 130 %



**Abb. 5.3:** Mikrophysikalische Simulation entlang einer ausgewählten Trajektorie.

wurde hier durch *in-situ*-Messungen motiviert, welche schon in Abschnitt 5.1.1 diskutiert wurden. Zur Berechnung der heterogenen Nukleationsraten wurde die Parametrisierung von Kärcher und Lohmann (2003) verwendet (siehe Abschnitt 2.4).

Im APSC-Modell wurde mit einem flexiblen Zeitschritt  $\Delta t$  gerechnet. In Abwesenheit von Eispartikeln betrug bis zu einem Feuchtwert von  $\text{RHI} = 125\%$  der Zeitschritt 120 s. Bei Feuchten über 125 % wurde  $\Delta t$  auf 2 s verringert, da im Nahbereich der kritischen Gefrierfeuchten der Zeitschritt verkleinert werden muß. Die Gefrierprozesse selbst wurden möglichst exakt mit  $\Delta t = 0.25$  s simuliert. Nach der Bildung von Zirren auf den Trajektorien wurde ein Zeitschritt von 20 s innerhalb der Zirren verwendet. Diese Wahl von verschiedenen Zeitschritten hielt einerseits die Rechenzeit entlang der Trajektorien so klein wie möglich, so daß insgesamt viele Tausend Trajektorien betrachtet werden konnten. Andererseits wurden die Wachstums- und Gefrierprozesse immer noch exakt genug aufgelöst. Der APSC-Output, wie etwa die simulierte relative Feuchte, wurde entlang der Trajektorien in einer Auflösung von 120 s abgespeichert.

Abbildung 5.3 zeigt eine APSC-Simulation mit homogenem Gefrieren entlang von einer typischen, synoptisch-skaligen FLEXTRA-Trajektorie. Die erste Eiswolkenbildung (blaue Kurve) findet bei einer Temperatur (rote Kurve) nahe 230 K nach ca. 3 Tagen statt. Aufgrund der gemäßigten Kühlrate beträgt in diesem Fall die Eispartikelkonzentration nur ca.  $0.03 \text{ cm}^{-3}$ . Die maximale Eisfeuchte (siehe schwarze Kurve) von knapp 150 % bei der Wolkenbildung wird durch das Eispartikelwachstum rasch abgebaut und die relative Feuchte verbleibt für die restliche Lebensdauer der Wolke nahe Eissättigung. Knapp vor Beginn von Tag 6 verdampft die Wolke durch die Temperaturzunahme in der absinkenden Luftmasse. Am zwölften Simulationstag steigt die Trajektorie wieder sehr schnell in höhere Luftschichten, wodurch es zu einer zweiten Wolkenbildung kommt. Die schnellere Kühlung ermöglicht eine höhere Eispartikelkonzentration als im ersten Fall.

Kritisch anzumerken ist hier, daß bei diesen Simulationen entlang der Trajektorien das

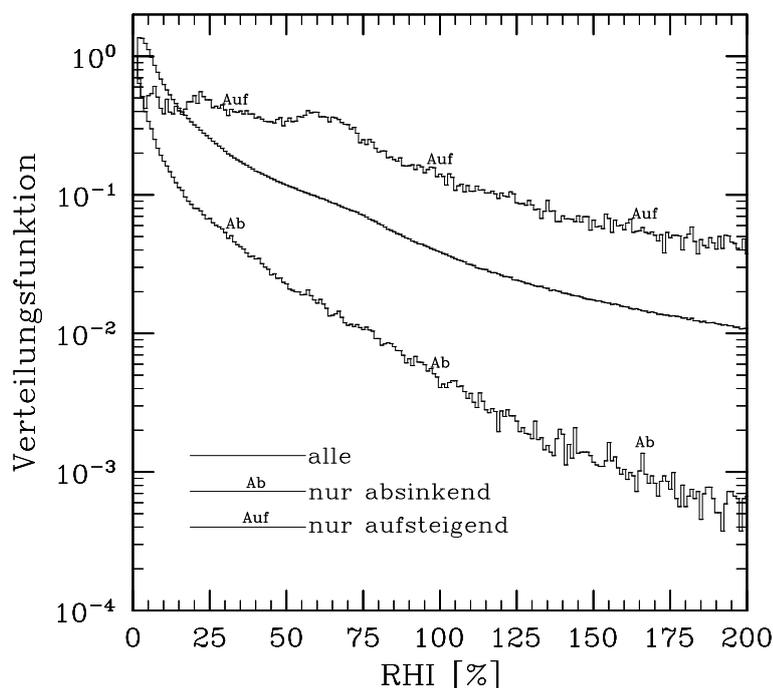
anfänglich initialisierte  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis konstant gehalten wurde. Weiter wurde die Sedimentation von großen Eiskristallen nicht berücksichtigt. Dies führt möglicherweise zu einer Überschätzung der Auftrittshäufigkeit und der Lebensdauer der Zirren in den Simulationen. Auf der anderen Seite wäre es aber nicht möglich, die Zirrusbildung mit dem APSC-Modell zu simulieren, wenn das  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis im Modell immer neu initialisiert wird, entsprechend der vorgegebenen Werte der spezifischen Feuchte auf den ECMWF-Trajektorien. Grund dafür ist die Tatsache, daß das ECMWF-Modell keine Eisübersättigungen zuläßt, sondern Zirruswolken in der oberen Troposphäre bereits bei relativen Eisfeuchten von 100 % künstlich bildet (Tiedke, 1993). Würde man daher immer die aktuelle ECMWF-Feuchte im APSC-Modell verwenden, dann könnte in den Simulationen nie ein Gefrierprozeß oberhalb der Eissättigung initiiert werden. Die Überschätzung der Zirrenhäufigkeit in den vorliegenden Simulationen hat aber keinen Einfluß auf die Schlußfolgerungen, die mit Hilfe der Feuchteverteilungen aus diesem Kapitel gezogen werden. Auf dieses Problem mit der Handhabung der ECMWF-Feuchte wird in Kapitel 6 aber noch einmal eingegangen werden.

### 5.1.3 Zusammenhang zwischen relativer Feuchte und der Bildung von Zirren

Nachfolgend werden die Hauptmerkmale der RHI-Verteilungen herausgearbeitet, die mit Hilfe der Simulationen entlang der ECMWF-Trajektorien ermittelt wurden, und es wird der Zusammenhang dieser Verteilungen mit der Bildung von Zirren hergestellt werden. Dabei sind die wesentlichen Merkmale dieser Feuchteverteilungen unabhängig vom räumlichen Gebiet der Trajektorien und der Zeit. Weiter sind sie unabhängig von Details der Mikrophysik in den simulierten Zirruswolken.

**Feuchteverteilung ohne Zirrusbildung** Abbildung 5.4 zeigt jene Feuchteverteilungen, die man mit Hilfe der FLEXTRA-Trajektorien erhält, wenn die Mikrophysik zunächst vernachlässigt wird. Diese Verteilungen wurden ermittelt, indem bei konstantem  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis die Eisfeuchte entlang der Trajektorien mit der jeweiligen Temperatur und dem Druck auf den Trajektorien berechnet wurde. Es handelt sich hier um den reinen Advektions- oder Transportfall, bei dem die Feuchte nur durch den atmosphärischen Transport kontrolliert wird. Die Bildung von Zirren, ähnlich wie in Abschnitt 5.1.1, ist hier nicht enthalten.

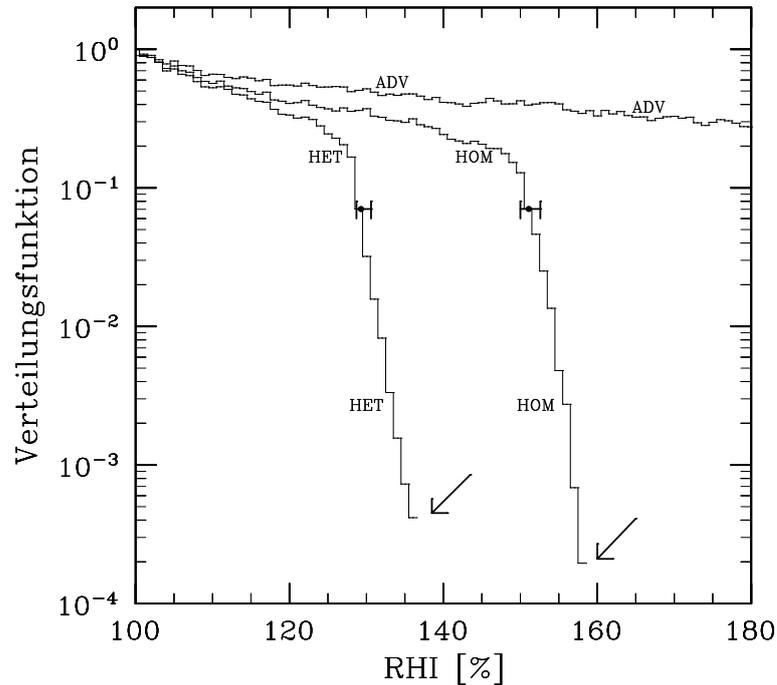
Bei der mittleren Verteilung in Abb. 5.4 wurde die Gesamtzahl der zur Verfügung stehenden Trajektorien verwendet (66440 Trajektorien). Die obere Verteilung resultiert aus einer Untergruppe von Trajektorien (541 Trajektorien), welche nur aufsteigende Luftmassen repräsentieren. Demgegenüber repräsentiert die untere Verteilung (838 Trajektorien) nur absinkende Luftmassen. Das Kriterium bei der Auswahl dieser Untergruppen war eine vertikale Distanz zwischen den Start- und Endpunkten auf den einzelnen Trajektorien von mindestens 200 hPa. Die aufsteigenden Luftmassen stammen aus Regionen zwischen 390 hPa und 450 hPa. Die absinkenden Luftmassen stammen aus der Tropopausenregion zwischen 150 hPa und 210 hPa.



**Abb. 5.4:** Verteilungen der relativen Eiseuchte berechnet entlang der ECMWF-Trajektorien unter Vernachlässigung der Mikrophysik. Die mittlere Verteilung resultiert aus der Gesamtzahl der Trajektorien. Die untere (obere) Verteilung repräsentiert ausschließlich absinkende (aufsteigende) Luftmassen. In den Verteilungen wurden die einzelnen RHI-Werte in 1 %- Feuchtebins verteilt. Für die Vergleichbarkeit wurden die Verteilungen mit der Anzahl der Feuchtwerte im jeweiligen 1 %- Bin normiert.

Im Fall von aufsteigenden Luftmassen mit relativ hohen anfänglichen  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnissen in niedrigen Höhen führt die Kühlung der Luft zur Generierung von sehr hohen RHI-Werten. Auf der anderen Seite trocknen ursprünglich schon sehr trockene Luftmassen im Bereich der Tropopause noch mehr aus, wenn sie bei zunehmender Temperatur in niedrigere, wärmere Luftschichten absinken. Dadurch wird die Auftrittshäufigkeit von Eisübersättigungen stark vermindert.

Alle Kurven in Abb. 5.4 zeigen einen Abfall bei RHI-Werten über Eissättigung. Die Verteilung in den absinkenden Luftmassen zeigt dabei einen sehr schnellen quasi-exponentiellen Abfall bereits im untersättigten Bereich ab Feuchtwerten von ca. 50 %. Geht man von absinkenden auf aufsteigende Luftmassen über, nimmt die Steigung der Feuchteverteilung stark ab. Dies unterstreicht hier die Wichtigkeit von Vertikalbewegungen in der Atmosphäre zur Generierung von Übersättigungen. Die Tatsache, daß sich die Steigungen der mittleren und der oberen Verteilung bei Feuchten über 100 % kaum unterscheiden, zeigt weiter, daß die Wahrscheinlichkeit einen bestimmten übersättigten Wert aus der Gesamtzahl der Feuchtwerte zu finden, hauptsächlich durch die aufsteigenden Trajektorien kontrolliert wird.



**Abb. 5.5:** Verteilungen der relativen Eisfeuchte außerhalb von Zirren in der Schicht zwischen 150–300 hPa, abgeleitet aus kombinierten FLEXTRA/APSC-Simulationen mit homogenem Gefrieren (HOM) oder heterogenem Gefrieren (HET). Die Kurve ADV ist die RHI-Verteilung ohne Zirrusbildung. Auf den Kurven HOM und HET markieren die Punkte bzw. die horizontalen Balken die Mediane der kritischen Gefrierfeuchten zusammen mit dem 1. und 3. Quartil. Die Pfeile kennzeichnen den Cut-off der Verteilungen. Bei allen Verteilungen wurden 1 %- Feuchtebins angenommen und die Verteilungen wurden durch die jeweilige Anzahl der Punkte im 100 %-Bin normiert.

**Feuchteverteilung mit Zirrusbildung** Um den Einfluß der Zirrusbildung auf die Feuchteverteilungen zu untersuchen, wurde entweder ausschließlich homogenes oder ausschließlich heterogenes Gefrieren entlang der Trajektorien simuliert. Das Ergebnis der kombinierten FLEXTRA/APSC-Simulationen ist in Abb. 5.5 dargestellt. Die Abbildung zeigt die Feuchteverteilungen im eisübersättigten Bereich in wolkenfreien Gebieten. Als Kriterium für Gebiete außerhalb von Zirren wurde hier eine Eispartikelkonzentration von  $n_{\text{ice}} < 0.001 \text{ cm}^{-3}$  angenommen.

Wie in Abschnitt 5.1.2 bereits ausgeführt wurde, wurde im homogenen Modellfall (als “HOM” bezeichnet) Wachstum und homogenes Gefrieren von unterkühlten  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen simuliert. Im zweiten Fall mit heterogenem Gefrieren (“HET”) gefriert dasselbe Größenspektrum von festen Gefrierkernen bei einer vorgeschriebenen kritischen Gefrierfeuchte von 130 %. Um die Simulationen in einem vernünftigen Zeitrahmen durchführen zu können, wurde die Zahl der untersuchten Trajektorien um einen Faktor 20 reduziert, und die APSC-Läufe auf 3320 Trajektorien beschränkt. Da nur die Bildung von kalten Zirren ohne Flüssigwasseraktivierungen untersucht werden sollte, beschränkte sich die Auswertung der Feuchtedaten auf Punkte mit Temperaturen  $T < 235 \text{ K}$  (analog zur

Studie in Abschnitt 5.1.1) und relativen Feuchten  $RH < 100\%$  in der vertikalen Schicht zwischen 150 hPa und 300 hPa.

Zum Vergleich mit den Resultaten mit Zirrusbildung wurde entlang dieser ausgewählten Trajektorien auch die Feuchte ohne Zirrusbildung ausgewertet (“ADV” in Abb. 5.5). Dieser reine Transportfall stimmt mit der RHI-Verteilung ohne Zirrusbildung für den Fall aller Trajektorien (mittlere Kurve in Abb. 5.4) überein. Wird nun die Bildung von Zirren zugelassen, dann ist die augenfälligste Veränderung der Feuchteverteilungen im Vergleich zum Fall ADV, daß im eisübersättigten Bereich der Verteilungen ein Cut-off in Erscheinung tritt (Nachfolgend ist mit “Cut-off” stets die maximal auftretende Feuchte gemeint.). Im Fall HOM liegt dieser Cut-off bei ca. 158 %, im Fall HET bei ca. 136 %.

Diese Simulationen zeigen nun, daß dieser Cut-off der Feuchteverteilungen außerhalb von Zirren in direktem Zusammenhang mit dem Einsatz des angenommenen (homogenen oder heterogenen) Gefrierprozesses bzw. den kritischen Gefrierfeuchten steht. Der Cut-off selbst ist nämlich nichts anderes wie die höchst vorkommende kritische Gefrierfeuchte unter den gesamten untersuchten Zirrusereignissen. Voraussetzung für diese Schlußfolgerung ist aber eine ausreichende Variabilität der Temperatur auf den zugrundeliegenden Trajektorien, d.h. der Cut-off darf nicht dadurch zustande kommen, weil eine zu geringe Temperaturvariabilität (zu hohe Minimaltemperaturen) gar keine höheren Feuchtwerte zuläßt. Wie die Verteilung ADV in Abb. 5.5 aber zeigt, ist diese Voraussetzung voll erfüllt.

Zum Zeitpunkt der Zirrusbildung in den Simulationen ( $n_{ice}$  überschreitet den Wert von  $10^{-3} \text{ cm}^{-3}$ ) wurde der Median der kritischen Gefrierfeuchten  $RHI_m$  berechnet. Im Fall HOM ist  $RHI_m = 151\%$ , im Fall HET beträgt der Wert 129 %. Wie erwartet, zeigen die Kurven HOM und HET in Abb. 5.5 einen scharfen Abfall nahe  $RHI_m$ . Die Mediane der kritischen Gefrierfeuchten resultieren aus einem Mittel über alle Zirrusereignisse mit unterschiedlichen Kühlraten und unterschiedlichen Größenbereichen der gefrierenden Aerosole. Dies ist auch der Grund, weshalb  $RHI_m$  im Fall HET nicht exakt bei der im Modell zur Bestimmung der heterogenen Nukleationsraten vorgeschriebenen kritischen Feuchte von 130 % liegt. Die Varianz der kritischen Gefrierfeuchten zwischen dem 1. und 3. Quartil wird in Abb. 5.5 durch die horizontalen Fehlerbalken angezeigt. Bei genauem Hinsehen erkennt man, daß diese Variabilität im homogenen Fall etwas größer ist als im Fall mit heterogenem Gefrieren. Dies kommt daher, weil im Fall HOM die kritischen Gefrierfeuchten neben der Abhängigkeit von der Kühlrate und des Aerosolgrößenspektrums auch noch von der Temperatur abhängig sind (siehe Abb. 2.2).

Anhand von Abb. 5.4 wurde argumentiert, daß die Steigung der RHI-Verteilungen hauptsächlich durch die Transporteigenschaften der Trajektorien (Vertikalbewegungen) kontrolliert wird. Es stellt sich nun die Frage, wie dann der Unterschied zwischen den Steigungen der Modellfälle ADV, HOM und HET in Abb. 5.5 zustande kommt. Die Zirruseigenschaften selbst können es nicht sein, da es sich hier um Feuchteverteilungen außerhalb der Zirren handelt. Weiter liegen allen Fällen dieselben Trajektorien zugrunde. Die Bildung der Zirren hat jedoch einen indirekten Einfluß auf die Feuchteverteilung in wolkenfreien Gebieten. Geht man vom reinen Advektionsfall ADV auf den homogenen Modellfall über, dann befinden sich im Fall HOM alle Feuchtepunkte  $> 158\%$  innerhalb der Zirren. Feuchtepunkte auf den Trajektorien die im Fall ADV noch berücksichtigt

wurden, sind jetzt in der Statistik nicht mehr enthalten. Da aber gerade diese Punkte zu Trajektorien gehören, die sehr hohe Übersättigungen produzieren und dies zur Bildung von Wolken führen kann, nimmt die Steigung durch Ausschluß dieser Punkte zu, wenn homogenes Gefrieren zugelassen wird. Aus demselben Grund nimmt die Steigung der Verteilung noch weiter zu, wenn man vom homogenen Fall auf heterogenes Gefrieren übergeht, da im Fall HET noch mehr solche Datenpunkte (alle  $> 136\%$ ) aus der Statistik ausgeschlossen werden. Dieser Einfluß von unterschiedlichen Gefrierprozessen auf die Feuchteverteilungen ist im Vergleich zum Einfluß der Dynamik auf den Trajektorien aber etwas geringer (vergleiche die Unterschiede zwischen den Verteilungen in Abb. 5.4 und die Unterschiede zwischen den Kurven HOM und HET in Abb. 5.5).

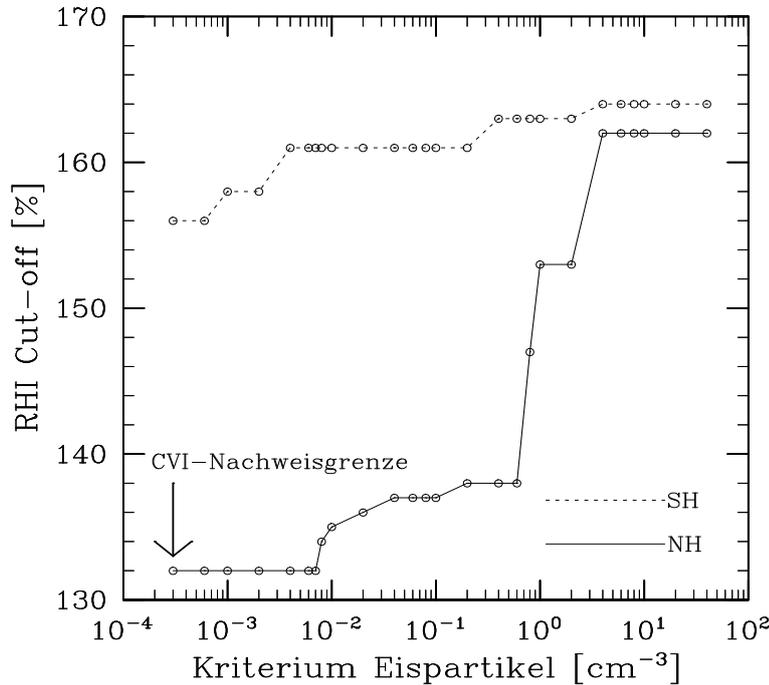
Die Tatsache, das atmosphärischer Transport und in geringerem Umfang auch Wolkenbildung die Wahrscheinlichkeit beeinflussen, bestimmte RHI-Werte in eisübersättigten Gebieten zu finden, macht einen quantitativen Vergleich der Steigungen von modellierten und gemessenen Feuchteverteilungen sehr schwierig, es sei denn die meteorologischen Windfelder und die physikalischen Prozesse bei der Zirrusbildung werden von den Modellen sehr gut erfaßt und stimmen mit den Beobachtungen gut überein. Darauf wird in Abschnitt 5.2 noch zurückgekommen.

## 5.2 Vergleich mit *in-situ*-Messungen

Während der beiden INCA-Kampagnen auf der Nord- und Südhalbkugel wurde das  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis *in-situ* mit einem Frostpunkthygrometer gemessen, und daraus mit den gemessenen Temperatur- und Druckwerten die Eisfeuchte RHI ermittelt. Dabei beträgt die absolute Genauigkeit der RHI-Werte innerhalb einer Standardabweichung ( $1\sigma$  - Grenze)  $3\%$ , d.h.  $68\%$  der Feuchtwerte haben eine Genauigkeit von  $\pm 3\%$ . Die entsprechende  $3\sigma$  - Grenze beträgt  $\pm 9\%$  ( $99.7\%$  aller Meßwerte sind genauer als  $\pm 9\%$ ). Weitere Details dieser Messungen wurden von Ovarlez et al. (2002) beschrieben.

### 5.2.1 Datenbehandlung

Zur Vergleichbarkeit mit den Studien in den Abschnitten 5.1.1 und 5.1.3 wurden Datenpunkte mit einer Temperatur  $T \geq 235\text{ K}$  und einer relativen Feuchte  $\text{RH} \geq 100\%$  nicht berücksichtigt. Als Kriterium zur Unterscheidung zwischen Gebieten außerhalb und innerhalb von Zirren wurde die mit dem CVI-Instrument (“Counterflow virtual impactor”) gemessene Eispartikelkonzentration verwendet, wobei alle Feuchtepunkte mit  $n_{\text{ice}} < 0.01\text{cm}^{-3}$  als Werte außerhalb von Zirren angesehen wurden. Das CVI-Instrument verdunstet die gesammelten Eispartikel und zählt die Residuen, die von diesen Eispartikeln zurückbleiben. Die Anzahlkonzentration dieser Residuen wird dann mit der Eispartikelkonzentration gleichgesetzt. Das Instrument sammelt Eispartikel im Durchmesserbereich von  $5\text{--}60\ \mu\text{m}$ . In diesem Größenbereich ist die überwiegende Zahl der Eispartikel in Zirren konzentriert. Speziell bei jungen Zirren kann daher die mit dem CVI-Instrument gemessene Konzentration als totale Eispartikelkonzentration angesehen werden. Die untere



**Abb. 5.6:** Lage der Cut-offs der Verteilungen der relativen Eisfeuchte außerhalb von Zirren für die Kampagne in Prestwick (NH) und Punta Arenas (SH) unter der Annahme von verschiedenen Kriterien bei der Auswahl der Datenpunkte außerhalb von Zirren.

Nachweisgrenze des Gerätes liegt bei einer Eispartikelkonzentration von  $\sim 3 \times 10^{-4} \text{cm}^{-3}$ .

Es wurde geprüft, ob sich bei Verwendung unterschiedlicher Wolkenkriterien die Feuchteverteilung ändern würde. Abbildung 5.6 zeigt die Lage der Cut-offs der RHI-Verteilungen außerhalb von Zirren für die INCA-Kampagnen in Prestwick (NH) und Punta Arenas (SH) unter der Annahme von verschiedenen Wolkenkriterien. Wie die Abbildung zeigt, liegen die Cut-offs bei Annahme eines Wolkenkriteriums nahe der CVI-Nachweisgrenze bei 132 % im Fall NH bzw. 156 % im Fall SH. Erhöht man das Kriterium für die Eispartikelkonzentration, zeigt sich im Fall NH bis zu einer Konzentration von  $n_{\text{ice}} < 1 \text{cm}^{-3}$  nur eine geringfügige Variation des Cut-offs um 6 %. Erst bei Annahme eines Wolkenkriteriums  $n_{\text{ice}} > 1 \text{cm}^{-3}$  erhöht sich der Cut-off sprunghaft. Hier zeigt sich der Übergang der Verteilung von wolkenfreien Gebieten zur Verteilung der Feuchte innerhalb von Zirren (siehe dazu Abb. 5.9). Im Fall SH variiert der Cut-off nur geringfügig, da sich in diesem Fall die kritischen Gefrierfeuchten nur geringfügig von den maximalen Übersättigungen innerhalb der Zirren unterscheiden (siehe Abschnitte 5.2.2 und 5.2.3). Für die nachfolgenden Analysen der INCA-Messungen mit Rückschlüssen auf die Gefrierprozesse bei der Zirrusbildung ist hier speziell die Tatsache von Bedeutung, daß die Lage des Cut-offs speziell im Fall NH insensitive gegenüber der Wahl von sehr strengen Kriterien für wolkenfreie Gebiete ist. Bei einem Kriterium von  $n_{\text{ice}} < 0.01 \text{cm}^{-3}$  liegt der Cut-off bei 135 %, unter der Annahme von  $n_{\text{ice}} < 0.001 \text{cm}^{-3}$  bei 132 %. Dieser geringe Unterschied entspricht der experimentellen Unsicherheit der Messungen (siehe oben). Je strenger das Kriterium, desto weniger

Punkte gehen aber in die Statistik der wolkenfreien Gebiete ein. Aus diesem Grund wurde das Kriterium  $n_{\text{ice}} < 0.01\text{cm}^{-3}$  verwendet, um durch mehr Datenpunkte den statistischen Fehler klein zu halten.

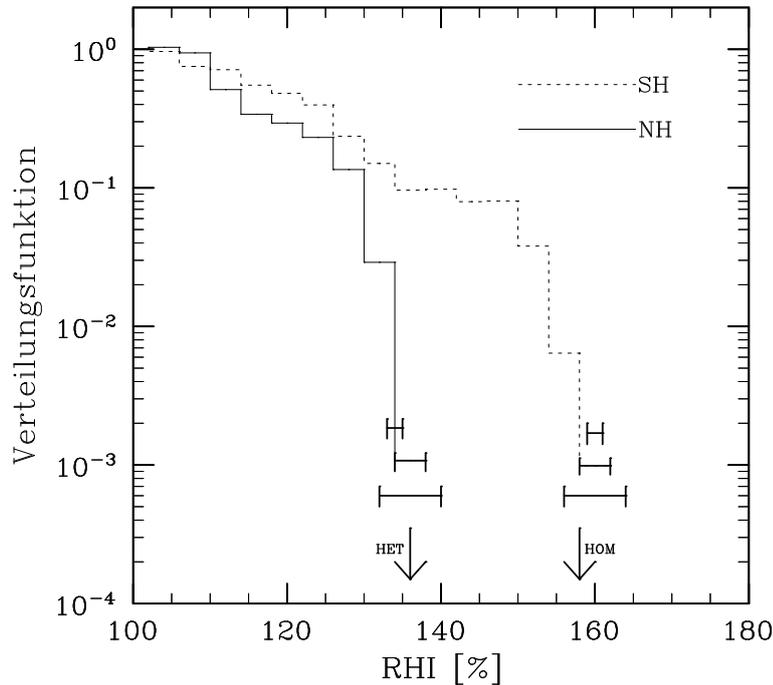
Das während der INCA-Kampagnen verwendete Hygrometer hat eine Ansprechzeit von 4 s (Ovarlez et al., 2002). Die Feuchtedaten der INCA-Meßflüge liegen in einer zeitlichen Auflösung von 1 s vor. Deshalb wurde untersucht, ob sich die Feuchteverteilung wesentlich ändert, wenn man nicht jeden einzelnen RHI-Wert mit  $n_{\text{ice}} < 0.01\text{cm}^{-3}$  in die Statistik aufnimmt, sondern nur jede Punkte, für die das Kriterium für mindestens 4 aufeinanderfolgende Sekunden erfüllt ist. Dies führt aber ebensowenig zu einer wesentlichen Veränderung der resultierenden RHI-Verteilung, wie eine Mittelung aufeinanderfolgender RHI-Werte außerhalb von Wolken über 4 s, oder wie eine Mittelung von Temperatur, Druck und  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis über 4 s-Intervalle und Berechnung der Eisfeuchte aus diesen Mittelwerten.

Die einzelnen RHI-Werte wurden in 4 % - Feuchtebins verteilt, vergleichbar mit der experimentellen Unsicherheit. Die Verwendung von 2 % oder 8 % - Bins führt nur zu mehr oder weniger glatten Verteilungen, Steigung oder Cut-off bleiben aber unverändert.

### 5.2.2 Eisinitiierung

Abbildung 5.7 zeigt die ermittelten RHI-Verteilungen im eisübersättigten Bereich außerhalb von Zirren während der Kampagnen in Prestwick (NH, durchgezogene Kurve) und Punta Arenas (SH, gestrichelte Kurve). Die Verteilungen über den gesamten Feuchtebereich wurden bereits in Abb. 5.2 gezeigt. Im Fall SH liegt der Cut-off der Verteilung im Bereich 158–162 %, im Fall NH zwischen 134 % und 138 %. Vergleicht man die Cut-offs dieser gemessenen Feuchteverteilungen mit den Cut-offs der modellierten Verteilungen außerhalb von Zirren (Abb. 5.5), dann zeigt sich eine ausgezeichnete Übereinstimmung der Messung SH mit dem Modellfall HOM, und der Messung NH mit dem Modellfall HET. Da diese Cut-offs in direktem Zusammenhang mit den kritischen Gefrierfeuchten stehen, läßt diese Übereinstimmung die Schlußfolgerung zu, daß der angenommene Modellfall mit homogener Bildung von Zirren geeignet ist, um den Einsatz der Zirrenbildung während der Kampagne SH zu beschreiben. Auf der anderen Seite scheint im Fall NH die Zirrenbildung durch heterogenes Gefrieren initiiert worden zu sein. Trotz der Schwierigkeit, die Steigung von gemessenen und modellierten Feuchteverteilungen zu vergleichen (Abschnitt 5.1.3), wird diese Interpretation noch dadurch untermauert, daß im Fall NH die Steigung größer ist als im Fall SH, analog zur größeren Steigung des Modellfalles HET im Vergleich zum Fall HOM.

Man könnte an dieser Stelle argumentieren, daß die unterschiedlichen Gefrierfeuchten während der beiden INCA-Kampagnen auch durch deutliche Unterschiede bei den Minimumtemperaturen zustande gekommen sind, und nicht nur durch unterschiedliche Gefrierprozesse bei der Wolkenbildung. Die Temperaturverteilungen während der Kampagnen SH und NH waren jedoch sehr ähnlich (siehe Abb. 5.1), mit Minimumtemperaturen von 210 K (SH) bzw. 216 K (NH). Dies ist ein Unterschied, jedoch wurden diese niedrigen Werte äußerst selten beobachtet. Mit Hilfe von Abb. 5.2 wurde weiter bereits

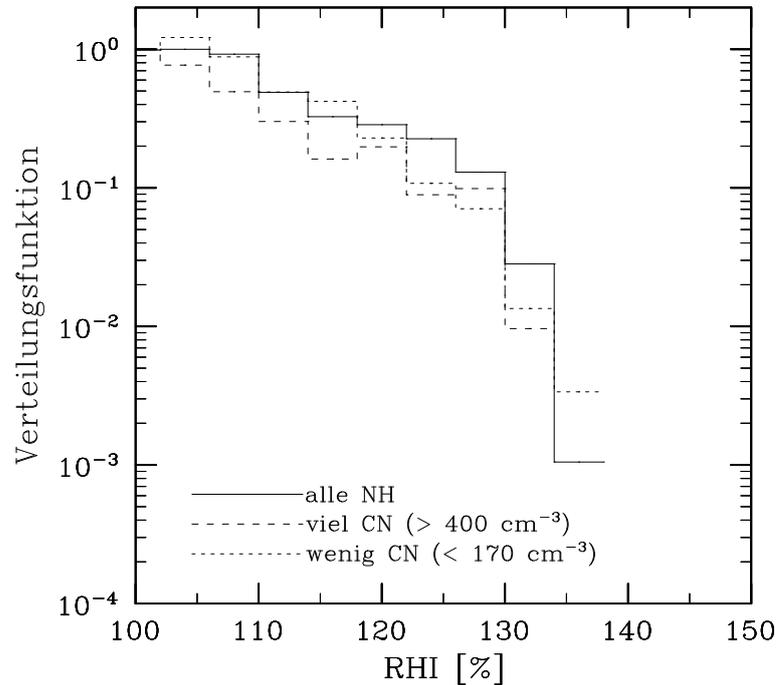


**Abb. 5.7:** Normierte RHI-Verteilungen außerhalb von Zirren ( $n_{\text{ice}} < 0.01\text{cm}^{-3}$ ) gemessen in Punta Arenas (SH, gestrichelte Kurve) und in Prestwick (NH, durchgezogene Kurve). Die RHI-Werte sind in 4 %- Intervalle verteilt. Die horizontalen Balken markieren die Lage der Cut-offs, je nachdem ob 2 %- (Balken oben), 4 %- (Balken mitte) oder 8 %- Feuchteintervalle (Balken unten) verwendet werden. Die Pfeile markieren die Lage der Cut-offs der modellierten Verteilungen (Abb. 5.5).

gezeigt, daß die Temperaturvariabilität während der Kampagnen SH und NH groß genug war, um RHI-Werte deutlich über den beobachteten Gefrierfeuchten erzeugen zu können.

Ein weiterer Einwand wäre, daß während der Prestwick-Kampagne (NH) die offensichtliche Gefrierfeuchte von  $\sim 130\%$  nur dadurch zustande gekommen ist, weil bestimmte Gefrierkerne sehr früh bei geringer Übersättigung nahe  $100\%$  gefroren sind, andere jedoch erst sehr spät nahe der homogenen Gefrierfeuchten, d.h. der Cut-off nahe  $130\%$  nur durch eine Kombination von Partikeln mit sehr unterschiedlichen Gefrierfeuchten zustande gekommen ist. Mit Hilfe von Abb. 5.8 kann dies jedoch widerlegt werden. Es wird hier im Fall NH unterschieden zwischen Fällen wo die Konzentration von Kondensationskernen (CN) mit einem Durchmesser  $> 14\text{ nm}$  sehr hoch ( $> 400\text{ cm}^{-3}$ ) bzw. sehr niedrig ( $< 170\text{ cm}^{-3}$ ) war. Jeweils ca.  $30\%$  der NH-Daten treffen auf diese Fälle zu. Nebenbei sei hier erwähnt, daß der saubere (wenig Partikel) NH-Fall eine ähnliche CN-Konzentration aufweist, wie im Mittel CN's während der SH-Kampagne beobachtet wurden (Minikin et al., 2003).

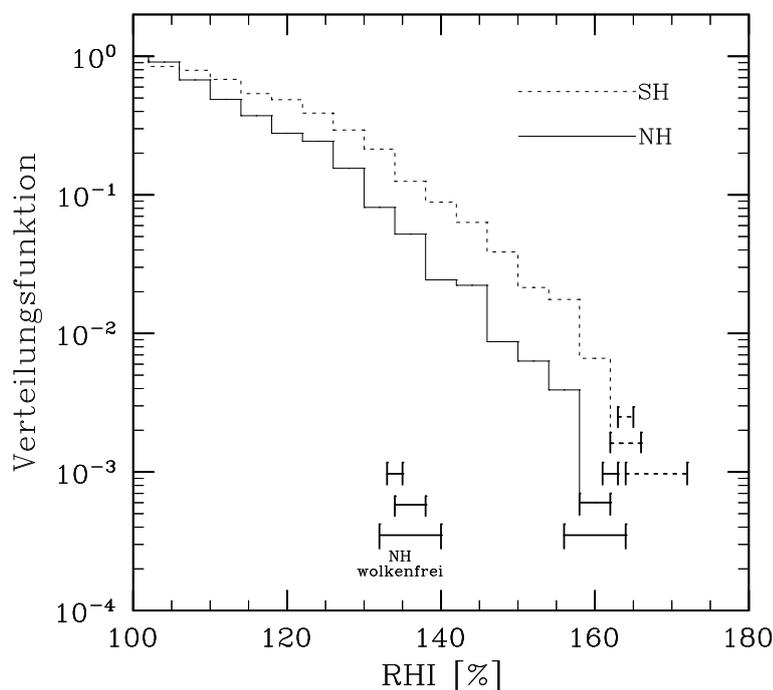
Die drei Verteilungen in Abb. 5.8 sind innerhalb der experimentellen Unsicherheit beinahe identisch, obwohl sie in Bezug auf die Anzahl von Kondensationskernen sehr unterschiedliche Bedingungen repräsentieren. Von der totalen Anzahl von Kondensati-



**Abb. 5.8:** RHI-Verteilungen außerhalb von Zirren während der INCA-Kampagne in Prestwick. Die durchgezogene Kurve ist dieselbe Verteilung wie der Fall NH in Abb. 5.7. Die grob gestrichelte (fein gestrichelte) Kurve berücksichtigt von diesem Fall nur Fälle, wo die gemessene CN-Konzentration sehr hoch (niedrig) war.

onskernen gefrieren typischerweise weniger als 10 % der Partikel. Deshalb wurde diese Analyse der Feuchteverteilung dahingehend erweitert, daß zusätzlich unterschieden wurde zwischen sauberen ( $< 10 \text{ cm}^{-3}$ ) und schmutzigen Fällen ( $> 20 \text{ cm}^{-3}$ ) in der Akkumulationsmode mit Partikeldurchmessern  $> 100 \text{ nm}$ , und weiter zwischen hohen ( $> 40 \text{ cm}^{-3}$ ) und niedrigen ( $< 10 \text{ cm}^{-3}$ ) Konzentrationen von nichtflüchtigen Partikeln. Die RHI-Verteilungen die aus diesen verschiedenen Fällen resultieren sind beinahe identisch mit den gezeigten Fällen in Abb. 5.8 und daher nicht abgebildet.

Zusammenfassend lassen diese Ergebnisse folgende Schlüsse zu: Erstens kam der Cutoff von  $\sim 130 \%$  bei der Prestwick-Kampagne mit großer Wahrscheinlichkeit durch Gefrieren von Partikeln zustande, die alle ähnliche kritische Gefrierfeuchten aufwiesen. Das weist unter anderem darauf hin, daß auch das reine Hintergrundaerosol im NH-Fall relativ zu unterkühlten Schwefelsäureaerosolen effektivere Geriereigenschaften aufwies. Zweitens sind die beobachteten Unterschiede bei den Partikelkonzentrationen (gesamt CN, Akkumulationsmode, nicht-flüchtige Partikel) zwischen der Nord- und Südhalbkugel (Minikin et al., 2003) nicht der Grund für die festgestellten Unterschiede bei den RHI-Verteilungen der beiden Kampagnen. Es ist viel wahrscheinlicher, daß unterschiedliche chemische und morphologische Partikeleigenschaften der Grund für die unterschiedlichen Gefrierfeuchten in der Abb. 5.7 sind.



**Abb. 5.9:** RHI-Verteilungen über Eissättigung innerhalb von Zirren ( $n_{\text{ice}} > 0.01\text{cm}^{-3}$ ) gemessen während INCA. Die horizontalen Balken markieren wieder die Lage der Cut-offs der Verteilungen für 2 % -, 4 % - oder 8 % - Feuchteintervalle. Im Fall NH sind zum Vergleich weiters die Cut-offs der Verteilung außerhalb von Zirren bei  $\sim 135$  % aus Abb. 5.7 eingetragen.

### 5.2.3 Gefriermechanismus

Im vorigen Abschnitt wurde mit Hilfe der RHI-Verteilungen außerhalb von Zirren die Initiierung der Zirrusbildung im NH-Fall durch heterogenes Gefrieren erklärt, im SH-Fall durch homogenes Gefrieren. Die Betonung lag hier allerdings auf dem Einsatz der Wolkenbildung (geringe Eispartikelkonzentration). Um nähere Aussagen über die dominanten Gefrierprozesse (homogene oder heterogene) bei der Zirrusbildung machen zu können, wurden auch die RHI-Verteilungen innerhalb von Zirren während INCA untersucht. Dabei galten Feuchtepunkte mit einer Eispartikelkonzentration  $n_{\text{ice}} > 0.01\text{cm}^{-3}$  als Werte innerhalb von Zirren.

Abbildung 5.9 zeigt die resultierenden RHI-Verteilungen innerhalb von Zirren für die Fälle SH und NH. Es wurden wieder 4 % - Feuchtebins bei den Verteilungen verwendet. Das Augenmerk liegt hier wie bei den Verteilungen außerhalb von Zirren auf der Lage der Cut-offs. Im SH-Fall liegt der Cut-off im Bereich 162–166 %. Bei den NH-Daten liegt er bei 158–162 %. Diese Cut-offs innerhalb von Zirren repräsentieren die maximalen Übersättigungen bei der Wolkenbildung. Die Werte sollen nun mit jenen außerhalb von Zirren (Abb. 5.7) verglichen werden.

Vergleicht man die Lage der Cut-offs im Fall SH, dann liegt der mittlere Cut-off von  $\sim 164$  % innerhalb von Zirren ein paar Prozentpunkte über jenem außerhalb von Zirren ( $\sim 160$  %). Dieser Unterschied liegt innerhalb der experimentellen Unsicherheit ( $1 \sigma$  -

Fehler = 3 %), ist aber konsistent mit den APSC-Simulationen. Im Modell liegt der Cut-off der Feuchteverteilung innerhalb von Zirren ( $n_{\text{ice}} > 0.001\text{cm}^{-3}$ , Verteilung hier nicht gezeigt) ca. 1 % über dem modellierten Cut-off außerhalb von Zirren. Diese Differenz zwischen kritischer Gefrierfeuchte und maximaler Eisübersättigung von wenigen Prozenten ist typisch für Bedingungen in der oberen Troposphäre, wobei die Differenz mit abnehmender Temperatur durch langsames Partikelwachstum zunimmt. Dieses Verhalten wurde bereits mit Hilfe der Simulationen der AIDA-Gefrierexperimente in Kapitel 4 beschrieben (siehe Diskussion von Abb. 4.12). Diese Konsistenz von beobachteten und modellierten Differenzen zwischen Gefrierfeuchten und maximalen Eisübersättigungen innerhalb von Zirren würde der Schluß zulassen, daß im Fall SH das homogene Gefrieren der dominante Weg bei der Zirrusbildung war. Jedoch läßt die experimentelle Unsicherheit der INCA-Feuchtwerte ( $\pm 3\%$ ) eine definitive Schlußfolgerung nicht zu.

Anders stellt sich die Situation bei den NH-Messungen dar. Der mittlere Cut-off innerhalb von Zirren liegt hier bei  $\sim 162\%$ , weit über dem Cut-off der RHI-Verteilung außerhalb von Zirren von  $\sim 134\%$ . Diese große Differenz kann nicht durch die experimentelle Unsicherheit der Messungen erklärt werden ( $3\sigma$  - Fehler von  $\pm 9\%$ ). Weiter ist im Fall NH nicht die Konsistenz mit der Modellsimulation gegeben. Im Modellfall HET liegt nämlich der Cut-off innerhalb der Zirren bei  $\sim 138\%$ , nur 2 % über dem Cut-off außerhalb der Wolken. Das ist ähnlich der Modellsimulation mit homogenem Gefrieren. Aus diesem Grund wird hier der Schluß gezogen, daß die Modellannahme mit ausschließlich heterogenem Gefrieren eines einzelnen Aerosoltypen im Fall NH falsch ist.

Um die NH-Beobachtungen zu erklären, wird hier folgende Hypothese vorgeschlagen: Im Fall NH wird die Bildung von Zirren zunächst durch heterogenes Gefrieren von einer begrenzten Zahl von festen Gefrierkernen weit unterhalb der homogenen Gefrierfeuchten initiiert. Dies erklärt warum der gemessene Cut-off der RHI-Verteilung außerhalb von Zirren nahe 130 % liegt. Jedoch waren die vertikalen Windgeschwindigkeiten bzw. die Kühlraten während der NH-Kampagne im Mittel hoch genug, um häufig die relative Feuchte trotz des initiierten heterogenen Gefrierprozesses weiter in die Nähe der homogenen kritischen Gefrierfeuchten zu treiben, wo dann zusätzlich homogenes Gefrieren der im Vergleich zu den IN viel häufiger vorkommenden unterkühlten Lösungstropfen initiiert wurde. Dies würde erklären, warum der Cut-off innerhalb von Zirren im Fall NH im Bereich der maximalen Eisfeuchten bei homogenen Gefrierprozessen liegt. Globale Auswirkungen dieser Hypothese werden in Kapitel 6 näher studiert.

Die Analyse der Häufigkeitsverteilung der gemessenen Aufwindgeschwindigkeiten und der Eispartikelkonzentrationen während INCA unterstützt diese Hypothese (Kärcher und Ström, 2003). Dabei hat sich gezeigt, daß abgesehen von konvektiven Einflüssen, welche bei der SH-Kampagne nicht auftraten, diese Verteilungen sehr ähnlich sind. Bei beiden Datensätzen (SH und NH) beträgt die mittlere Aufwindgeschwindigkeit  $\sim 25\text{ cm s}^{-1}$ . Bei den Eispartikelkonzentrationen wird in beiden Fällen eine maximale Auftrittshäufigkeit von Konzentrationen zwischen  $0.1\text{--}10\text{ cm}^{-3}$  beobachtet, mit beinahe identischen Mittelwerten von  $1.2\text{ cm}^{-3}$  (SH) und  $1.4\text{ cm}^{-3}$  (NH). Diese hohen mittleren Aufwindgeschwindigkeiten und Eispartikelkonzentrationen sind vermutlich auf das häufige Auftreten von mesoskaligen Schwerewellen während INCA zurückzuführen (Kärcher und Ström, 2003).

Die Unterschiede bei der Auftrittshäufigkeit von sehr niedrigen Eispartikelkonzentrationen ( $< 0.1 \text{ cm}^{-3}$ ) könnten zum Teil durch heterogenes Gefrieren erklärt werden.

Allgemein könnte heterogenes Gefrieren die homogene Nukleation von Eiskristallen nur unterdrücken, und dadurch auch die Anzahl der gebildeten Eispartikel deutlich verringern, wenn folgende Annahmen erfüllt sind (Kärcher und Lohmann, 2003): Erstens müssen neben den flüssigen Lösungstropfen feste Teilchen (IN) existieren, und es muß in einem bestimmten Ausmaß eine externe Mischung der beiden Partikeltypen vorliegen. Zweitens muß die Aufwindgeschwindigkeit während des Gefrierprozesses konstant bleiben, und drittens darf die maximale Anzahl der IN eines bestimmten Grenzwert nicht überschreiten. Dieser Grenzwert hängt von den kritischen Gefrierfeuchten der IN, der Temperatur und von der Aufwindgeschwindigkeit ab. Wie im vorigen Absatz ausgeführt wurde, konnten bei den mittleren Eispartikelkonzentrationen und den vertikalen Windgeschwindigkeiten keine großen Unterschiede zwischen den NH- und SH-Daten gefunden werden. Dies deutet darauf hin, daß die Aufwindgeschwindigkeiten während der INCA-Kampagnen immer hoch genug waren um homogenes Gefrieren zu aktivieren, und/oder die Lösungstropfen und die IN lagen als interne Mischung (Immersion der festen Kerne in den Lösungstropfen) vor.

Weiter oben wurde ausgeführt, daß die SH-Daten (kritische Gefrierfeuchten und maximale Übersättigungen) anhand des homogenen Gefrierens von reinen unterkühlten  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Lösungstropfen (Modellfall HOM) interpretiert werden können. Analysen der Residuen von verdampften Eispartikeln (Seifert et al., 2003) haben jedoch gezeigt, daß die Annahme von reinen Lösungstropfen im Fall SH falsch ist, da auch bei diesen Messungen wie im Fall NH deutliche Reste von heterogenen Gefrierkernen gefunden wurden. Offensichtlich hatten aber diese heterogenen Gefrierkerne im Fall SH durch andere chemische und morphologische Partikeleigenschaften als im Fall NH kritische Gefrierfeuchten nahe der homogenen Gefrierfeuchten. In diesem Fall würden sie dann den Cut-off der Feuchteverteilung im Fall SH (Abb. 5.7) und die maximalen Übersättigungen (Abb. 5.9) nicht beeinflußt haben.

### 5.3 Kurzzusammenfassung

Aufgrund der in diesem Kapitel gezeigten Trajektoriensimulationen und INCA-Analysen lassen sich folgende Hauptpunkte zusammenfassen:

- Die Steigung von Wahrscheinlichkeitsverteilungen der relativen Feuchte in eisübersättigten Gebieten in der Nähe von, aber außerhalb von Zirren, wird hauptsächlich durch den atmosphärischen Transport (Vertikalbewegungen) bestimmt, und durch Gefrier- und Wachstumsprozesse von Eiskristallen in jungen Zirren modifiziert.
- Der Cut-off der RHI-Verteilungen außerhalb von Zirren wird durch den Einsatz des Gefrierprozesses bestimmt. Dieser Zusammenhang erlaubt die Bestimmung der kritischen relativen Feuchten bei der Zirrusbildung direkt mit Hilfe von atmosphärischen Feuchtemessungen.

- Durch Vergleich der Cut-offs der Feuchteverteilungen außerhalb und innerhalb von Zirren können nähere Aussagen über die Gefriermechanismen bei der Bildung von Zirren gemacht werden. Für definitive Aussagen muß jedoch die Differenz zwischen diesen Cut-offs größer als die experimentelle Unsicherheit der Feuchtedaten sein.
- Der Einsatz der Wolkenbildung und die maximalen Übersättigungen innerhalb von Zirren können für die INCA-Kampagne in Punta Arenas durch homogenes Gefrieren erklärt werden. Dies impliziert aber nicht, daß bei dieser Kampagne ausschließlich reine Lösungstropfen in den Gefrierprozeß involviert waren. Die Feuchtedaten der Prestwick-Kampagne können nur durch eine Kombination von homogenen und heterogenen Gefrierprozessen erklärt werden.
- Der Einsatz der Gefrierprozesse war unabhängig von den festgestellten Unterschieden bei der totalen Anzahl von Kondensationskernen (CN). Die Unterschiede bei den beobachteten kritischen Gefrierfeuchten für die Fälle NH und SH sind viel wahrscheinlicher durch unterschiedliche chemische und morphologische Partikeleigenschaften verursacht.

Die in diesem Kapitel vorgestellte Methode, bei der Rückschlüsse auf die Prozesse bei der Zirrusbildung mit Hilfe von atmosphärischen Feuchteverteilungen gemacht wurden, hat den Vorteil, daß schwierige Lagrange'sche Messungen in Zirren nicht notwendig sind. Voraussetzung für eine derartige Interpretation der RHI-Verteilungen ist aber eine ausreichende Statistik (genügend Feuchtepunkte) und eine genügend große Temperaturvariabilität bei den durchgeführten Messungen. Idealerweise sollte sich auch das während einer Kampagne gemessene Aerosol in seinen chemischen Eigenschaften nicht stark verändern, da ansonsten kein klarer Zusammenhang zwischen den beobachteten Cut-offs der Verteilungen und den Gefrierprozessen hergestellt werden kann.



# Kapitel 6

## Zirrus-Simulationen

### 6.1 Problemstellung und Ziele

Anhand der Ergebnisse in Kapitel 5 wurde deutlich, daß das homogene Gefrieren von reinen unterkühlten Lösungstropfen die Bildung von Zirren erklären kann (siehe INCA-Messungen SH). Gleichzeitig lieferten die *in-situ*-Messungen während INCA aber einen Hinweis (Seifert et al., 2003) dafür, daß heterogene Gefrierkerne (IN) bei der Bildung von Zirren im Bereich der Tropopause eine Rolle spielen können. Dies muß kein Widerspruch sein, wenn die heterogenen Gefrierkerne kritische Gefrierfeuchten nahe der homogenen Gefrierfeuchten haben.

Unsere Analyse der NH-Daten legte nahe, daß dort Gefrieren sogar noch früher (bei  $\sim 130\%$ ) einsetzt. Inwieweit das heterogene Gefrieren die mikrophysikalischen Eigenschaften der Zirren beeinflusst, ist aber nicht eindeutig klar. So kann wie unten gezeigt wird, in Abhängigkeit von den Gefriereigenschaften der IN und den dynamischen Bedingungen die Eispartikelkonzentration in Zirren im Vergleich zu einer rein homogenen Bildung der Zirren sowohl zunehmen als auch abnehmen, wenn heterogene Gefrierprozesse an der Zirrusbildung beteiligt sind.

Das bereits in Kapitel 5 angewandte Konzept von mikrophysikalischen Simulationen entlang von atmosphärischen Trajektorien wird in diesem Kapitel beibehalten. Im Gegensatz zu den vorangehenden Simulationen, bei denen lediglich Verteilungen der relativen Feuchte untersucht wurden, soll hier jedoch verstärkt auf die Zirruseigenschaften selbst eingegangen werden. Es wird geklärt, in welchem Umfang die Eigenschaften der Zirren, wie Auftrittshäufigkeit oder Anzahl der Eispartikel, modifiziert werden, wenn unterschiedliche Gefrierprozesse bei der Bildung der Zirren berücksichtigt werden. Speziell der Einfluß von aktiven IN soll gezeigt werden, d.h. es soll der Unterschied einer Zirrusbildung mit ausschließlich homogenem Gefrieren zu einer Bildung von Zirren unter Beteiligung von heterogenen Gefrierprozessen untersucht werden.

Die Aerosol-Zirren-Wechselwirkung wird bei festgehaltener Dynamik untersucht, indem die thermodynamischen Bedingungen auf den zugrundeliegenden Trajektorien nicht verändert werden. Kärcher und Ström (2003) haben gezeigt, daß neben den Gefriereigenschaften des Aerosols die Dynamik (Vertikalbewegungen) eine entscheidende Rolle bei

der Zirrusbildung spielt. Es wird daher auch gezeigt, wie sich die Zirruseigenschaften verändern, wenn zunächst lediglich die statistische Verteilung der Kühlraten auf den Trajektorien unter Beibehaltung ihrer mittleren Amplituden und Frequenzen verändert wird, ohne daß unterschiedliche Gefriereigenschaften der Partikel angenommen werden. Weiter wird jedoch auch untersucht, in welchem Umfang die Zirruseigenschaften bei gleichen Gefriereigenschaften der Partikel modifiziert werden, wenn diese mittleren Amplituden und Frequenzen der Kühlraten verändert werden.

In Kapitel 1 wurde bereits erwähnt, daß derartige Untersuchungen mit globalen Modellen nicht möglich sind, da einerseits subskalige dynamische Prozesse in diesen Modellen nur unzureichend aufgelöst werden, und andererseits über die räumliche Verteilung und die zeitliche Variabilität von aktiven IN in der Atmosphäre nur wenig bekannt ist. Die in diesem Kapitel gezeigten Simulationen mit Hilfe von Trajektorien setzen voraus, daß sowohl heterogene Gefrierkerne als auch mesoskalige Wellenaktivitäten ohne Zuordnung zu regionalen Quellen zu jeder Zeit vorhanden sind. Dabei ist die Wahl wichtiger Parameter, wie die der heterogenen Gefrierfeuchten oder der Amplituden und Frequenzen der Wellen, durch *in-situ*-Messungen motiviert. Dies ist ein Kompromiß für die großräumigen Bedingungen in der realen Atmosphäre. Die vorliegenden Simulationen müssen deshalb als Prinzipstudien verstanden werden, welche die grundsätzlichen Aspekte der Zirrusbildung herausarbeiten.

## 6.2 Beschreibung der Modellsimulationen

### 6.2.1 FLEXPART-Trajektorien

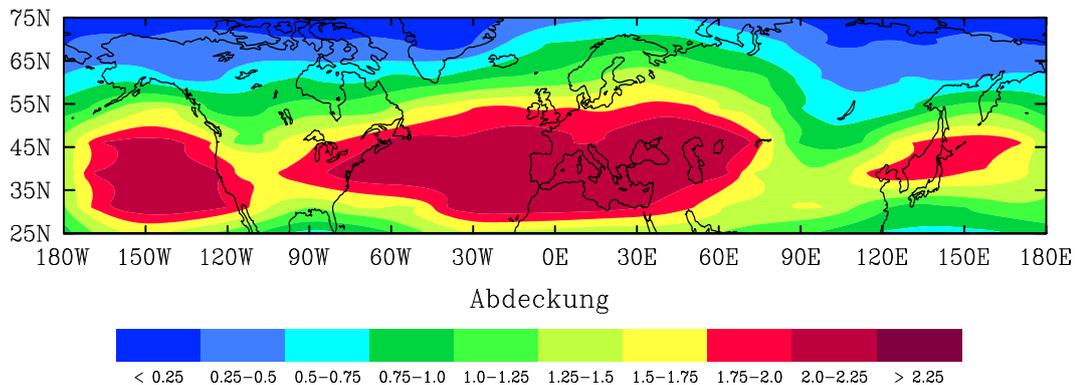
Bei den Simulationen in diesem Kapitel wurde das mikrophysikalische Modell APSC wieder entlang von Trajektorien eingesetzt, welche mit Hilfe von ECMWF-Daten berechnet wurden (siehe Abschnitt 5.1.2). Im Unterschied zum vorigen Kapitel wurden jedoch hier die Trajektorien mit dem Modell FLEXPART berechnet (Stohl et al., 1998). Das Modell FLEXPART ist ein Lagrange'sches Partikel-Dispersions-Modell, welches aus dem Trajektorienmodell FLEXTRA entwickelt wurde. Mit FLEXPART werden kontinuierlich Partikel verlagert, d.h. es berechnet die Trajektorien einzelner Partikel. Im Gegensatz zu den rein kinematischen Trajektorienberechnungen mit FLEXTRA, werden beim Transport der Partikel mit FLEXPART auch Prozesse wie etwa turbulente Diffusion oder Deposition der Partikel berücksichtigt.

Im Fall der vorliegenden FLEXPART-Simulationen wurden insgesamt 160000 Partikel gleichmäßig in der gesamten Atmosphäre (global) verteilt. Es wurde dann die Verlagerung dieser Partikel über einen 3-Monatszeitraum berechnet (September bis November, 2000), d.h. jedes der Partikel durchläuft eine 3-Monatstrajektorie. Je nach untersuchtem Gebiet, können von diesen Trajektorien dann auch nur einzelne Abschnitte betrachtet werden. Natürlich weisen derart langfristige Trajektorienberechnungen eine beträchtliche Ungenauigkeit auf (Endpunkte haben Ungenauigkeit von 10–20 % der Transportdistanz; Pers. Mitteilung A. Stohl, TUM, 2003). Jedoch repräsentieren die Trajektorien eine gute Klimatologie der atmosphärischen Transporte, und nur dies ist relevant für die folgenden

Studien.

Die FLEXPART-Simulationen wurden global durchgeführt. Die wichtigen Größen wie Druck, Temperatur und spezifische Feuchte wurden dabei in einer zeitlichen Auflösung von 3 Stunden abgespeichert. Die vorliegende Studie beschränkt sich auf die Nordhemisphäre zwischen  $25^{\circ}\text{N}$  und  $75^{\circ}\text{N}$ . In der Vertikalen wurde die Analyse der Daten auf den Bereich der Tropopause bezogen, wobei die thermische Tropopausenhöhe implizit bei den Trajektorienberechnungen mit FLEXPART berechnet wurde. Es wurde dann eine vertikale Schicht betrachtet, die sich von 2 km unterhalb der Tropopause bis 1 km oberhalb der Tropopause erstreckt (Tropopausenregion). Zur Darstellung der Daten in der Horizontalen wurde ein  $7.5^{\circ} \times 7.5^{\circ}$  Längen-Breiten-Gitter definiert. Diese räumliche Auflösung wurde verwendet, um sicherzustellen, daß die Gitterboxen im 3-Monatszeitraum mit einer möglichst großen Zahl von Trajektorien bedeckt werden, und damit weiter keine großen Unterschiede zwischen zwei benachbarten Gitterboxen in dieser Trajektorienabdeckung auftreten.

Abbildung 6.1 zeigt die Abdeckung des betrachteten Gebietes mit den FLEXPART-Trajektorien. Insgesamt wurden hier 10125 Trajektorien berücksichtigt, welche die Grundlage für die mikrophysikalischen Simulationen bildeten. In Abb. 6.1 ist die Abdeckung definiert als die Summe der Aufenthaltszeit (in einer Gitterbox) aller Trajektorien, die eine bestimmte Gitterbox innerhalb von 90 Tagen durchlaufen haben, geteilt durch 90 Tage. Ein Wert von z.B. 1 bedeutet dann, daß bei einem betrachteten Zeitraum von 3 Monaten im Mittel auch über einen gleich langen Zeitraum Trajektorien Daten für eine betrachtete Gitterbox zur Verfügung stehen.

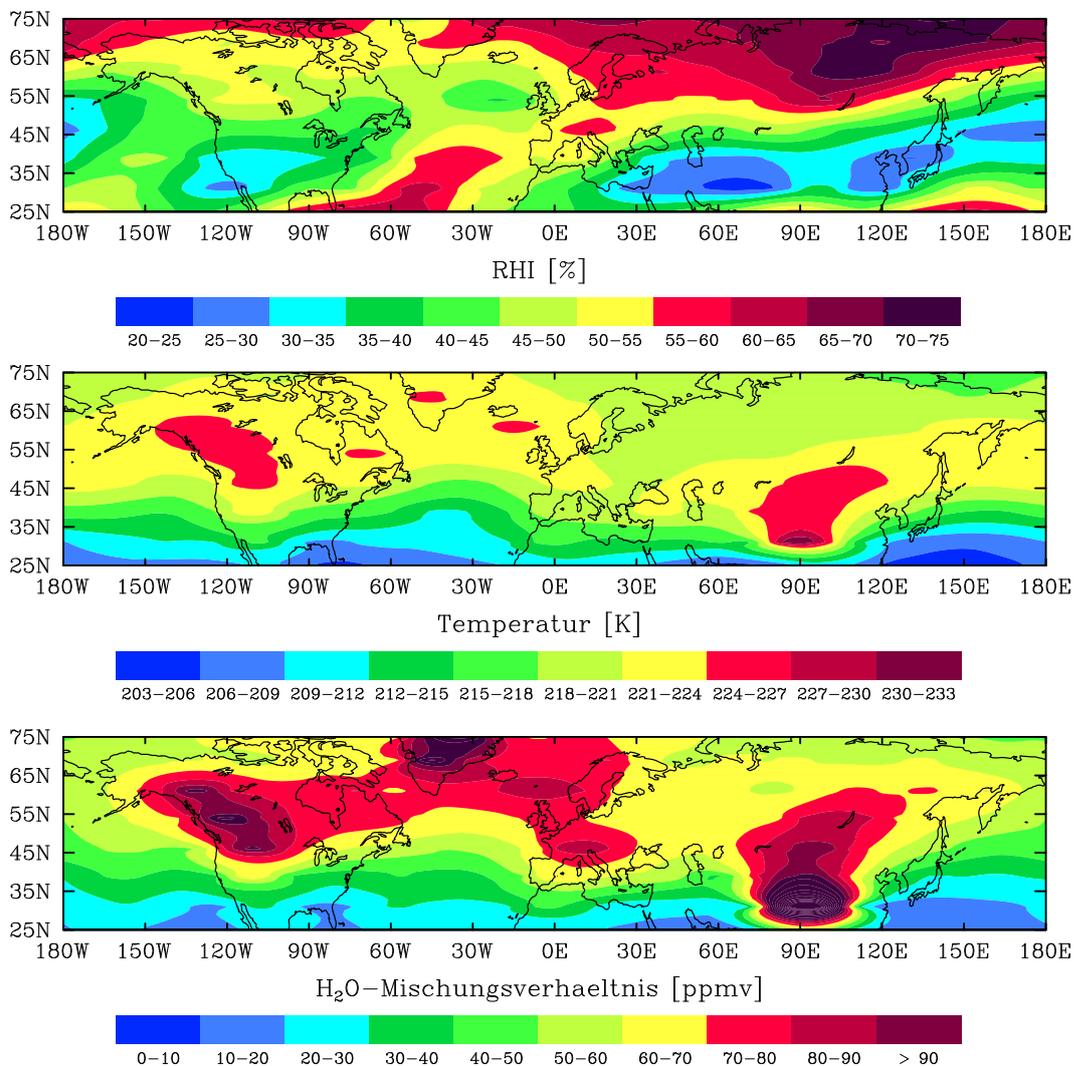


**Abb. 6.1:** Ausmaß der Trajektorienbedeckung für das untersuchte Gebiet.

Aus Abb. 6.1 geht nun hervor, daß speziell in den mittleren Breiten die Abdeckung mit Trajektorien sehr gut ist. Zu den subpolaren Breiten hin nimmt jedoch die Trajektorien dichte ab, was zu erwarten ist, da rein klimatologisch gesehen die mittleren Breiten (Westwindzone) hier das bevorzugte Strömungsgebiet sind, d.h. dieser Nord-Süd-Gradient in der Trajektorien dichte bleibt auch bestehen, wenn mehr als die oben genannten 10125 Trajektorien berücksichtigt werden. Eine exakt gleichmäßige Abdeckung des untersuchten Gebietes mit Trajektorien kann daher nicht erzielt werden. Aufgrund der gezeigten Trajektorienabdeckung ist daher die Belastbarkeit der Aussagen, die in diesem Kapitel

gemacht werden, am stärksten in den Gebieten zwischen  $30^\circ\text{N}$  und  $60^\circ\text{N}$ .

Abbildung 6.2 zeigt die mittlere relative Feuchte in Bezug auf Eis (Bild oben), die mittlere Temperatur (Bild mitte) und das mittlere  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis (Bild unten) im Bereich der Tropopause, berechnet mit Hilfe der FLEXPART-Trajektorien. Diese Größen sind Mittelwerte, berechnet aus der totalen Anzahl von Trajektorienpunkten, die in den oben definierten Gitterboxen in der Tropopausenregion im Zeitraum von 3 Monaten zu liegen kommen. Es soll hier die großräumige, hemisphärische Feuchte- und Temperaturverteilung auf ECMWF-Basis gezeigt werden, welche letztendlich die Gebiete mit Zirrusbildung in den mikrophysikalischen Simulationen kontrolliert.



**Abb. 6.2:** Mittlere relative Eisfeuchte RHI (Bild oben), mittlere Temperatur (Bild mitte) und mittleres  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis (Bild unten) zwischen  $25^\circ\text{N}$  und  $75^\circ\text{N}$  für den Zeitraum September bis November 2000 in der Tropopausenregion (hier definiert als die Schicht von 2 km unterhalb bis 1 km oberhalb der lokalen Tropopause).

Betrachtet man nun die Verteilung der gemittelten relativen Feuchte, erkennt man eine sehr feuchte Tropopausenregion von Skandinavien ostwärts und nördlich von ca. 60°N. Dies kann durch einen im Mittel relativ kühlen Tropopausenbereich in dieser Region erklärt werden (siehe mittlere Temperatur, Bild mitte), bei relativ zur Umgebung geringem H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnis (siehe Bild unten). Weitere feuchte Regionen sind über Grönland, Nordkanada und Alaska zu finden, und weiter erkennt man eine sehr feuchte Region über dem mittleren Atlantik rund um 60°W, die sich quer über den Atlantik bis nach Europa hinein erstreckt. Dieses Feuchtgebiet über dem Atlantik wurde auch bei anderen Studien gefungen (z.B. Eckhardt et al., 2004), und steht in Zusammenhang mit der hohen Auftretshäufigkeit von Zyklonen (“storm tracks”) in diesem Gebiet. Ein weiterer “storm track” deutet sich quer über dem Ost-Pazifik zwischen 180°W und 140°W an.

Allgemein können hohe Werte der relativen Feuchte entweder durch niedrige Temperatur oder durch hohes H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnis erklärt werden. Vergleicht man die Felder in Abb. 6.2 untereinander, scheint jedoch die Verteilung der relativen Feuchte hauptsächlich durch die Temperatur kontrolliert zu sein, in Übereinstimmung mit den Argumenten von Kärcher und Haag (2003), siehe Abschnitt 5.1.1. So sind zwar beispielsweise von Kanada über den Nordatlantik bis nach Europa hinein sehr hohe Werte des Mischungsverhältnisses zu finden, die relativ hohen mittleren Temperaturen bewirken aber, daß die Werte von RHI eher moderat sind.

## 6.2.2 APSC-Simulationen

Im APSC-Modell wurde eine bimodale Größenverteilung der Aerosole initialisiert. Das trockene Größenspektrum der Partikel bestand aus einer Mode mit einer Aerosol-Anzahlkonzentration  $n_{\text{aer}} \simeq 400 \text{ cm}^{-3}$ , mit einem Massen-Medianradius  $r_m = 25 \text{ nm}$  und mit der Standardabweichung  $\sigma = 1.45$ , und einer weiteren Mode mit  $n_{\text{aer}} = 0.1 \text{ cm}^{-3}$ ,  $r_m = 0.5 \mu\text{m}$  und  $\sigma = 1.3$ . Bimodale Größenspektren mit einer Anzahlkonzentration von 0.1–0.001  $\text{cm}^{-3}$  Teilchen in der zweiten Mode werden in der Atmosphäre häufig gefunden (z.B. Schröder et al., 2002).

Es wurden zunächst zwei Simulationen durchgeführt, bei denen dieses bimodale Größenspektrum ausschließlich aus reinen H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O-Lösungstropfen bestand, welche homogen nach Koop et al. (2000) gefrieren. Es wurde dabei unterschieden zwischen einer Simulation, wo zunächst mesoskalige Temperaturoszillationen (siehe dazu Abschnitt 6.2.4) nicht berücksichtigt wurden (Modellfall “HOM-S”), und einer Simulation, wo der synoptischen Temperaturänderung mesoskalige Wellen überlagert wurden (Modellfall “HOM”). Weiter wurde eine Simulation durchgeführt, bei der dasselbe Partikelspektrum ausschließlich heterogen bei einer vorgeschriebenen kritischen Gefrierfeuchte von 130 % gefriert (Modellfall “HET”). Der Fall HET ist jedoch unrealistisch was die totale Anzahl von heterogenen Gefrierkernen betrifft ( $\sim 400 \text{ cm}^{-3}$ ). Solch hohe Konzentrationen von nicht-volatilen Partikeln werden im Bereich der Tropopause nicht gemessen (Minikin et al., 2003). Deshalb wurde auch eine Simulation durchgeführt, bei der angenommen wurde, daß lediglich die zweite Mode bei  $r_m = 0.5 \mu\text{m}$  aus heterogenen Gefrierkernen besteht. In dieser Simulation ist dann homogenes Gefrieren von Lösungstropfen und heterogenes Gefrieren von festen

Teilchen möglich (Modellfall “MIX”).

Bezüglich der Anzahl von aktiven IN in der Atmosphäre ist wenig bekannt. In der oberen Troposphäre scheint jedoch ein Wert von ca.  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  eher eine obere Grenze zu sein (Rogers et al., 1998). Aus diesem Grund wurden noch zwei weitere Simulationen MIX durchgeführt, bei denen die Anzahl von festen Gefrierkernen in der zweiten Mode lediglich  $0.01 \text{ cm}^{-3}$  bzw.  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  betrug. Bei den Modellsimulationen HET und MIX wurden den Trajektorien ebenfalls wie im Fall HOM mesoskalige Schwerewellen überlagert.

Die Lebensdauer von Zirren entlang der Trajektorien sollte möglichst realistisch simuliert werden. Aus diesem Grund wurde in den Simulationen die Sedimentation von Eiskristallen eingeführt. Die Abnahme der Eispartikelkonzentration zufolge von Sedimentation wird dabei mit Hilfe von Gleichung (3.17) berechnet. Für die vertikale Strecke  $\Delta z$  zur Berechnung der Fallzeit  $\tau$  wird eine konstante Schichtdicke (freier Parameter dieses einfachen Ansatzes) von 1 km angenommen. Diese Schichtdicke von 1 km wurde gewählt, um eine möglichst gute Übereinstimmung der simulierten Eispartikelkonzentrationen mit den INCA-Messungen zu gewährleisten (siehe dazu Abschnitt 6.4). Es sei hier noch einmal darauf hingewiesen, daß es sich bei den vorliegenden Simulationen um 0-dimensionale Boxsimulationen entlang der Trajektorien handelt. Die angenommene Sedimentation entspricht daher nicht einem räumlichen Vertikaltransport von Partikeln zwischen den Trajektorien, sondern sie ist lediglich ein empirischer Ansatz für den Sedimentationsverlust von Eispartikeln aus der angenommenen Tropopausenschicht.

### 6.2.3 Relative Feuchte und Auftrittshäufigkeit von Zirren

**ECMWF-Feuchte** In Abschnitt 5.1.2 wurde bereits darauf hingewiesen, daß die Auftrittshäufigkeit der Zirren auf den Trajektorien möglicherweise überschätzt wird, wenn das initialisierte  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis entlang der Trajektorien über einen längeren Zeitraum konstant gehalten wird, da in diesem Fall auf aufsteigenden Trajektorienabschnitten sehr häufig hohe Eisübersättigungen bis nahe die kritischen Gefrierfeuchten generiert werden. Um eine Überschätzung von eisübersättigten Gebieten in den vorliegenden Simulationen von Zirren zu vermeiden, wurde das  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis im APSC-Modell nicht konstant gehalten, sondern in eisuntersättigten Gebieten an die vorgegebene ECMWF-Feuchte auf den FLEXPART-Trajektorien gebunden.

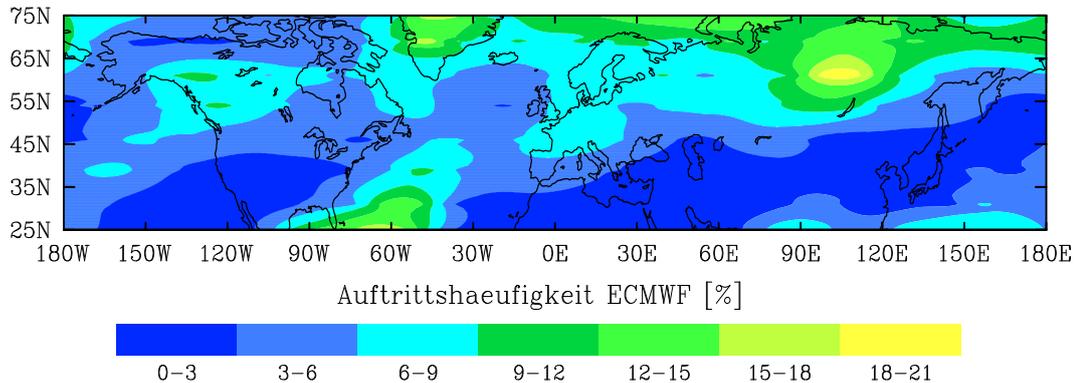
Es wurde schon erwähnt, daß das ECMWF-Modell keine Eisübersättigungen zuläßt. Um nun trotzdem mit dem APSC-Modell Zirren generieren zu können, wurde im Modell das  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis nur dann mit dem aktuellen Mischungsverhältnis auf den Trajektorien reinitialisiert, wenn die relative Feuchte in Bezug auf Eis weniger als 95 % betrug. Vergleiche von *in-situ*-Messungen von Wasserdampf mit ECMWF-Analysen bestätigen (Ovarlez und Velthoven, 1997), daß das ECMWF-Modell im untersättigten Bereich sehr realistische Feuchten liefert. Überschritt die Eisfeuchte den Grenzwert von 95 %, wurde nachfolgend das  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis im APSC-Modell für mindestens 6 Stunden konstant gehalten. Dies wird damit begründet, daß das ECMWF-Modell bei weiterhin fallender Temperatur in diesem Zeitraum jetzt Zirren bilden würde, jedoch keine realistische relative Feuchte mehr liefern kann. Wird im mikrophysikalischen Modell innerhalb

dieser 6 Stunden kein Gefrierprozeß durch Erreichen der kritischen Gefrierfeuchte initiiert, dann wird das aktuelle Mischungsverhältnis auf der Trajektorie reinitialisiert, wenn die ECMWF-Feuchte wieder unter 95 % gefallen ist. Kommt es jedoch zur Bildung einer Zirruswolke, wird das H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnis erst wieder reinitialisiert, wenn sich aufgrund einer synoptischen Temperaturzunahme auf der Trajektorie die Wolke vollständig aufgelöst hat.

**Definition der Auftrittshäufigkeit von Zirren** Mit Hilfe der mikrophysikalischen Simulationen in diesem Kapitel wurde die Auftrittshäufigkeit von Zirren berechnet. Diese Ergebnisse werden in Abschnitt 6.5 präsentiert werden. Zunächst soll hier gezeigt werden, welche großräumige Verteilung der Häufigkeit von Zirren sich ergibt, wenn Gebiete mit einer vorgegebenen ECMWF-Feuchte größer als 95 % als Gebiete mit potentieller Zirrusbildung betrachtet werden. Allgemein wird in diesem Kapitel die Auftrittshäufigkeit  $freq$  von Zirren in einer Gitterbox (siehe dazu Abschnitt 6.2.1) folgendermaßen definiert:

$$freq [\%] = \frac{\sum_{i=1}^{N_t} \text{Time}_{ice,i}}{\sum_{i=1}^{N_t} \text{Time}_{tot,i}} \times 100 \quad (6.1)$$

In (6.1) ist  $N_t$  die Anzahl der Trajektorien, die eine Gitterbox im untersuchten Zeitraum durchlaufen haben. Die Auftrittshäufigkeit ist dann das Verhältnis der über diese Trajektorien summierten Zeiten  $\sum_{i=1}^{N_t} \text{Time}_{ice,i}$ , zu denen Zirren ( $n_{ice} \neq 0$ ) auf den Trajektorien vorhanden waren, zur totalen Aufenthaltszeit  $\sum_{i=1}^{N_t} \text{Time}_{tot,i}$  der Trajektorien in einer Gitterbox.



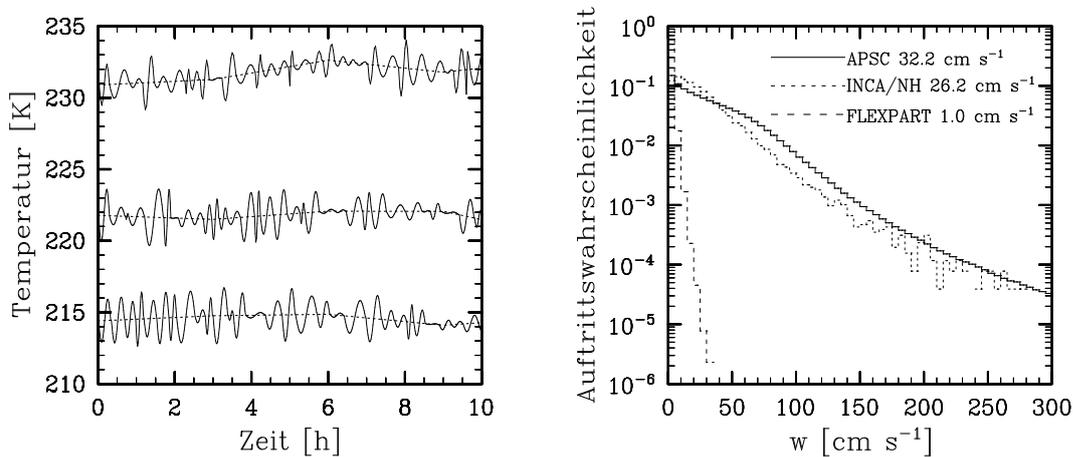
**Abb. 6.3:** Auftrittshäufigkeit von Gebieten mit RHI > 95 % auf Grundlage der ECMWF-Feuchte auf den Trajektorien.

In Abb. 6.3 ist die Auftrittshäufigkeit von Zirren dargestellt, die sich ergibt, wenn Gebiete auf den FLEXPART-Trajektorien mit einer ECMWF-Feuchte größer als 95 % als Zirren betrachtet werden. Diese Annahme wird unterstützt durch Vergleiche von *in-situ*-Messungen von Wasserdampf mit ECMWF-Analysen welche gezeigt haben, daß dort, wo Eisübersättigungen gemessen wurden, das EMCWF-Modell auch Wolken gebildet hat (Ovarlez et al., 2000). Diese regionale Auftrittshäufigkeit von Zirren in Abb. 6.3 wird

zunächst durch das ECMWF-Modell vorgegeben. In Abschnitt 6.5 wird gezeigt werden, wie diese Auftrittshäufigkeit modifiziert wird, wenn mit Hilfe der APSC-Simulationen die Mikrophysik entlang der Trajektorien berechnet wird.

### 6.2.4 Berücksichtigung mesoskaliger Schwerewellen

Aufgrund der Analysen der INCA-Messungen kamen Kärcher und Ström (2003) zum Schluß, daß die mesoskalige Variabilität des Vertikalwindes aufgrund von Schwerewellen in der Atmosphäre ein kontrollierender Faktor bei der Zirrusbildung ist. Die hohen Aufwindgeschwindigkeiten bzw. Kühlraten in diesen Wellen werden als Ursache für die hohen Eispartikelkonzentrationen (siehe Abschnitt 5.2.3) gesehen, die bei den Flugzeugmessungen während INCA beobachtet wurden.



**Abb. 6.4:** Das linke Bild zeigt die Überlagerung von 3 ausgewählten FLEXPART-Trajektorien (gestrichelte Temperaturverläufe) mit mesoskaligen Wellen (durchgezogene Temperaturverläufe). Das rechte Bild zeigt die Häufigkeitsverteilung der Aufwindgeschwindigkeiten für die FLEXPART-Trajektorien (grob gestrichelte Kurve), für die APSC-Simulationen bei Überlagerung der Trajektorien mit mesoskaligen Wellen (durchgezogene Kurve) und für die INCA-Messungen in Prestwick (NH, fein gestrichelte Kurve). In der Legende sind die mittleren Aufwindgeschwindigkeiten angegeben. In den Verteilungen wurden die einzelnen Werte der Aufwindgeschwindigkeit in  $5 \text{ cm s}^{-1}$ -Bins verteilt.

Mesoskalige Schwerewellen werden vom ECMWF-Modell nur sehr unzureichend aufgelöst, d.h. die verwendeten Trajektorien repräsentieren im Mittel nur die großräumigen Auftriebe in synoptischen Wellen. Dies führt zu einer deutlichen Unterschätzung der Eispartikelkonzentrationen in den Simulationen. Um realistische Eispartikelkonzentrationen generieren zu können, wurden deshalb die FLEXPART-Trajektorien mit “künstlichen” mesoskaligen Wellen überlagert, d.h. für die Temperatur  $T$  zum Zeitpunkt  $t$  auf den Trajektorien gilt:

$$T(t) = \bar{T} + A \sin(\Omega t) \quad (6.2)$$

Das linke Bild in Abb. 6.4 verdeutlicht diese Vorgangsweise anhand von 3 ausgewählten Trajektorien. In Gleichung (6.2) ist die mittlere Temperatur  $\bar{T}$  die vorgegebene ECMWF-Temperatur auf den Trajektorien (gestrichelte Linien in Abb 6.4, Bild links). Weiter sind  $\Omega = 2\pi/\tau_w$  die Kreisfrequenzen der Wellen mit den Perioden  $\tau_w$  und  $A$  die Amplituden.

Dieser Ansatz scheint zunächst sehr “ad hoc” zu sein. Solange es aber keine vernünftigen Parametrisierungen von mesoskaligen dynamischen Prozessen in großskaligen Modellen gibt, wird dies als eine Möglichkeit vorgeschlagen, um die hohen beobachteten Kühlraten in den mikrophysikalischen Simulationen wiedergeben zu können. Bezüglich der Wellenperioden  $\tau_w$  wurde eine Normalverteilung mit einer mittleren Periode von 1200 s (20 min) und einer Standardabweichung von 400 s angenommen, wobei auf den Trajektorien die Abfolge von unterschiedlichen Perioden stochastisch ist. Die Amplituden wurden in zeitlicher Abfolge stochastisch zwischen 0 und 2 K gleichverteilt. Diese Werte wurden durch die INCA-Messungen motiviert. Werden nämlich den FLEXPART-Trajektorien mesoskalige Wellen mit einer mittleren Periode und mit Amplituden wie eben genannt überlagert, dann erhält man in den mikrophysikalischen APSC-Simulationen eine ganz ähnliche Häufigkeitsverteilung der Aufwindgeschwindigkeiten wie während INCA. Weiter stehen diese angenommenen Perioden und Amplituden nicht im Widerspruch zu dem, was zur Zeit über Temperaturfluktuationen aufgrund von mesoskaligen Schwerewellen aus flugzeuggetragenen Messungen bekannt ist (Gary, 2002).

Allgemein entstehen Schwerewellen, wenn Luftpartikel in einer stabil geschichteten Atmosphäre aus ihrer Ruhelage gebracht werden. Dabei vollführen die Luftpartikel durch den Dichteunterschied zu den umgebenden Luftmassen eine vertikale Oszillation, wobei die Schwerkraft die Rückstellkraft bildet. Aus diesem Grund werden derartige Schwingungen von Luftpaketen auch als Schwereoszillationen bezeichnet. In der Atmosphäre können Schwerewellen vor allem durch Konvektion oder durch das Überströmen von Hindernissen (Gebirgen) angeregt werden.

Wie bereits erwähnt, ist die Voraussetzung für das Entstehen von Schwerewellen eine stabil geschichtete Atmosphäre. Die maximal mögliche Frequenz der Oszillationen ist durch die sogenannte Brunt-Väisälä-Frequenz  $N$  gegeben:

$$N^2 \equiv \frac{g}{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} > 0 . \quad (6.3)$$

In (6.3) ist  $g$  die Schwerebeschleunigung,  $\theta$  die potentielle Temperatur und  $z$  die Höhe. Für eine stabile Atmosphäre ist  $\frac{\partial \theta}{\partial z} > 0$ . Zuzufolge (6.3) ist  $N^2$  von der Stabilität der Atmosphäre abhängig. Studien über die statische Stabilität der Tropopause in den mittleren Breiten zeigen (Birner et al., 2002; Wirth, 2003), daß  $N^2$  in der mittleren Troposphäre typischerweise Werte in der Größenordnung von  $\sim 1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-2}$  aufweist, in der stabilen Stratosphäre ist  $N^2$  verhältnismäßig hoch ( $\sim 4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-2}$ ), d.h. der Tropopausenbereich ist durch einen Sprung in der Brunt-Väisälä-Frequenz gekennzeichnet. Die genannten Frequenzen entsprechen einer Periodendauer  $\tau_w = 2\pi/N$  von  $\sim 630 \text{ s}$  ( $\sim 10 \text{ min}$ ) bzw.  $\sim 310 \text{ s}$  ( $\sim 5 \text{ min}$ ). Zum Vergleich wurde in der vorliegenden Studie eine mittlere Periode der Temperaturoszillationen von 20 min angenommen.

Im folgenden soll mit Hilfe der Dispersionsgleichung für reine Schwerewellen die horizontale Wellenlänge  $\lambda_x$  der hier angenommenen Schwerewellen mit einer mittleren Periode

von 1200 s abgeschätzt werden. Unter der Annahme von rein 2-dimensionalen Schwerewellen ( $x, z$ -Koordinatensystem) und unter Vernachlässigung der Corioliskraft schreibt sich die Dispersionsgleichung für Schwerewellen (siehe z.B. Pichler, 1997):

$$\nu^2 (k^2 + m^2) = N^2 k^2 . \quad (6.4)$$

In (6.4) ist  $\nu$  die ‐intrinsic‐ Frequenz (Frequenz, die von einem Beobachter aus, der sich mit der Grundstömung mitbewegt, beobachtet wird),  $k = 2\pi/\lambda_x$  ist die horizontale Wellenzahl,  $m = 2\pi/\lambda_z$  die vertikale Wellenzahl und  $N$  die Brunt-Väisälä-Frequenz. Unter der Annahme  $k^2 \ll m^2$  erhält man aus (6.4) für die horizontale Wellenlänge  $\lambda_x$ :

$$\lambda_x^2 \approx \frac{N^2}{\nu^2} \lambda_z^2 . \quad (6.5)$$

Die Frequenz  $\nu$  muß stets kleiner als die Brunt-Väisälä-Frequenz sein, und zufolge (6.5) ist die horizontale Wellenlänge stets größer als die vertikale Wellenlänge  $\lambda_z$ . Um nun die horizontale Wellenlänge für die vorliegenden Wellen mit einer mittleren Frequenz  $\nu = 2\pi/1200$  s mit Hilfe von (6.5) abschätzen zu können, müssen Annahmen für  $N^2$  und  $\lambda_z^2$  getroffen werden. Bezüglich  $N^2$  wird ein mittlerer Wert im Bereich der Tropopause von  $\sim 2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-2}$  angenommen (Birner et al., 2002; Wirth, 2003). Beobachtungen zeigen, daß die vertikale Wellenlänge  $\lambda_z$  in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre typischerweise in der Größenordnung von  $\sim 2\text{--}3$  km liegt (z.B. Gardner et al., 1993; Allen und Vincent, 1995), in der mittleren Atmosphäre zwischen  $\sim 5\text{--}15$  km (z.B. Preuß, 2001). Berechnet man nun mit Hilfe von (6.5) für vertikale Wellenlängen zwischen 2–15 km die horizontale Wellenlänge  $\lambda_x$ , dann erhält man Werte zwischen  $\sim 5\text{--}40$  km. Diese Werte in der Größenordnung von einigen 10 km können als typische horizontale Wellenlängen für die in dieser Studie angenommenen Schwerewellen angesehen werden.

Das rechte Bild in Abb. 6.4 vergleicht die Auftrittswahrscheinlichkeit der Aufwindgeschwindigkeiten  $w$  während der INCA-Kampagne in Prestwick mit der Häufigkeitsverteilung von  $w$  in den FLEXPART-Simulationen und den APSC-Simulationen bei Überlagerung der Trajektorien mit mesoskaligen Wellen. Wie bereits erwähnt, werden Schwerewellen in den FLEXPART-Simulationen (grob gestrichelte Kurve) nicht aufgelöst. Die mittlere Aufwindgeschwindigkeit beträgt hier lediglich  $\sim 1 \text{ cm s}^{-1}$ . Demgegenüber wurden jedoch während der INCA-Kampagnen (hier nur NH-Messungen dargestellt, fein gestrichelte Kurve) sehr häufig Aufwinde von mehreren  $10 \text{ cm s}^{-1}$  gemessen. Bei Überlagerung der Trajektorien mit den mesoskaligen Wellen ergibt sich nun aber eine ganz ähnliche Verteilung von  $w$  in den APSC-Simulationen (durchgezogene Kurve). Dies erlaubt dann eine Simulation von ähnlich hohen Eispartikelkonzentrationen wie während der INCA-Kampagnen beobachtet wurden.

Wie bei den Simulationen in Kapitel 5 wurde im APSC-Modell wieder mit einem flexiblen Zeitschritt  $\Delta t$  gerechnet. Im Vergleich zu diesen Simulationen mußte jedoch hier durch die Annahme von mesoskaligen Wellen  $\Delta t$  bereits unterhalb von Eissättigung deutlich verkleinert werden (auf  $\Delta t = 4$  s bei RHI  $> 90$  %), ansonsten werden die hochfrequenten Wellen im kritischen eisübersättigten Bereich nicht richtig aufgelöst. Der Gefrierprozeß selbst wurde wieder mit  $\Delta t = 0.25$  s gerechnet.

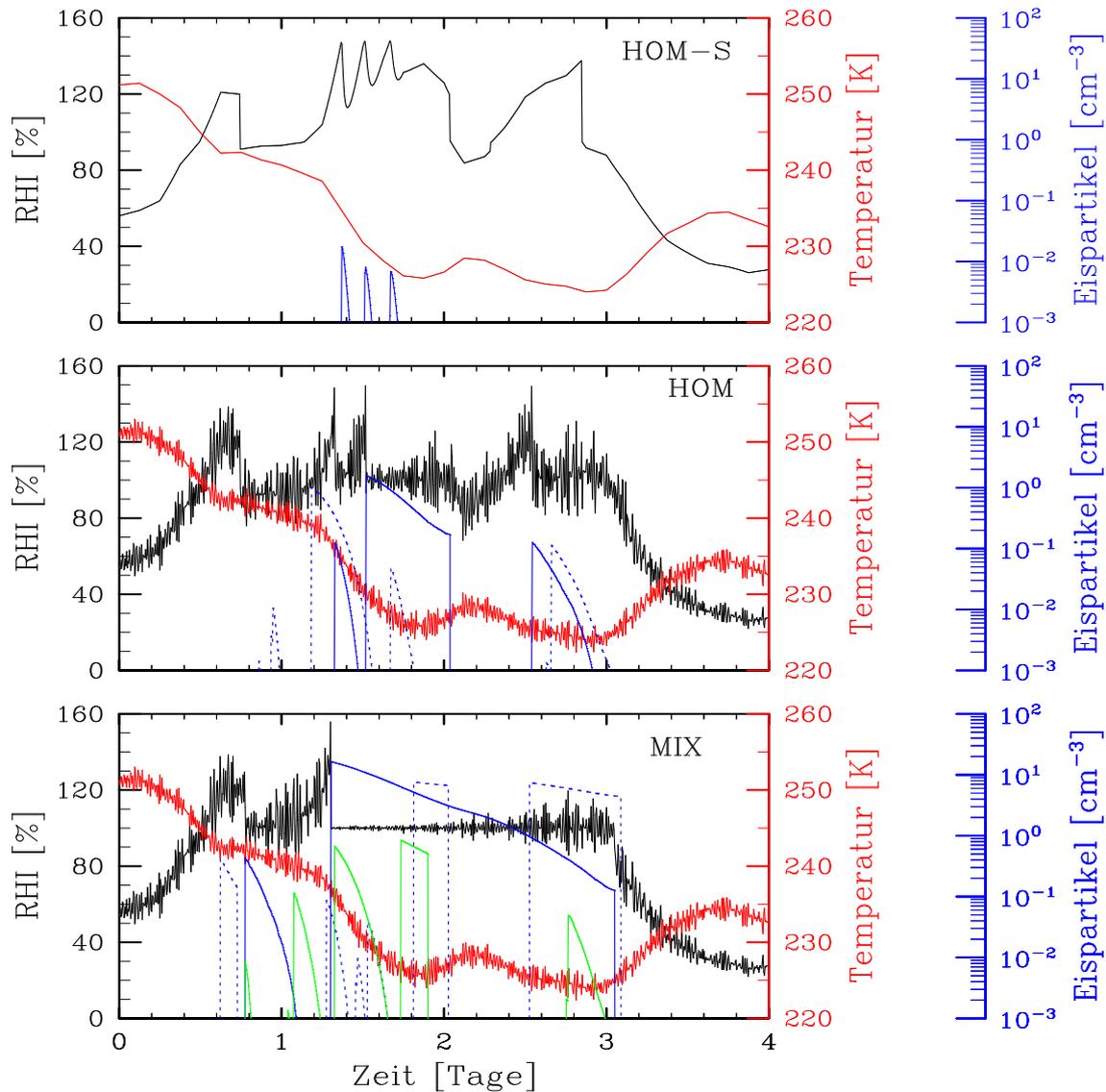
### 6.2.5 Exemplarische Zirrus-Simulationen

Abbildung 6.5 zeigt mikrophysikalische APSC-Simulationen entlang einer ausgewählten FLEXPART-Trajektorie. Im obersten Bild (HOM-S) wurde ausschließlich homogenes Gefrieren gerechnet, ohne zunächst mesoskalige Wellen der Trajektorie zu überlagern. Bei dieser rein synoptischen Kühlung kommt es zu drei Eiswolkenbildungen am Tag 2 der Simulation bei ca. 230 K, wobei die maximalen Eispartikelkonzentrationen (blaue Kurven) lediglich ca.  $0.01 \text{ cm}^{-3}$  betragen. Man beachte weiter den schnellen Abfall der Eispartikelkonzentrationen. Dies ist eine Folge der angenommenen Sedimentation, die in diesen Fällen sehr schnell erfolgt, da wenige, aber dafür sehr große Eispartikel vorliegen (siehe Abhängigkeit der Fallgeschwindigkeit von der Partikelgröße, Abb. 2.1). Beim Verlauf der relativen Feuchte im Fall HOM-S erkennt man, daß an drei Stellen am ersten und dritten Simulationstag die Feuchte instantan abfällt. Dies wird nicht durch Eispartikelwachstum verursacht (keine Eiswolkenbildungen zu diesen Zeitpunkten), sondern es wird an diesen Stellen das  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis reinitialisiert (siehe Abschnitt 6.2.3).

Ein gänzlich anderes Bild zeigt sich nun, wenn man dieser Trajektorie Wellen wie oben beschrieben überlagert (HOM, Bild mitte). Durch die sehr hohen Kühlraten auf den hochfrequenten Wellen (rote Kurve), kann die relative Feuchte länger über den kritischen Gefrierfeuchten für homogenes Gefrieren erhöht bleiben, weshalb mehr Eispartikel gebildet werden können. Man beachte die resultierenden hohen Eispartikelkonzentrationen. Je mehr Eispartikel gebildet werden, desto kleiner verbleiben diese durch die verstärkte Konkurrenz der Eispartikel untereinander um den verfügbaren Wasserdampf. Aus diesem Grund fällt die Eispartikelkonzentration speziell bei der zweiten Zirrusbildung im Fall HOM während der Lebensdauer der Wolke weniger stark ab als bei den beiden anderen HOM-Fällen, da hier die Sedimentation sehr langsam erfolgt.

Der Unterschied zwischen den Fällen HOM-S und HOM zeigt sehr deutlich, was die mesoskaligen Wellen in den Simulationen bewirken: eine höhere Auftrittswahrscheinlichkeit von Zirren und im Mittel deutlich höhere Eispartikelkonzentrationen. Werden nun zusätzlich zur Annahme der mesoskaligen Wellen auch die zugrundeliegenden Gefrierprozesse verändert, führt dies neuerlich zu Veränderungen bei der Wolkenbildung auf der gezeigten Trajektorie, dargestellt im untersten Bild von Abb. 6.5. Es wurde hier sowohl homogenes Gefrieren, als auch heterogenes Gefrieren von IN (Fall MIX) mit einer IN-Konzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  (durchgezogene blaue Kurven) bzw. einer IN-Konzentration von  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  (durchgezogene grüne Kurven) simuliert. Diese Simulationen machen deutlich, wie die Bildung von Zirren durch aktive IN modifiziert werden kann. Die Veränderungen sind deutlich sichtbar, aber weitaus schwächer als beim Übergang von HOM-S zu HOM. Beim Übergang von HOM zum Fall MIX blieb die Dynamik unverändert, d.h. die veränderten Zirruseigenschaften im Fall MIX kommen nur durch die veränderten Gefriereigenschaften des Aerosols zustande. Der gezeigte Verlauf der relativen Feuchte im Fall MIX gilt nur für die Simulation mit einer IN-Konzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  (durchgezogene blaue Kurve).

Bei der zweiten Zirrusbildung im Fall MIX (mit  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  IN) ist sehr deutlich das Gleichgewicht der relativen Feuchte bei Eissättigung innerhalb der Wolke zu sehen. Bei 1.5 Tagen wird durch die hohe Anzahl von Eiskristallen ( $\sim 15 \text{ cm}^{-3}$ ) mit einem mitt-



**Abb. 6.5:** Mikrophysikalische Simulationen entlang einer ausgewählten FLEXPART-Trajektorie mit homogenem Gefrieren bei synoptischer Kühlung (HOM-S, Bild oben), mit homogenem Gefrieren unter der Annahme von mesoskaligen Wellen (HOM, Bild mitte) oder mit beiden Gefrierprozessen unter der Annahme von Wellen (MIX, Bild unten). Die gestrichelten blauen Kurven zeigen den Verlauf der Eispartikelkonzentrationen, wenn die Abfolge von Frequenzen und Amplituden der Wellen verändert wird. Der gezeigte Verlauf der relativen Feuchte gilt jeweils nur für die durchgezogenen blauen Kurven. Im Fall MIX gilt die grüne durchgezogene Kurve für eine Simulation mit einer IN-Konzentration von  $0.001 \text{ cm}^{-3}$ .

leren Anzahlradius von  $\sim 12 \mu\text{m}$  die Amplitude der Oszillation der relativen Feuchte anfangs aufgrund schneller Kondensations- und Verdampfungsvorgänge in diesem Fall fast vollständig unterdrückt. Berechnet man die Zeitskala  $\tau_{\text{gas}}$ , auf welcher der verfügbare Wasserdampf an den Eispartikeln deponiert wird (siehe Gleichung (4.3)), dann erhält man bei 1.5 Tagen für  $\tau_{\text{gas}} \sim 9 \text{ s}$ . Mit zunehmender Lebensdauer dieser Wolke nimmt die Eispartikelkonzentration durch die angenommene Sedimentation zunehmend ab. Wie deutlich zu erkennen ist, wird dadurch die Oszillation der relativen Feuchte zunehmend weniger stark gedämpft. Berechnet man  $\tau_{\text{gas}}$  bei ca. 2.5 Tagen (ca. 3 Tagen) mit einer Eispartikelkonzentration von  $\sim 1 \text{ cm}^{-3}$  ( $\sim 0.15 \text{ cm}^{-3}$ ) und einem mittleren Anzahlradius von  $\sim 17 \mu\text{m}$  ( $\sim 20 \mu\text{m}$ ) erhält man für  $\tau_{\text{gas}} \sim 89 \text{ s}$  ( $\sim 540 \text{ s}$ ). Dies erklärt warum die Oszillation der relativen Feuchte mit der Zeit ansteigt.

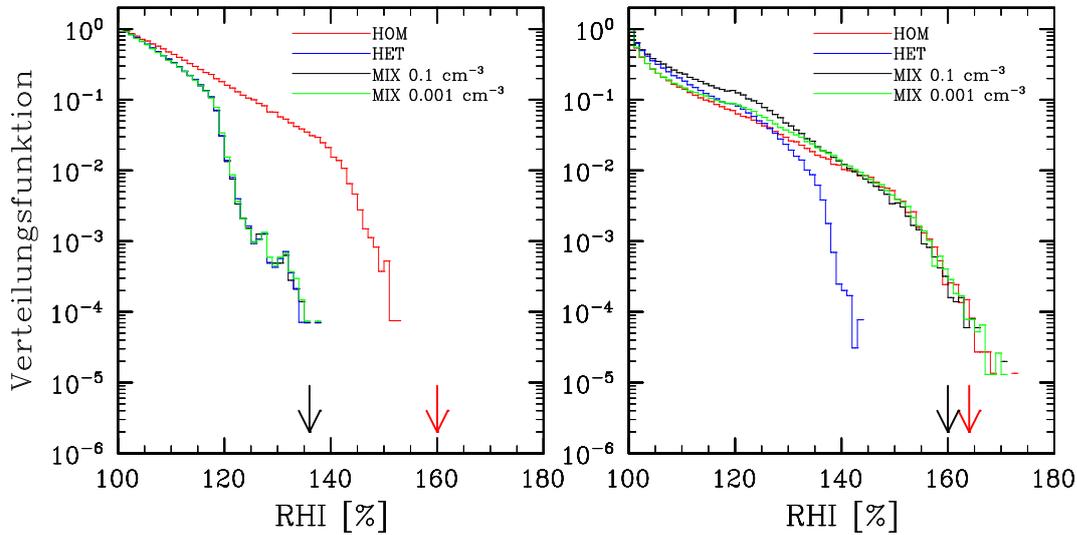
Bleiben die Gefriereigenschaften des Aerosols unverändert, wird jedoch die Dynamik auf den Trajektorien verändert, kann dies zu ähnlichen Änderungen in den Zirruseseigenschaften führen wie beim Übergang von HOM zu MIX. Anhand der gestrichelten blauen Kurven in Abb. 6.5 wird dies deutlich. Bei diesen Simulationen wurde lediglich die willkürliche Abfolge der Frequenzen und Amplituden der mesoskaligen Wellen, unter Beibehaltung der Form der statistischen Verteilungen und somit der Mittelwerte für Frequenz und Amplitude der Temperaturoszillationen, verändert, das zugrundeliegende Aerosol blieb unverändert. Allein diese Veränderung genügt aus, um sowohl die Auftrittshäufigkeit der Zirren, als auch die Anzahl der Eispartikel in den gebildeten Zirren neuerlich zu modifizieren. Im Fall MIX gilt die gestrichelte Kurve für den Fall mit einer IN-Konzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$ . Die zweite gestrichelte Zirrusbildung im Fall MIX ist einer jener Fälle, wo das heterogene Gefrieren die homogene Nukleation von Eiskristallen unterdrückt. Es gefriert in diesem Fall nur genau die Anzahl von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  festen Gefrierkernen, während in den anderen Fällen auch homogenes Gefrieren stattgefunden hat.

Zusammenfassend sei hier noch einmal festgestellt, daß mit Hilfe von Abb. 6.5 deutlich klar wird, daß die Bildung von Zirren nicht nur durch die Gefriereigenschaften des Aerosols kontrolliert wird, sondern mindestens in gleichem Umfang auch durch die Dynamik.

## 6.3 Statistik der relativen Feuchte

Analog zu Kapitel 5 sollen zunächst für die vorliegenden kombinierten FLEXPART/APSC-Simulationen die RHI-Verteilungen außerhalb und innerhalb von Zirren bestimmt werden, und wieder mit den INCA-Messungen verglichen werden. Der Unterschied zur Statistik der relativen Feuchte in Kapitel 5 besteht darin, daß nun mesoskalige Wellen berücksichtigt sind (in Kapitel 5 war dies nicht der Fall).

Abbildung 6.6 zeigt die Feuchteverteilung für die drei angenommenen Modellfälle HOM, HET und MIX mit einer IN-Konzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  bzw.  $0.001 \text{ cm}^{-3}$ . Betrachtet man zunächst die Verteilungen bei der Simulation mit homogenem Gefrieren (Fall HOM), zeigt sich wieder eine gute Übereinstimmung der Lage der Cut-offs mit den Cut-offs für die INCA-Messung SH (rote Pfeile). Bei der Simulation HOM in Kapitel 5 lag jedoch der Cut-off der RHI-Verteilung innerhalb von Zirren nur ein paar Prozent-



**Abb. 6.6:** RHI-Verteilungen außerhalb von Zirren (Bild links) und innerhalb von Zirren (Bild rechts) im Bereich der Tropopause, abgeleitet aus FLEXPART/APSC-Simulationen mit ausschließlich homogenem Gefrieren (HOM, rote Kurven), mit ausschließlich heterogenem Gefrieren (HET, blaue Kurven), oder mit der Kombination von homogenem und heterogenem Gefrieren (MIX, schwarze Kurven und grüne Kurven). Die schwarzen Pfeile markieren die Cut-offs der RHI-Verteilungen für die INCA-Messungen in Prestwick (NH), die roten Pfeile kennzeichnen die Cut-offs für die SH-Messungen in Punta Arenas (vergleiche mit Abb. 5.7 und Abb. 5.9).

punkte über dem Cut-off der Verteilung außerhalb von Zirren. In Abb. 6.6 unterscheiden sich diese Cut-offs nun im Fall HOM um  $\sim 15\%$ . Diese große Differenz zwischen kritischen Gefrierfeuchten und maximalen Übersättigungen im Fall HOM ist hier einerseits dadurch erklärbar, daß aufgrund der nun angenommenen mesoskaligen Wellen häufig sehr hohe Kühlraten vorherrschen, welche trotz des initiierten Gefrierprozesses die maximale Übersättigung in Wolken speziell bei niedrigen Temperaturen weit nach oben treiben können. Ein weiterer Grund für die große Differenz ist, daß bei den Verteilungen in Abb. 6.6 zur Unterscheidung der Gebiete innerhalb und außerhalb von Zirren das strenge Kriterium  $n_{\text{ice}} = 0$  angewandt wurde. Bei den Simulationen in Kapitel 5 galt als Kriterium für Gebiete außerhalb von Zirren eine Eispartikelkonzentration von  $n_{\text{ice}} < 0.001 \text{ cm}^{-3}$  (siehe Abb. 5.5). Dieses Kriterium macht jedoch hier keinen Sinn, da für den Modellfall MIX mit einer IN-Konzentration von nur  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  das Wolkenkriterium im Bereich der IN-Konzentration selbst läge. Das strenge Kriterium  $n_{\text{ice}} = 0$  hat in Abb. 6.6 zur Folge, daß der Cut-off der RHI-Verteilungen außerhalb von Zirren bei etwas niedrigeren Feuchten zuliegen kommt, als bei einem Kriterium  $n_{\text{ice}} < 0.001 \text{ cm}^{-3}$ . Dies erklärt auch, warum der Cut-off außerhalb von Zirren für die INCA-Messungen SH (roter Pfeil links)  $\sim 5\%$  höher ist als im Modellfall HOM.

Bei der Analyse der INCA-Feuchten innerhalb von Zirren (siehe Abschnitt 5.2.3) wurde deutlich, daß die Modellannahme mit ausschließlich heterogenem Gefrieren falsch ist, um die Gefrierprozesse bei der Zirrusbildung während der INCA-Kampagne in Prest-

wick (NH) zu erklären. Es wurde daher die Hypothese aufgestellt, daß im NH-Fall das heterogene Gefrieren von einer begrenzten Anzahl von IN zwar die Bildung von Zirren bei niedrigen kritischen Gefrierfeuchten initiiert, jedoch aufgrund der hohen vertikalen Windgeschwindigkeiten in vielen Fällen nicht das homogene Gefrieren von unterkühlten Lösungstropfen unterdrücken kann. Ansonsten wäre es nicht möglich zu erklären, warum der Cut-off innerhalb von Zirren weit über dem Cut-off außerhalb von Zirren im Fall der NH-Messungen liegt (siehe Abb. 5.9).

Mit Hilfe der vorliegenden Simulationen MIX (schwarze und grüne Kurven in Abb. 6.6) kann die Richtigkeit dieser Hypothese überprüft werden. Analog zum Modellfall HET liegt der Cut-off der RHI-Verteilung außerhalb von Zirren in den Fällen MIX wieder bei  $\sim 135\%$ , der Cut-off innerhalb der Zirren liegt nun jedoch bei  $\sim 165\%$ . Es zeigt sich nun eine ausgezeichnete Übereinstimmung der NH-Messungen während INCA mit diesen Modellfällen MIX (vergleiche die Lage der Cut-offs der schwarzen und grünen Verteilungen in Abb. 6.6 mit der Lage der schwarzen Pfeile). Dies bestätigt die oben angesprochene Hypothese, da im realistischen Fall MIX feste Gefrierkerne die Bildung von Zirruswolken bei Eisfeuchten nahe  $130\%$  zwar initiieren, aufgrund der angenommenen mesoskaligen Wellen mit sehr hohen Kühlraten auf den Trajektorien wird dadurch jedoch sehr häufig die homogene Nukleation von Eiskristallen nicht verhindert, weshalb nun maximale Übersättigungen auftreten, die im Bereich der Übersättigungen für den Modellfall HOM liegen. Bei ausschließlichem heterogenem Gefrieren liegt die maximale Übersättigung (siehe blaue Kurve im Bild rechts) jedoch weit unterhalb der gemessenen Werte. Allgemein macht dies noch einmal deutlich, daß die Annahme einer ausschließlich heterogenen Bildung von Zirren nicht haltbar ist, wenn bei atmosphärischen *in-situ*-Messungen Eisfeuchten nahe der homogenen Gefrierfeuchten beobachtet werden.

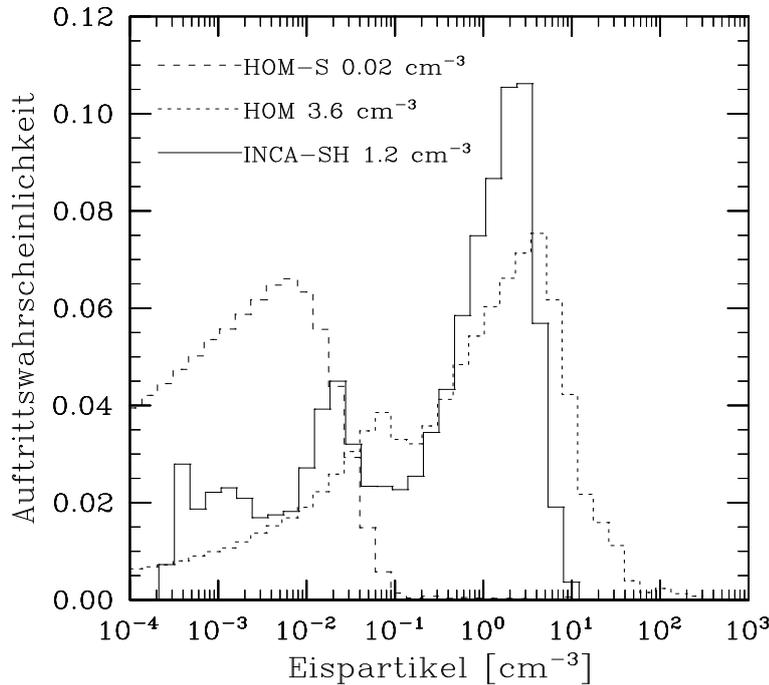
## 6.4 Statistik der Eispartikelkonzentrationen

In diesem Abschnitt wird gezeigt, wie sich die simulierten Häufigkeitsverteilungen der Eispartikelkonzentrationen verändern, wenn entweder die Dynamik auf den zugrundeliegenden Trajektorien verändert wird, oder wenn unterschiedliche Gefrierereigenschaften des Aerosols angenommen werden.

### 6.4.1 Einfluß der Dynamik

Anhand der exemplarischen Zirrus-Simulationen in Abschnitt 6.2.5 wurde bereits deutlich, daß die Annahme von mesoskaligen Wellen auf den Trajektorien zu höheren Eispartikelkonzentrationen in den gebildeten Zirren führt. Grund dafür sind die hohen Kühlraten, welche die Zeitspanne im Vergleich zu Gefrierprozessen bei niedrigen Kühlraten verlängern, während der die relative Feuchte oberhalb der kritischen Gefrierfeuchte verbleiben kann.

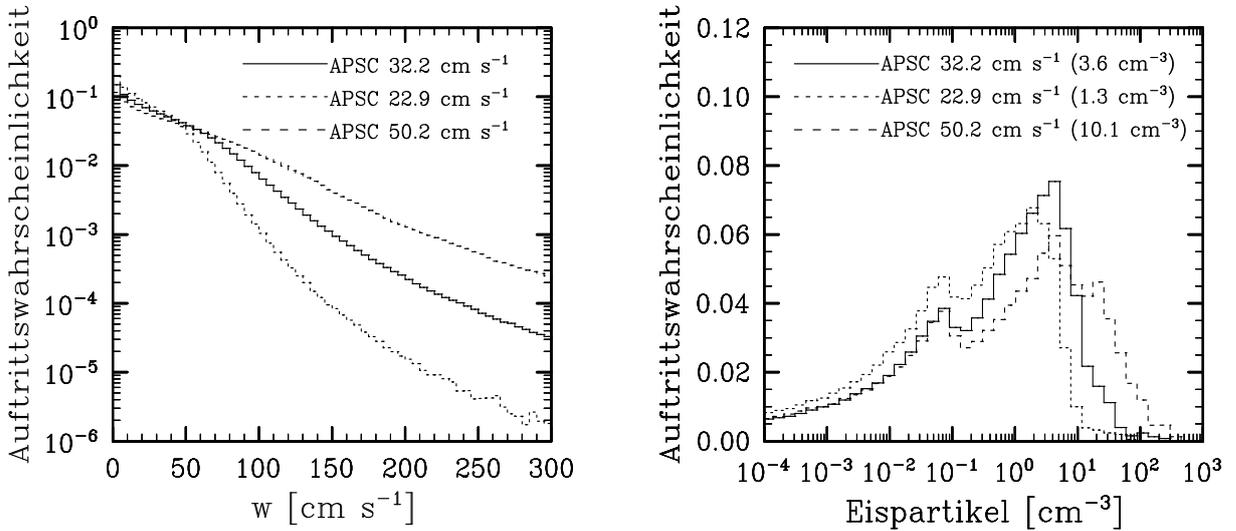
Abbildung 6.7 vergleicht die Häufigkeitsverteilungen der Eispartikelkonzentrationen für die Modellsimulationen ohne Wellen (HOM-S) und mit Wellen (HOM). Diese Simu-



**Abb. 6.7:** Häufigkeitsverteilungen der Eisparkonzentrationen für die Modellfälle HOM-S (grob gestrichelte Kurve) und HOM (fein gestrichelte Kurve). Die durchgezogene Kurve zeigt die INCA-Messungen in Punta Arenas (SH). In der Legende sind die mittleren Eisparkonzentrationen angegeben.

lationen mit homogenem Gefrieren werden mit den INCA-Messungen in Punta Arenas (SH) verglichen (durchgezogene Kurve), von denen angenommen wird, daß homogenes Gefrieren die Zirrusbildung dominiert hat (siehe Kapitel 5). Vergleicht man zunächst den Modellfall mit rein synoptischer Kühlung (grob gestrichelte Kurve) mit den INCA-Messungen wird klar, warum in der vorliegenden Studie subskalige Wellen berücksichtigt wurden. Es sollte vermieden werden, daß die Eisparkonzentrationen in den Simulationen drastisch unterschätzt werden. Wie man erkennt, ist die synoptische Verteilung der Eisparkonzentration in deutlichem Widerspruch zu den INCA-Messungen. Man beachte die geringe mittlere Konzentration von  $0.02 \text{ cm}^{-3}$  im Fall HOM-S gegenüber  $1.2 \text{ cm}^{-3}$  im Fall INCA-SH.

Die Modellsimulation mit homogenem Gefrieren und mit Schwerewellen (fein gestrichelte Kurve) ergibt nun eine Verteilung der Eisparkonzentration, die den INCA-Messungen sehr ähnlich ist. Sowohl die Messungen als auch die Simulation zeigen die höchste Auftretswahrscheinlichkeit bei Eisparkonzentrationen zwischen  $1\text{--}4 \text{ cm}^{-3}$ . Die mittlere Konzentration im Fall HOM beträgt  $3.6 \text{ cm}^{-3}$ . Diese Moden mit den hohen Eisparkonzentrationen resultieren direkt aus der homogenen Bildung von Zirren unter hohen Aufwindgeschwindigkeiten bzw. Kühlraten. Dies zeigt der Unterschied zwischen den Modellsimulationen HOM-S und HOM. Eine exakte Übereinstimmung des Modellfalles HOM mit den INCA-Messungen ist nicht gegeben, da erstens das Spektrum des



**Abb. 6.8:** Das linke Bild zeigt Modellannahmen für den Vertikalwind mit im Mittel höheren Aufwindgeschwindigkeiten (Mittel  $50.2 \text{ cm s}^{-1}$ , grob gestrichelte Kurve) oder niedrigeren Windgeschwindigkeiten (Mittel  $22.9 \text{ cm s}^{-1}$ , fein gestrichelte Kurve) gegenüber dem Referenzfall mit einem Mittelwert von  $32.2 \text{ cm s}^{-1}$  (durchgezogene Kurve). Das rechte Bild zeigt für diese Modellfälle die resultierenden Häufigkeitsverteilungen der Eispartikelkonzentrationen. Die Werte in den Klammern sind die mittleren Eispartikelkonzentrationen.

Vertikalwindes in der Simulation nur eine Näherung der beobachteten Vertikalwinde ist (siehe Abb. 6.4), und zweitens wird die Simulation durch Größeneffekte und Sedimentation beeinflusst (siehe Abschnitt 6.4.3). Entscheidend ist hier jedoch, daß nun die Simulation realistische Eispartikelkonzentrationen widerspiegelt, was die Wichtigkeit von mesoskaligen Wellen bei der Zirrusbildung unterstreicht.

Die INCA-Messungen zeigen ein zweites Maximum der Aufttrittswahrscheinlichkeit bei einer Eispartikelkonzentration von  $\sim 0.02 \text{ cm}^{-3}$ . Diese zweite Mode tritt auch in der Simulation bei  $\sim 0.1 \text{ cm}^{-3}$  in Erscheinung (Größeneffekt, siehe Abschnitt 6.4.3). Wie die Verteilung bei den niedrigen Konzentrationen in den Messungen zustande kommt, ist nicht eindeutig klar. Allgemein können neben der Bildung von Zirren unter sehr niedrigen Kühlraten geringe Eispartikelkonzentrationen auch von Eispartikelwachstum und Sedimentation existierender Eispartikel oder auch von Verdünnungseffekten in divergierenden Luftmassen herrühren. Kärcher und Ström (2003) vermuten, daß Sedimentation während der INCA-Messungen eine untergeordnete Rolle gespielt hat. Vielmehr könnten Verdünnungseffekte und unterschiedliche Gefriereigenschaften der Aerosolpartikel die Eispartikelkonzentrationen beeinflusst haben. Wie die Eispartikelkonzentrationen durch unterschiedliche Gefriereigenschaften modifiziert werden, wird hier in Abschnitt 6.4.2 gezeigt werden.

Der dynamische Einfluß auf die Eispartikelkonzentrationen in den Zirren soll hier auch dadurch gezeigt werden, indem das Spektrum des Vertikalwindes bzw. der Kühlraten in den Simulationen mit homogenem Gefrieren verändert wird. Im Referenzfall wurde ei-

ne mittlere Wellenperiode  $\tau_w$  von 1200 s angenommen und die Amplitude stochastisch zwischen 0 und 2 K gleichverteilt (siehe Abschnitt 6.2.4). Es wurde nun zusätzlich eine Simulation mit homogenem Gefrieren durchgeführt, in welcher die Auftrittshäufigkeit von schnellen Kühlungen bzw. hohen vertikalen Windgeschwindigkeiten erhöht wurde ( $\tau_w = 900$  s, Amplitude 0–2.3 K), und weiter eine Simulation mit geringerer Häufigkeit von schnellen Wellen ( $\tau_w = 1500$  s, Amplitude 0–1.7 K). Die Standardabweichung der Wellenperiode von 400 s blieb in diesen Simulationen unverändert. Das linke Bild in Abb. 6.8 zeigt die entsprechenden Häufigkeitsverteilungen der Aufwindgeschwindigkeiten für diese Modellannahmen.

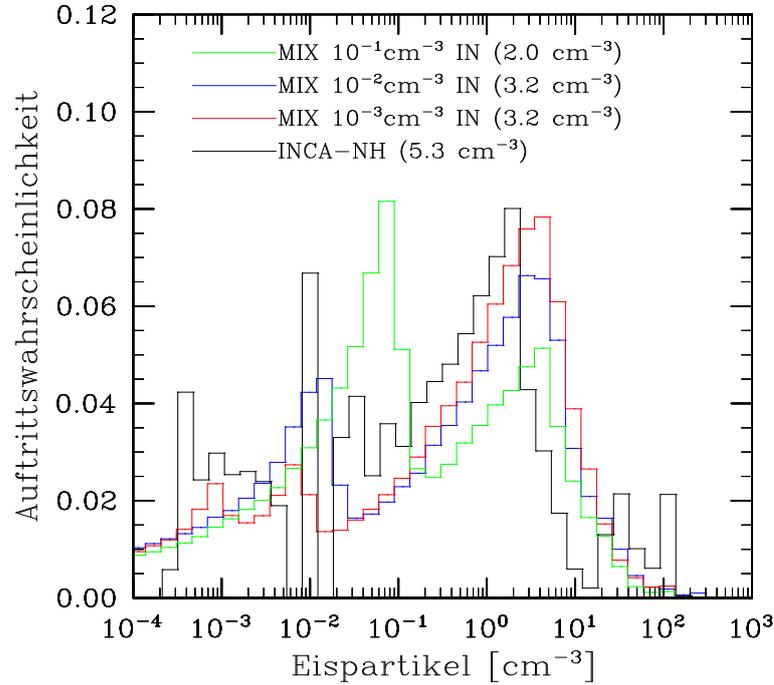
Werden im Mittel höhere vertikale Windgeschwindigkeiten angenommen, dann führt dies zu einer deutlichen Erhöhung der mittleren Eispartikelkonzentration auf  $10.1 \text{ cm}^{-3}$  in den Zirren (siehe rechtes Bild in Abb. 6.8, grob gestrichelte Kurve). Bei Verringerung der Aufwindgeschwindigkeiten nimmt entsprechend die mittlere Eispartikelkonzentration ab ( $1.3 \text{ cm}^{-3}$ , fein gestrichelte Kurve). Wie Abb. 6.8 zeigt, wird durch die Annahme von höheren Windgeschwindigkeiten die Häufigkeitsverteilung bei niederen Eispartikelkonzentrationen (zweite Mode) nicht beeinflusst. Die Mode bei den hohen Konzentrationen wird jedoch deutlich verbreitert. Anders nimmt jedoch die Auftrittshäufigkeit von niederen Eispartikelkonzentrationen deutlich zu, wenn die vertikalen Auftriebe weniger stark sind. Dies unterstreicht einmal mehr, daß hohe Eispartikelkonzentrationen in Zirren mit hohen Aufwindgeschwindigkeiten in Verbindung stehen.

### 6.4.2 Einfluß der Gefriereigenschaften

Einleitend in dieser Arbeit wurde erwähnt, daß sich die Untersuchung des Einflusses unterschiedlicher Gefriermechanismen auf die mikrophysikalischen Eigenschaften von Zirren auf die Annahme von heterogenen Gefrierkernen bezieht. Zu diesem Zweck wurde in den Simulationen mit homogenem und heterogenem Gefrieren (Modellfälle MIX) die Konzentration von heterogenen Gefrierkernen zwischen  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  und  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  variiert.

Abbildung 6.9 zeigt die resultierenden Häufigkeitsverteilungen der Eispartikelkonzentrationen für die Modellfälle MIX. Die Statistik der relativen Feuchte (siehe Abschnitt 6.3) hat gezeigt, daß durch eine Kombination von homogenem und heterogenem Gefrieren die Feuchtemessungen während der INCA-Kampagne in Prestwick (NH) erklärt werden können. Aus diesem Grund ist in Abb. 6.9 nun den Modellfällen MIX die Häufigkeitsverteilung der Eispartikelkonzentration für die INCA-Messungen in Prestwick gegenübergestellt. Diese NH-Messungen sind den SH-Messungen sehr ähnlich (vergleiche durchgezogene Kurve in Abb. 6.7 und schwarze Kurve in Abb. 6.9), was bereits impliziert, daß auch im NH-Fall häufig homogenes Gefrieren stattgefunden haben muß. Im Unterschied zu den SH-Messungen zeigt sich im NH-Fall jedoch noch eine dritte Mode in der Häufigkeitsverteilung bei Eispartikelkonzentrationen  $> 10 \text{ cm}^{-3}$ . Diese sehr hohen Eispartikelkonzentrationen stehen in Zusammenhang mit Messungen in stark verschmutzten, konvektiven Luftmassen (Kärcher und Ström, 2003).

Bei der zuvor betrachteten Häufigkeitsverteilung der Eispartikelkonzentration im Modellfall mit ausschließlich homogenem Gefrieren zeigte sich ein primäres Maximum bei



**Abb. 6.9:** Häufigkeitsverteilungen der Eispartikelkonzentrationen für die Modellfälle mit homogenem und heterogenem Gefrieren (MIX) mit einer IN-Konzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  (grüne Kurve),  $0.01 \text{ cm}^{-3}$  (blaue Kurve) oder  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  (rote Kurve). Die schwarze Kurve zeigt die INCA-Messungen in Prestwick (NH).

Konzentrationen zwischen  $1\text{--}10 \text{ cm}^{-3}$ , und eine zweite kleinere Mode bei  $\sim 0.1 \text{ cm}^{-3}$ . Wird nun sowohl homogenes als auch heterogenes Gefrieren mit einer IN-Konzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  simuliert (grüne Kurve in Abb. 6.9), dann zeigt sich im Vergleich zum Fall HOM ein gegensätzliches Bild. Die Häufigkeitsverteilung weist nun ein ausgeprägtes Maximum bei  $\sim 0.1 \text{ cm}^{-3}$  auf, während die Wahrscheinlichkeit von hohen Eispartikelkonzentrationen deutlich verringert ist. Dies kommt daher, weil nun die heterogenen Gefrierkerne das homogene Gefrieren der viel zahlreicheren flüssigen Lösungstropfen sehr häufig unterdrücken. Entscheidend ist hier die niedrige heterogene Gefrierfeuchte ( $\sim 130 \%$ , siehe Abschnitt 6.2.2). Bei Zirrusbildungen unter geringen Aufwindgeschwindigkeiten können dann sehr häufig aufgrund von Eispartikelwachstum die viel höheren homogenen Gefrierfeuchten nicht mehr erreicht werden, d.h. in vielen Fällen gefriert nur die maximale Anzahl von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  festen Gefrierkernen, während homogenes Gefrieren nicht mehr stattfindet. Lediglich bei sehr hohen Kühlraten kann trotz des initiierten heterogenen Gefrierprozesses auch das homogene Gefrieren ausgelöst werden. Im Mittel führt dies zu geringeren Eispartikelkonzentrationen (Mittelwert  $2 \text{ cm}^{-3}$ ) in den Zirren.

Dieser Einfluß von heterogenen Gefrierkernen wird abgeschwächt, wenn die Konzentration dieser Kerne verringert wird. Die blaue (rote) Kurve in Abb. 6.9 zeigt die Verteilung der Eispartikelkonzentrationen, wenn die IN-Konzentration  $0.01 \text{ cm}^{-3}$  ( $0.001 \text{ cm}^{-3}$ ) beträgt. Wie man deutlich erkennt, nimmt die Häufigkeit von hohen Eispartikelkonzentrationen

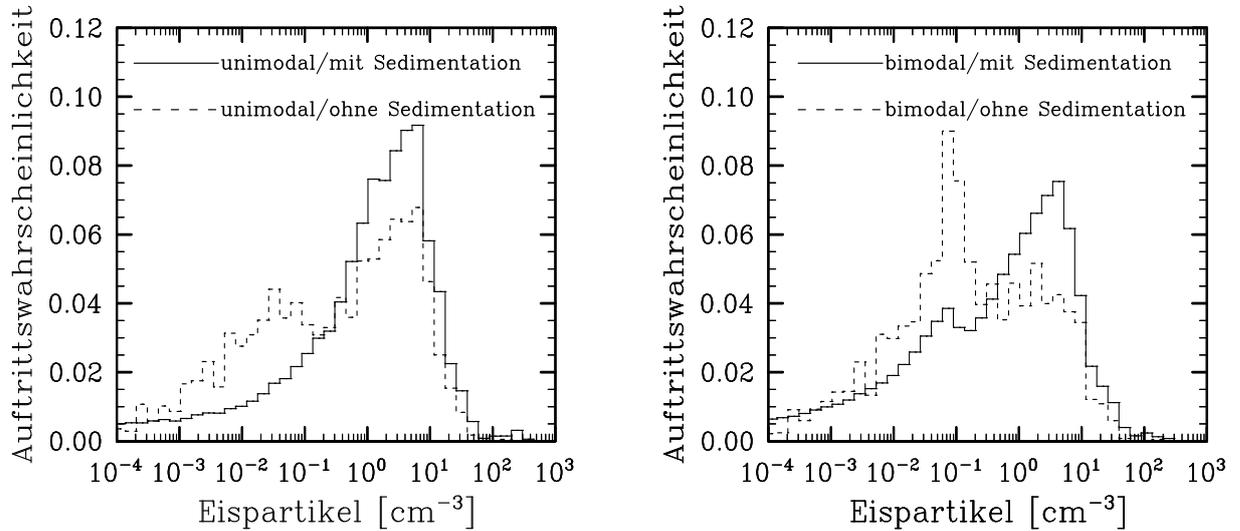
trationen in den Zirren wieder zu, wenn die Konzentration von heterogenen Gefrierkernen verringert wird. Gleichzeitig nimmt die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten geringer Eispartikelkonzentrationen ab. Bei einer IN-Konzentration von  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  ist der Effekt, daß homogenes Gefrieren unterdrückt wird, kaum mehr gegeben, da ist diesem Fall die Auftrittswahrscheinlichkeit hoher Eispartikelkonzentrationen ähnlich hoch ist wie im Fall HOM.

Es wurde bereits erwähnt, daß bezüglich der Anzahl von aktiven heterogenen Gefrierkernen in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre sehr wenig bekannt ist. Der Vergleich der modellierten Häufigkeitsverteilungen in Abb. 6.9 mit den INCA-Messungen legt jedoch den Schluß nahe, daß zumindest für die hier untersuchten INCA-Messungen diese Konzentration von IN unterhalb von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  lag, da die Modellsimulation mit einer IN-Konzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  keine gute Übereinstimmung mit der gemessenen Häufigkeitsverteilung zeigt. Eine genaue Festlegung der IN-Konzentration für die Messungen in Prestwick (NH) ist schwierig, aber vermutlich lag sie zwischen  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  und  $0.01 \text{ cm}^{-3}$ . In diesen Fällen stimmen nämlich die simulierten Häufigkeitsverteilungen der Eispartikelkonzentrationen am besten mit den INCA-Messungen überein.

### 6.4.3 Größeneffekte und Sedimentationseinfluß

In den vorliegenden Simulationen wurde eine bimodale Größenverteilung der Aerosolpartikel angenommen, mit einer zweiten Mode von sehr großen Partikeln und einer Anzahlkonzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  (siehe Abschnitt 6.2.2). Anhand der Modellsimulation mit homogenem Gefrieren und unter der Annahme von mesoskaligen Wellen (HOM) soll in diesem Abschnitt gezeigt werden, inwieweit neben der Dynamik und den Gefriereigenschaften der Aerosolpartikel auch Größeneffekte und Sedimentation die Eispartikelkonzentrationen in den Simulationen beeinflussen.

Die durchgezogene Kurve im rechten Bild von Abb. 6.10 zeigt die Häufigkeitsverteilung der Eispartikelkonzentration für den Referenzfall mit homogenem Gefrieren, einer bimodalen Größenverteilung und unter der Annahme von Sedimentation der Eispartikel. Die Verteilung zeigt zwei Moden: Eine stark ausgeprägte Mode bei hohen Eispartikelkonzentrationen, und eine zweite kleinere Mode bei  $\sim 0.1 \text{ cm}^{-3}$ . Während die erste Mode bei hohen Konzentrationen direkt mit der Dynamik in Zusammenhang gebracht werden kann (siehe dazu Abschnitt 6.4.1), ist diese zweite kleinere Mode auf die angenommene Größenverteilung der flüssigen Aerosolpartikel zurückzuführen. In Abhängigkeit von der Kühlrate und Temperatur treten nämlich in den Simulationen häufig Fälle auf, bei denen lediglich die sehr großen Lösungstropfen mit geringer Anzahlkonzentration ( $0.1 \text{ cm}^{-3}$ ) jedoch hoher Gefrierwahrscheinlichkeit durch großes Partikelvolumen homogen gefrieren, und gleichzeitig durch Depositionswachstum der nukleierten Eispartikel das Gefrieren der viel häufigeren kleineren Lösungstropfen unterbinden. Dieser Effekt fehlt, wenn in der Simulation mit homogenem Gefrieren die zweite Mode der Aerosolgrößenverteilung mit der Anzahlkonzentration  $n_{\text{aer}} = 0.1 \text{ cm}^{-3}$  nicht berücksichtigt wird, und lediglich eine unimodale Größenverteilung mit  $n_{\text{aer}} \simeq 400 \text{ cm}^{-3}$  und dem Massen-Medianradius  $r_m = 25 \text{ nm}$  (siehe Abschnitt 6.2.2) initialisiert wird. Die resultierende Häufigkeitsverteilung

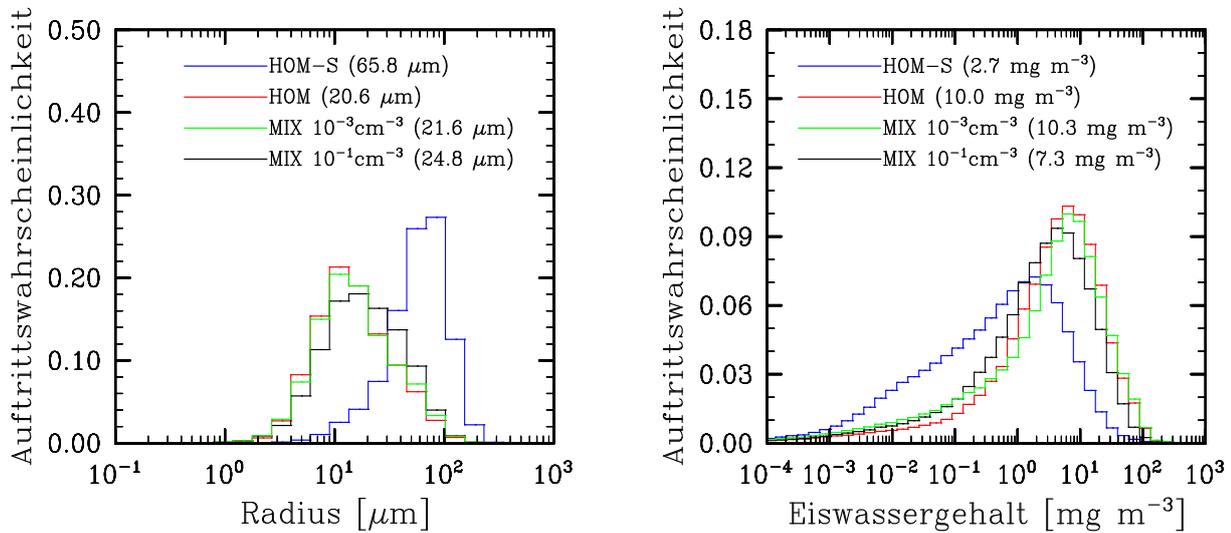


**Abb. 6.10:** Häufigkeitsverteilungen der Eispartikelkonzentrationen für den Modellfall HOM. Im linken Bild wurde eine unimodale Größenverteilung der Aerosolpartikel angenommen, wobei Sedimentation der Eispartikel berücksichtigt (durchgezogene Kurve) oder vernachlässigt (gestrichelte Kurve) wurde. Das rechte Bild zeigt die entsprechenden Häufigkeitsverteilungen bei Annahme einer bimodalen Größenverteilung.

der Eispartikelkonzentration (durchgezogene Kurve im linken Bild von Abb. 6.10) ist dann ebenfalls unimodal, mit einer etwas höheren Auftrittswahrscheinlichkeit von hohen Eispartikelkonzentrationen.

Dieser Größeneffekt wird umso mehr hervorgehoben, wenn Sedimentation der Eispartikel vernachlässigt wird (siehe gestrichelte Kurve im rechten Bild von Abb. 6.10). In diesem Fall ist die Mode bei  $\sim 0.1 \text{ cm}^{-3}$  sehr stark ausgeprägt, da ohne Sedimentation jene Zirrusfälle, wo nur die großen Partikel gefrieren, sehr lange existieren können, und dadurch auch auf den Trajektorien nachfolgend häufig Zirrusfälle mit hohen Eispartikelkonzentrationen verhindern (siehe geringere Auftrittswahrscheinlichkeit bei hohen Eispartikelkonzentrationen im Fall ohne Sedimentation). Wird die Sedimentation in der Simulation mit einer unimodalen Größenverteilung vernachlässigt (gestrichelte Kurve links), hat dies keine große Auswirkung auf die Häufigkeit von hohen Eispartikelkonzentrationen, da der genannte Größeneffekt fehlt, jedoch die Auftrittswahrscheinlichkeit von niederen Konzentrationen nimmt stark zu, da große Eispartikel (mit geringen Konzentrationen) nicht mehr durch Sedimentation beeinflusst werden.

Die Analysen der Eispartikelkonzentrationen während INCA (durchgezogene Kurve in Abb. 6.7) zeigen eine deutlich geringere Häufigkeit von niederen Eispartikelkonzentrationen als die Modellfälle ohne Sedimentation. Wird jedoch Sedimentation mit  $\Delta z = 1 \text{ km}$  (siehe Abschnitt 6.2.2) eingeführt, dann erhält man eine ganz ähnliche Häufigkeitsverteilung der Eispartikelkonzentration wie bei den INCA-Messungen (vergleiche die durchgezogene Kurve mit der fein gestrichelten Kurve in Abb. 6.7). Dies ist letztendlich auch ein Grund, warum Sedimentation in den vorliegenden Simulationen eingeführt wurde.



**Abb. 6.11:** Häufigkeitsverteilungen der Eispartikelradien (Bild links) und der Eiswassergehalte (Bild rechts) für die Modellsimulationen HOM-S (blaue Kurven), HOM (rote Kurven), MIX mit einer IN-Konzentration von  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  (grüne Kurven) und MIX mit einer IN-Konzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  (schwarze Kurven).

#### 6.4.4 Statistik von Eispartikelradien und Eiswassergehalte

Aus der Statistik der Eispartikelkonzentrationen ging hervor, daß ohne die Annahme von mesoskaligen Wellen auf den Trajektorien die Eispartikelkonzentrationen in den gebildeten Zirren im Mittel sehr niedrig sind. Niedrige Konzentrationen von Eispartikeln in den Zirren erlauben jedoch ein verstärktes Wachstum der Eispartikel, solange die relative Feuchte in Zirren oberhalb der Eissättigung verbleibt. Grund dafür ist die geringere Konkurrenz der Eispartikel um den verfügbaren Wasserdampf im Vergleich zu Zirren mit hohen Eispartikelkonzentrationen.

Dieser Zusammenhang zwischen Konzentration und Größe der Eispartikel wurde bereits anhand der exemplarischen Simulationen in Abschnitt 6.2.5 deutlich. Es zeigte sich bei Zirrusfällen mit geringen Eispartikelkonzentrationen im Vergleich zu Fällen mit hohen Konzentrationen ein schnellerer Abfall der Partikelkonzentration durch schnellere Sedimentation der in diesen Fällen größeren Eispartikel. Die Statistik der Eispartikelradien für die Gesamtzahl der Zirrusereignisse bestätigt nun (siehe Abb. 6.11, Bild links), daß im Modellfall HOM-S (homogenes Gefrieren bei rein synoptischer Kühlung) deutlich größere Eispartikel vorliegen als bei den Modellfällen mit hohen Kühlraten zufolge der angenommenen Schwerewellen (HOM und MIX). Die Unterschiede zwischen den Modellfällen HOM und MIX sind im Vergleich dazu eher gering. In den Fällen mit homogenem und heterogenem Gefrieren (MIX) liegen im Mittel etwas größere Eispartikel vor als im Fall im ausschließlich homogenem Gefrieren (HOM), da durch die niedrigere heterogene Gefrierfeuchte die sehr großen Partikel öfter gefrieren können bzw. das homogene Gefrieren der kleinen Partikel häufig unterdrückt wird. Dieser Einfluß der heterogenen Gefrierkerne ist

wiederum von deren Konzentration abhängig (vergleiche die in Klammern angegebenen mittleren Radien in Abb. 6.11).

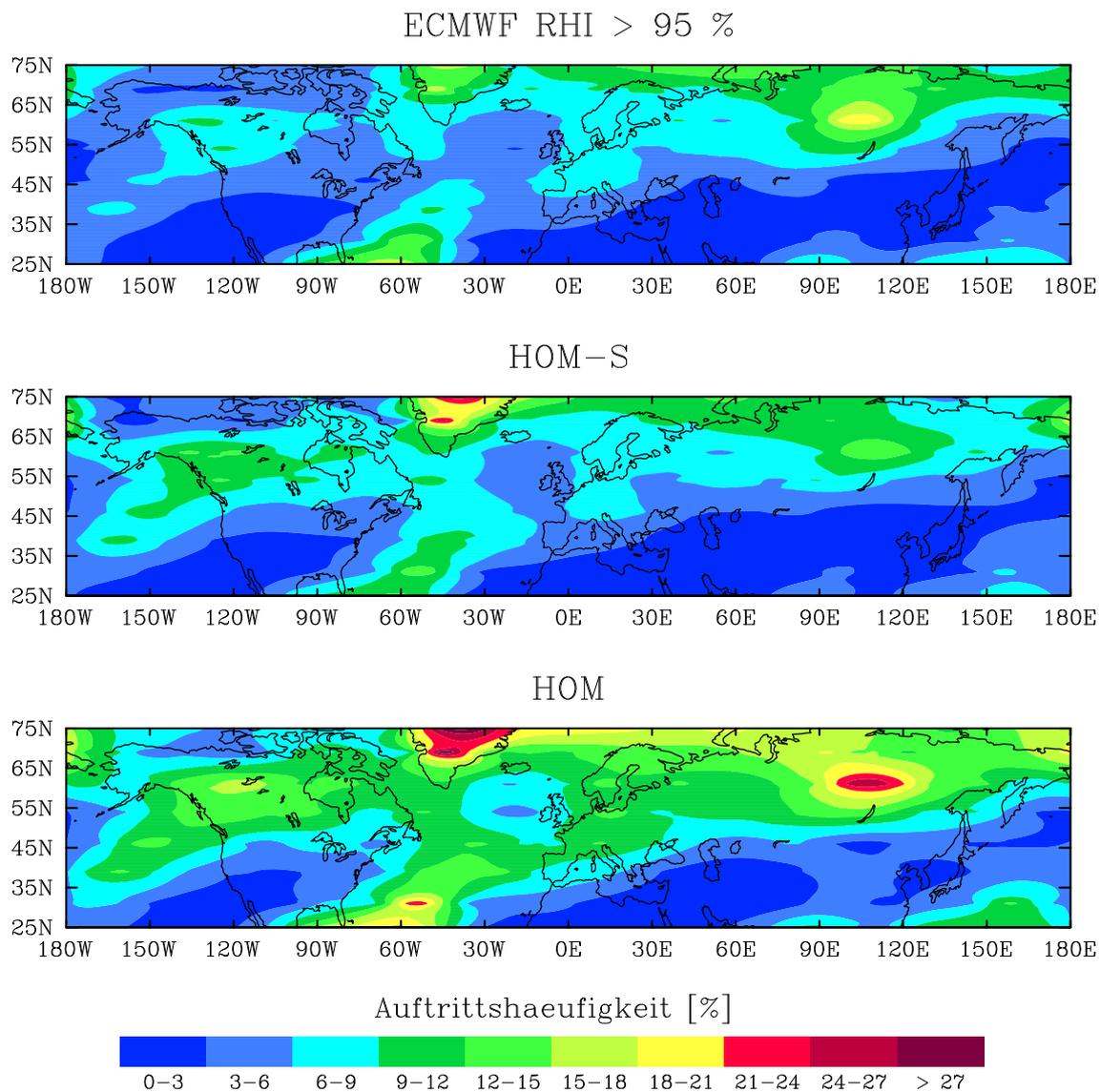
Ström et al. (2003) finden für die INCA-Messungen NH und SH ähnliche Auftrittswahrscheinlichkeiten für die Eiswassergehalte in den Zirren, mit einer maximalen Häufigkeit von Werten im Bereich von  $\sim 10 \text{ mg m}^{-3}$ . Das rechte Bild in Abb. 6.11 zeigt die Häufigkeitsverteilung der Eiswassergehalte für die vorliegenden Modellfälle HOM-S, HOM und MIX. In Übereinstimmung mit den Analysen von Ström et al. (2003) zeigen die Simulationen HOM und MIX die höchste Auftrittswahrscheinlichkeit bei Werten von  $\sim 10 \text{ mg m}^{-3}$ , mit einem langsamen Abfall der Verteilungen zu niedrigen Werten hin. Wie in den Statistiken zuvor, zeigt dagegen der Fall HOM-S von diesen Verteilungen eine deutliche Abweichung. Die maximale Häufigkeit liegt hier bei einem Eiswassergehalt von nur  $\sim 3 \text{ mg m}^{-3}$ . Zusammen mit den gezeigten Verteilungen der Eispartikelkonzentrationen und Eispartikelradien ist dies einmal mehr eine Bestätigung, daß die Zirrusbildung in der realen Atmosphäre häufig unter dynamischen Bedingungen stattfindet, welche typisch für mesoskalige Wellenbewegungen sind, während die mikrophysikalischen Eigenschaften von Zirren gebildet in großräumigen synoptischen Bewegungen ohne kleinskalige Variabilität in deutlichem Widerspruch zu den Messungen stehen.

## 6.5 Auftrittshäufigkeit von Zirren

### 6.5.1 Einfluß der Dynamik

In Abschnitt 6.2.3 (Abb. 6.3) wurde gezeigt, welche Auftrittshäufigkeit von Zirren sich ergibt, wenn zunächst die einfache Annahme getroffen wird, daß Gebiete mit einer ECMWF-Feuchte größer als 95 % näherungsweise Gebiete mit Zirren sind (Definition der Auftrittshäufigkeit, siehe Abschnitt 6.2.3). Die Abb. 6.3 wird im Bild oben von Abb. 6.12 wiederholt. Abbildung 6.12 zeigt nun die berechnete Auftrittshäufigkeit von Zirren im Bereich der Tropopause für den untersuchten Zeitraum September bis November 2000 unter der Annahme von ausschließlich homogenen Gefrierprozessen bei der Zirrusbildung. Das mittlere Bild (HOM-S) zeigt den Fall mit rein synoptisch-skaligen Luftbewegungen, das untere Bild (HOM) gilt für die dazu überlagerten mesoskaligen Wellen.

Vergleicht man zunächst die Auftrittshäufigkeit von Zirren, welche durch das ECMWF-Modell vorgegeben ist (Bild oben in Abb. 6.12), mit der Modellsimulation HOM-S, zeigen sich deutliche Unterschiede. Der Grund für diese Unterschiede ist die fehlende mikrophysikalische Parametrisierung der Zirrusbildung im ECMWF-Modell. Wie bereits mehrfach erwähnt, bildet das ECMWF die Zirren bereits bei Eissättigung. In der vorliegenden Modellsimulation HOM-S wird dagegen die Nukleation und das Verdampfen von Eispartikeln mikrophysikalisch realistisch wiedergegeben. Dies bewirkt über den Großteil des betrachteten Gebietes eine leichte Zunahme der Auftrittshäufigkeit. Man könnte annehmen, daß die Auftrittshäufigkeit in der ECMWF-Analyse gegenüber den Fall HOM-S allgemein höher ist (wie z.B. im Gebiet bei ca.  $100^\circ\text{E}/60^\circ\text{N}$ ), da ja angenommen wurde, daß sich die Zirren nahe Eissättigung bilden, während im Fall HOM-S die Bildung der Zirren erst bei den kritischen Gefrierfeuchten für homogenes Gefrieren oberhalb einer Eisfeuchte von



**Abb. 6.12:** Berechnete Auftrittshäufigkeit von Zirren für die Modellsimulationen mit homogenem Gefrieren. Im Fall HOM-S (Bild mitte) sind keine mesokaligen Wellen angenommen. Im Fall HOM (Bild unten) sind Wellen den zugrundeliegenden Trajektorien überlagert worden. Zu Vergleichszwecken wird im Bild oben die Abb. 6.3 wiederholt.

ca. 140 % erfolgt. Offensichtlich werden jedoch im ECMWF-Modell die Eispartikel in Zirren entweder zu schnell verdampft, oder auch zu schnell sedimentiert bzw. als Niederschlag entfernt. Der vorliegende Vergleich sollte nicht dazu dienen, derartige Effekte zu quantifizieren. Es wird lediglich die Notwendigkeit von realistischen mikrophysikalischen Parametrisierungen für die Zirrusbildung in großskaligen Modellen aufgezeigt.

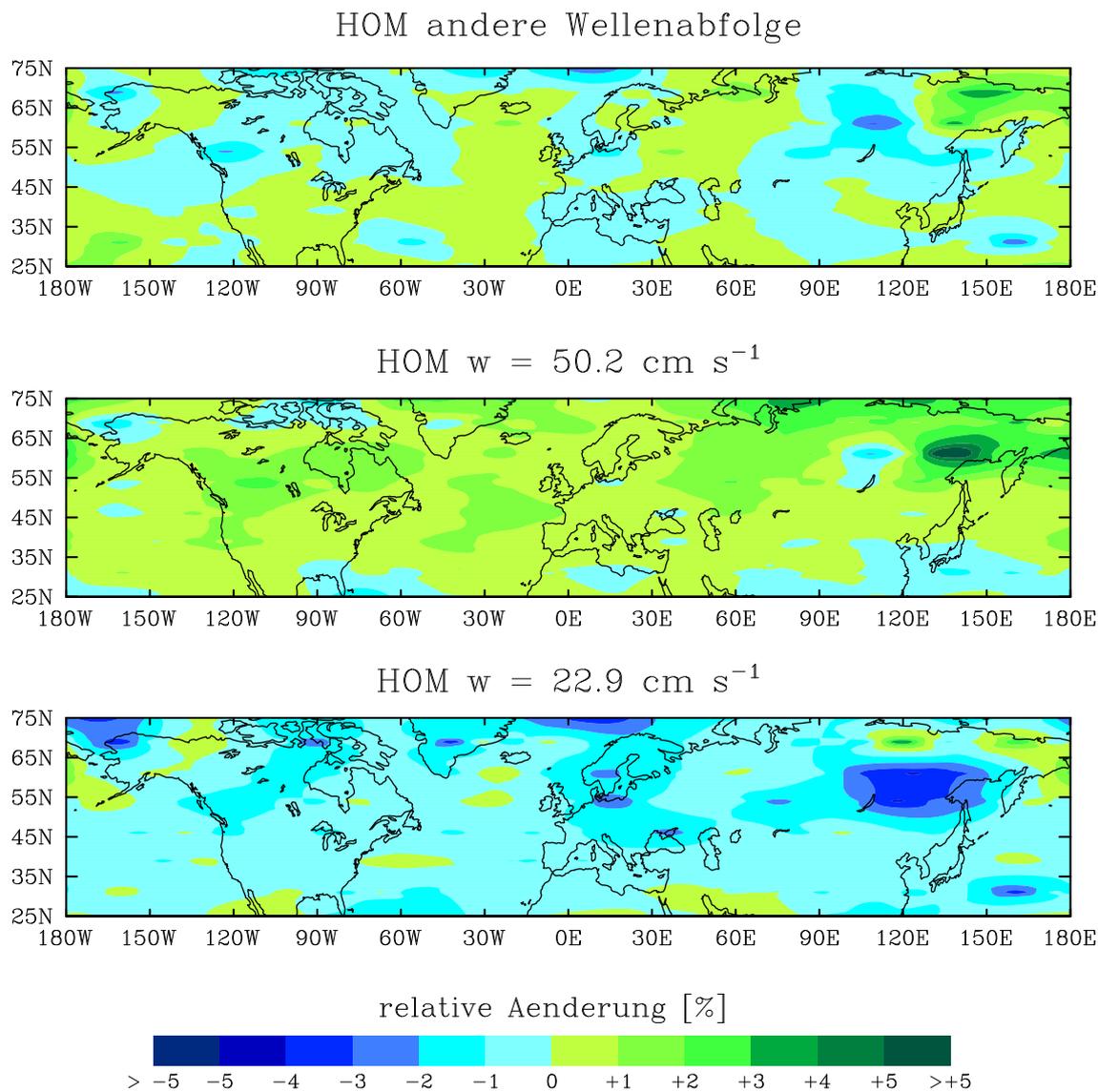
Die Modellsimulation mit homogenem Gefrieren und unter der Annahme von mesoskaligen Wellen zeigt gegenüber dem Fall HOM-S eine deutlich erhöhte Auftrittshäufigkeit von Zirren (vergleiche das mittlere und untere Bild in Abb. 6.12). Hierfür ist hauptsächlich eine höhere Wahrscheinlichkeit verantwortlich, daß bei großräumig aufsteigenden Luftmassen die kritische Gefrierfeuchte für homogenes Gefrieren erreicht wird. Auf den vorliegenden synoptischen Trajektorien ist nämlich häufig der Fall gegeben, daß die kritische Gefrierfeuchte in aufsteigenden Luftmassen gerade nicht erreicht wird, ehe wieder eine Erwärmung erfolgt. Werden jedoch die mesoskaligen Wellen den Trajektorien überlagert, dann geben die schnellen Kühlungen auf diesen Wellen sehr häufig den letzten Anstoß zur Initiierung des Gefrierprozesses.

Genau hier liegt die Bedeutung von subskaligen Prozessen bei der Zirrusbildung. Die globalen Bewölkungsmuster werden durch die synoptischen Bedingungen bestimmt, d.h. ist die Atmosphäre großräumig sehr trocken, dann können auch Schwerewellen keine Zirren hervorbringen (vergleiche dazu auch die großräumige Struktur der mittleren relativen Eisfeuchte in Abb. 6.2 mit den großräumigen Bewölkungsstrukturen in den Fällen HOM-S und HOM). Existieren jedoch aufgrund der synoptischen Bedingungen eisübersättigte Gebiete, was relativ häufig der Fall ist (z.B. Jensen et al., 2001), dann kann die Zirrusbildung sehr häufig durch subskalige Prozesse initiiert werden.

Indirekt wird die Auftrittshäufigkeit der Zirren in Abb. 6.12 auch durch die Sedimentation beeinflusst. Wie anhand von Abb. 6.7 und Abb. 6.11 gezeigt wurde, liegen im Fall HOM-S im Mittel wenige jedoch sehr große Eispartikel in den Zirren vor. Dies bedeutet, daß im Fall HOM-S die Zirren schneller sedimentieren als im Fall HOM mit hohen Eispartikelkonzentrationen bei kleineren Eispartikelgrößen. Dies hat eine im Mittel geringere Lebensdauer der Zirren zur Folge und dadurch auch eine Verringerung der Auftrittshäufigkeit.

Die Auftrittshäufigkeit von Zirren im Fall HOM (unteres Bild in Abb. 6.12) gilt für die nachfolgenden Studien als Referenzfall, d.h. es wird gezeigt werden, wie sich die Auftrittshäufigkeit von Zirren relativ zum Fall HOM verändert, wenn entweder die Dynamik auf den Trajektorien oder die Gefriereigenschaften der Aerosolpartikel verändert werden.

Der dynamische Einfluß auf die Zirrusbildung wurde bereits durch die stark unterschiedliche Auftrittshäufigkeit von Zirren in den Modellfällen HOM-S und HOM deutlich. Der Einfluß der Dynamik wird hier aber auch gezeigt, indem entweder nur die stochastische Abfolge der Frequenzen und Amplituden der mesoskaligen Wellen verändert wird (deren statistische Verteilung wird beibehalten), oder wenn weitergehend auch das Spektrum der Wellen bzw. der Aufwindgeschwindigkeiten verändert wird, indem im Mittel stärkere oder schwächere Vertikalwinde angenommen werden. Abbildung 6.13 zeigt die Veränderung der Auftrittshäufigkeit im Modellfall HOM für diese angenommenen Fälle mit veränderter Dynamik auf den zugrundeliegenden Trajektorien.



**Abb. 6.13:** Änderung der Auftrittshäufigkeit von Zirren für die Modellsimulation mit homogenem Gefrieren, wenn lediglich die stochastische Wellenabfolge verändert wird (Bild oben), oder wenn höhere (Mittel  $50.2 \text{ cm s}^{-1}$ , Bild mitte) oder niedrigere (Mittel  $22.9 \text{ cm s}^{-1}$ , Bild unten) vertikale Windgeschwindigkeiten angenommen werden. Die relative Änderung ist auf den Referenzfall HOM bezogen (Abb. 6.12, Bild unten).

Wird lediglich die stochastische Wellenabfolge verändert (Bild oben in Abb. 6.13), dann nimmt die Auftrittshäufigkeit von Zirren in einigen Gebieten zu, in anderen Gebieten nimmt sie ab. Diese Änderungen sind dadurch erklärbar, daß durch die Veränderung der Wellenabfolge die Gefrierzeitpunkte verschoben werden, und dadurch das Gefrieren der Partikel bei geringfügig anderen Temperaturen und Kühlraten stattfindet als im Referenzfall HOM. Wie erwähnt, hat dies keine eindeutige (positive oder negative) Veränderung der Auftrittshäufigkeit der Zirren zur Folge. Weiter sind die Veränderungen vom Betrag her über den Großteil des Gebietes eher moderat. Dennoch wird bereits anhand dieser Simulation mit veränderter Wellenabfolge klar, wie sensitiv die Gefrierprozesse bezüglich von Veränderungen der Dynamik sind.

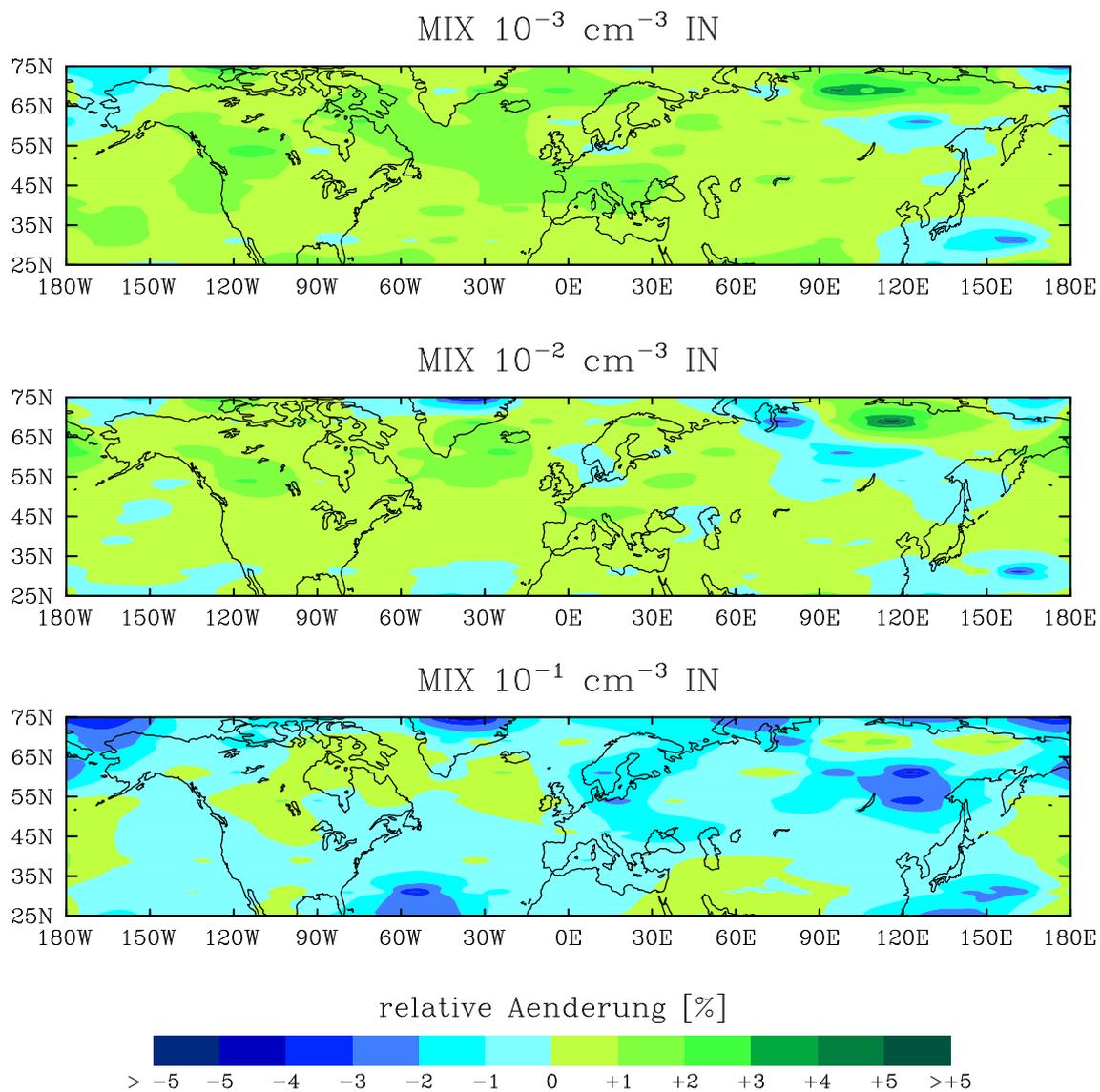
Im mittleren Bild von Abb 6.13 wurde das Spektrum des Vertikalwindes in der Simulation zu im Mittel höheren Aufwindgeschwindigkeiten verschoben, im unteren Bild wurden schwächere Vertikalwinde angenommen als im Referenzfall HOM. In welchem Umfang die mittleren Wellenperioden und die Amplituden der Wellen in diesen Simulationen verändert wurden, wurde bereits in Abschnitt 6.4.1 beschrieben. Die entsprechenden Häufigkeitsverteilungen der Aufwindgeschwindigkeiten sind in Abb. 6.8 dargestellt.

Im Gegensatz zu einer Veränderung der Wellenabfolge führt nun eine Veränderung des Wellenspektrums zu einem eindeutigen Trend in der Auftrittshäufigkeit der Zirren. Herrschen im Mittel stärkere Aufwinde im untersuchten Gebiet, dann bewirkt dies überwiegend eine Zunahme der Auftrittshäufigkeit. Bei schwächeren Aufwinden bzw. bei langsamerer Kühlung nimmt die Auftrittshäufigkeit vorwiegend ab. Quantitativ sind die Änderungen größer als im Bild mit veränderter Wellenabfolge. Diese Veränderungen der Auftrittshäufigkeit haben die selben Ursachen wie die Unterschiede in den Modellfällen HOM-S und HOM. Erstens kann bei stärkeren (schwächeren) Aufwinden die kritische Gefrierfeuchte für homogenes Gefrieren öfter (seltener) erreicht werden, d.h. allgemein nimmt die Wahrscheinlichkeit für die Initiierung von Gefrierprozessen mit zunehmenden (abnehmenden) Kühlraten auf den Trajektoien zu (ab). Weiter ist im Fall mit hohen Aufwindgeschwindigkeiten die Eispartikelkonzentration in den gebildeten Zirren höher als im Fall mit niederen Windgeschwindigkeiten (siehe Abb. 6.8). Da eine hohe Eispartikelkonzentration zu kleineren Größen der Eispartikel in den Zirren führt, wirkt die Sedimentation der Eispartikel in der Modellsimulation HOM  $w = 50.2 \text{ cm s}^{-1}$  im Mittel weniger schnell als im Fall HOM  $w = 22.9 \text{ cm s}^{-1}$ , was die Lebensdauer und damit auch die Auftrittswahrscheinlichkeit der Zirren erhöht.

## 6.5.2 Einfluß der Gefriereigenschaften

In Abschnitt 6.4.2 wurde bereits ausgeführt, daß ein wesentlicher Einfluß der heterogenen Gefrierkerne darin besteht, daß sie häufig das homogene Gefrieren der flüssigen Lösungstropfen aufgrund ihrer niederen Gefrierfeuchten unterdrücken können. Die Statistik der Eispartikelkonzentrationen (siehe Abb. 6.9) hat gezeigt, daß dieser Einfluß bei einer IN-Konzentration  $< 0.01 \text{ cm}^{-3}$  jedoch nur noch sehr schwach ist, speziell unter der vorliegenden Annahme von sehr hohen mittleren Kühlraten.

Bezüglich der erhöhten Auftrittshäufigkeit von Zirren bei einer Erhöhung der mittleren



**Abb. 6.14:** Relative Änderung der Auftrittshäufigkeit von Zirren im Vergleich zur Modellsimulation mit homogenem Gefrieren, wenn heterogene Gefrierkerne mit einer Konzentration von  $0.001 \text{ cm}^{-3}$  (Bild oben),  $0.01 \text{ cm}^{-3}$  (Bild mitte) oder  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  (Bild unten) angenommen werden.

Aufwindgeschwindigkeiten im Fall mit homogenem Gefrieren (Abb. 6.12 und Abb. 6.13) wurde festgestellt, daß dies in Zusammenhang mit einer höheren Wahrscheinlichkeit für das Erreichen der kritischen Gefrierfeuchten in aufsteigenden Luftmassen steht. Ähnlich könnte nun angenommen werden, daß die Auftrittshäufigkeit der Zirren zunimmt, wenn zusätzlich zu den flüssigen Lösungstropfen eine begrenzte Anzahl von aktiven Gefrierkernen an den Gefrierprozessen bei der Zirrusbildung beteiligt ist, da ja die niedere Gefrierfeuchte dieser Kerne von  $\sim 130\%$  weitaus öfter erreicht wird als die homogenen Gefrierfeuchten oberhalb von  $\sim 140\%$ . In Übereinstimmung mit früheren Studien (z.B. Jensen und Toon, 1997) wird dieses Verhalten in der vorliegenden Arbeit gefunden.

Abbildung 6.14 zeigt die Änderung der Auftrittshäufigkeit der Zirren relativ zur Modellsimulation mit ausschließlich homogenem Gefrieren, wenn heterogene Gefrierkerne an der Zirrusbildung beteiligt sind. Wie eben erwähnt, nimmt die Auftrittshäufigkeit der Zirren im betrachteten Gebiet im Mittel zu, wenn eine Simulation mit homogenem und heterogenem Gefrieren (MIX) durchgeführt wird. Dies gilt jedoch nur, wenn die Anzahl der festen Gefrierkerne begrenzt bleibt. So zeigt die Simulation mit einer IN-Konzentration von nur  $0.001\text{ cm}^{-3}$  (Bild oben in Abb. 6.14) eine im Mittel deutliche Zunahme der Auftrittshäufigkeit, während bei einer IN-Konzentration von  $0.01\text{ cm}^{-3}$  (Bild mitte) die Zunahme bereits deutlich abgeschwächt wird. Die Größenordnung dieser Änderungen liegt im Bereich der Änderungen aufgrund einer veränderten Dynamik (bei Annahme von stärkeren oder schwächeren Aufwinden, siehe Abb. 6.13). Wird nun die Konzentration der heterogenen Gefrierkerne weiter erhöht ( $0.1\text{ cm}^{-3}$ , Bild unten), dann geht der Einfluß der IN auf die Auftrittshäufigkeit der Zirren in einen deutlich negativen Trend über. So nimmt im letztgenannten Fall MIX mit  $0.1\text{ cm}^{-3}$  IN die Auftrittshäufigkeit der Zirren vorwiegend ab. Der Grund für dieses Verhalten wurde bereits mehrfach angesprochen. Mit zunehmender Konzentration der heterogenen Eiskerne wird das homogene Gefrieren zunehmend unterdrückt, auch wenn hohe mittlere vertikale Windgeschwindigkeiten vorliegen. Aufgrund dieses Ergebnisses unterstützt die vorliegende Studie die häufig getätigte Aussage, daß heterogenes Gefrieren die Häufigkeit von Zirren im allgemeinen erhöht, nur, wenn die Anzahl der heterogenen Gefrierkerne limitiert bleibt. Ein weiterer Grund für die geringere Auftrittshäufigkeit im Fall mit  $0.1\text{ cm}^{-3}$  IN ist, daß die Eispartikelkonzentration im Mittel deutlich geringer und die mittlere Größe der Eispartikel daher größer ist als in den beiden anderen Fällen MIX (siehe Abb. 6.9 und Abb. 6.11), weshalb die Sedimentation im Fall mit  $0.1\text{ cm}^{-3}$  IN im Mittel schneller erfolgt.

## 6.6 Kurzzusammenfassung

Die Untersuchungen in diesem Kapitel lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- Die Statistik der relativen Feuchte in diesem Kapitel bestätigt, daß während der INCA-Kampagne in Prestwick (NH) heterogenes Gefrieren von IN die Bildung von Zirren lediglich initiiert hat, jedoch häufig nicht das homogene Gefrieren von unterkühlten Lösungstropfen unterdrückt hat.

- Die Überlagerung der untersuchten Trajektorien mit mesoskaligen Wellen führt zu einer Erhöhung der Auftrittshäufigkeit von Zirren und zu höheren mittleren Eispartikelkonzentrationen in den Zirren im Vergleich zu einer rein synoptischen Kühlung.
- Die Zirruseigenschaften werden in großen Umfang von der Dynamik kontrolliert.
- Durch veränderte Gefriereigenschaften können die mikrophysikalischen Eigenschaften der Zirren modifiziert werden.

# Kapitel 7

## Zusammenfassung

### 7.1 Ziele und Methodik

Die Ziele der vorgelegten Dissertation waren (Kapitel 1):

1. Überprüfung der Anwendbarkeit neuer Labormessungen zum homogenen Gefrieren unterkühlter Aerosolpartikel auf reale atmosphärische Bedingungen bei der Initiierung der Eisphase in Zirruswolken (Gefrierprozesse);
2. Bestimmung des Zusammenhangs zwischen Gefrierprozessen und der Häufigkeitsverteilungen der relativen Feuchte (Feuchtestatistik);
3. Abwägung der relativen Bedeutung unterschiedlicher Gefriereigenschaften des Aerosols und der atmosphärischen Dynamik auf Eigenschaften von Zirruswolken (indirekter Aerosoleffekt und Dynamik).

Zur Analyse umfangreicher Messungen der Eisbildung in einer Aerosolkammer und flugzeuggetragener Messungen von relativer Feuchte und Zirruswolken im Bereich der Tropopause sowie für weiterführende Prinzipstudien wurde ein komplexes mikrophysikalisches Simulationsmodell geeignet modifiziert und eingesetzt (Kapitel 2 und 3).

### 7.2 Ergebnisse und Bewertung

**Gefrierprozesse (Kapitel 4)** Erstmals wurde, in enger Zusammenarbeit mit Experimentatoren, anstelle der klassischen Gefriertheorie die von Koop et al. (2000) entwickelte Aktivitätsparametrisierung für homogenes Gefrieren von flüssigen Lösungstropfen zur Untersuchung der Zirrusbildung angewendet (Haag et al., 2003a; Möhler et al., 2003). Der Vergleich der Simulationen mit den Messungen in der Aerosolkammer AIDA des Forschungszentrums Karlsruhe zeigte eine gute Übereinstimmung der kritischen Gefrierfeuchten der Schwefelsäurelösungen, der Gefrierzeitpunkte und der Anzahl der nukleierten Eispartikel. Die tatsächlichen Gefrierfeuchten der Partikel weichen jedoch bei polydispersen Aerosolen, hohen Kühlraten ( $\sim 1 \text{ K min}^{-1}$ ) und tiefen Temperaturen ( $\sim 200 \text{ K}$ ) von den entsprechenden kritischen Feuchten nach Koop et al. (2000) ab. Dies wird durch Nichtgleichgewichts-Effekte zwischen den flüssigen Lösungstropfen und der  $\text{H}_2\text{O}$ -Gas-

phasenkonzentration erklärt.

Die AIDA-Simulationen dienten auch zur vertieften Interpretation der Kammermessungen. So konnte beispielsweise die experimentell nicht bestimmbare Partitionierung der Gesamtwassermessung in der Kammer in Gasphase, Flüssigwassergehalt und Eiswassergehalt anhand einer konkreten Fallstudie ermittelt werden. Weiter wurde anhand von Sensitivitätsstudien die kritische Rolle von Temperatur und Feuchte bei der homogenen Nukleation von Eis in unterkühlten Aerosolpartikeln aufgezeigt.

*Die numerischen Simulationen der AIDA-Gefrierexperimente führten schließlich zu einem vertieften Verständnis der homogenen Initiierung der Eisphase.* Das verwendete mikrophysikalische Modell mit den zugrundeliegenden Theorien zur homogenen Eisnukleation und zum Wachstum kleiner Eiskristalle ist in der Lage, Zirrusbildung unter realen atmosphärischen Bedingungen zu simulieren. Somit bildeten diese Simulationen die Grundlage für die weiterführenden Studien zur Statistik der relativen Feuchte und zum indirekten Aerosoleffekt in Zirren.

**Feuchtestatistik (Kapitel 5)** Die relative Bedeutung homogener und heterogener Gefrierprozesse bei der Zirrusbildung ist zur Zeit nicht hinreichend genau verstanden. Hauptschwierigkeit hierbei ist die simultane *in-situ*-Messung wichtiger Zirrusparameter (relative Feuchte, Größenverteilung und Gefrierereigenschaften des Aerosols, Eispartikelkonzentration, Kühlraten) in einzelnen Luftpaketen zum Zeitpunkt der Eisbildung, die sehr rasch (Minuten) abläuft.

Es wurde durch Trajektorienimulationen gezeigt, daß ein direkter Zusammenhang zwischen den Gefrierprozessen und der Häufigkeitsverteilung der relativen Feuchte über Eis besteht (Haag et al., 2003b; Kärcher und Haag, 2003; Ström et al., 2003). Die höchsten Feuchten der Verteilung in wolkenfreien Gebieten werden alleine durch den Einsatz des Gefrierprozesses bestimmt. Dies erlaubt eine näherungsweise Bestimmung der kritischen Gefrierfeuchten, bei denen sich Zirruspartikel bilden, direkt mit Hilfe von *in-situ*-Messungen der relativen Feuchte. Ferner ist es möglich, durch Vergleich der kritischen Gefrierfeuchten mit den maximalen Übersättigungen innerhalb von Zirren Rückschlüsse auf die dominanten Gefriermechanismen zu ziehen.

Die vorgeschlagene Methode kann angewendet werden, wenn die Temperaturvariabilität während einer Meßkampagne hinreichend groß ist und die Aerosolpartikel sich in ihren eisbildenden Eigenschaften während der Messungen nicht stark verändern. Eine solche Situation war während INCA gegeben. War im Fall der Messungen über Punta Arenas homogenes Gefrieren der dominante Eisbildungsprozeß, traten über Prestwick homogene und heterogene Nukleation in Konkurrenz. Unter Annahme der bei INCA vorherrschenden Kühlraten und Temperaturen wurde durch Vergleich von Messung und Modell gefunden, daß die Eisbildung durch wenige ( $< 0.01 \text{ cm}^{-3}$ ) heterogene Gefrierkerne eingeleitet, meistens homogenes Gefrieren jedoch nicht unterdrückt wurde. *Diese Arbeit führte erstmalig den Nachweis, daß solche komplexe Gefriermechanismen in Zirren ablaufen können und daß anthropogene Emissionen von Eiskernen (z.B. Rußpartikel) die Zirrusbildung in nördlichen mittleren Breiten beeinflussen könnten.*

**Indirekter Aerosoleffekt und Dynamik (Kapitel 6)** Erstmals wurde mittels numerischer Simulation systematisch untersucht, in welchem Umfang wichtige Zirruseigen-

schaften durch Unterschiede in den Gefriereigenschaften der Aerosolpartikel einerseits und durch moderate Änderungen der dynamischen Variabilität andererseits modifiziert werden können (Haag und Kärcher, zur Veröffentlichung vorgesehen, 2004). Hierzu wurden mit gebietsfüllenden Trajektorien Prinzipstudien mit freien Modellparametern durchgeführt, da regionale und saisonale Verteilungen wichtiger Kenngrößen wie Gefriereigenschaften der Aerosole oder Frequenz und Amplitude mesoskaliger Schwerewellen nicht hinreichend genau bekannt sind. In den Simulationen wurden Wind-, Temperatur- und Wasserdampf-felder der oberen Troposphäre und untersten Stratosphäre der Nordhemisphäre mittlerer Breiten für den Zeitraum September bis November 2000 des ECMWF verwendet.

Die Simulationen mit fixierten Aerosolparametern und rein synoptischer Kühlung der Luftpakete prognostizieren sehr geringe mittlere Eispartikelkonzentrationen in Zirren (ca.  $0.01 \text{ cm}^{-3}$ ). Dies ist in deutlichem Widerspruch zu den während INCA gemessenen Eispartikelkonzentrationen, welche vornehmlich bei  $0.1\text{--}10 \text{ cm}^{-3}$  lagen. Diese hohen Werte werden jedoch von den Simulationen in Kombination mit homogenem Gefrieren wiedergegeben, wenn mesoskalige Temperaturoszillationen mit Amplituden bis zu 2 K und Perioden um 15–25 min den synoptischen Trajektorien überlagert werden. Die Perioden sind konsistent mit horizontalen Wellenlängen in der Größenordnung von einigen 10 km.

Die aus den schnellen Temperaturänderungen resultierenden Fluktuationen der relativen Feuchte alleine bewirken jedoch meist keine homogene Eisbildung, solange das Luftpaket im Mittel noch eisuntersättigt ist. *Somit ist in der Regel eine großskalige, synoptische Kühlung nötig, um eisübersättigte Regionen zu erzeugen; mesoskalige Schwerewellen lösen dann die Zirrusbildung aus und bestimmen die Anzahl und Größe der Eispartikel in jungen Zirren.* Unter der Annahme von Wellenaktivität erhöht sich die berechnete Auftrittshäufigkeit von Zirren um  $\sim 5\text{--}10 \%$  im Vergleich zur Auftrittshäufigkeit unter synoptischen Bedingungen. Gründe dafür sind: eine höhere Wahrscheinlichkeit, daß die kritische Gefrierfeuchte in aufsteigenden Luftmassen erreicht wird, wenn höhere Aufwindgeschwindigkeiten vorliegen; geringere Sedimentationsverluste vieler kleiner Eiskristalle gegenüber weniger großer Partikel in synoptisch-gebildeten Wolken; ein mit dem Verdampfen der Eiskristalle verbundener, kinetischer Effekt, der die Partikellebensdauer verlängert und in globalen Modellen häufig unberücksichtigt bleibt.

Eine beachtliche Sensitivität der Zirrusbildung bezüglich dynamischer Bedingungen konnte auch gezeigt werden, indem die Eigenschaften der mesoskaligen Wellen variiert wurden. Alleine eine Veränderung der zufälligen Abfolge der Welleneignisse unter Beibehaltung der mittleren Amplitude und Frequenz reicht aus, um die Auftrittshäufigkeit der Zirren, wenn auch geringfügig, zu modifizieren. Einen viel größeren Einfluß hat eine Verschiebung (um jeweils ca. 40 % um den angenommenen Mittelwert von ca.  $32 \text{ cm s}^{-1}$ ) des Spektrums des Vertikalwindes hin zu stärkeren oder schwächeren mittleren Aufwindgeschwindigkeiten. Dies führt zu einer deutlichen Erhöhung bzw. Verringerung der Auftrittshäufigkeit von Zirren, sowie zu signifikanten Änderungen von Eispartikelgröße und -anzahl. *Ein solches Szenario könnte bei zukünftigen Bewertungen der Auswirkungen von Klimaänderungen (die z.B. Änderungen in der Wellenaktivität in der Troposphäre zur Folge haben) auf Zirren eine wichtige Bedeutung erlangen.*

Die Simulationen mit fixierter Dynamik und variablen Gefriereigenschaften haben ge-

zeigt, daß die Eispartikelkonzentrationen in Zirren im Mittel verringert werden, wenn feste Gefrierkerne an der Zirrusbildung beteiligt sind und mit den flüssigen Partikeln in Konkurrenz treten. Dies wird durch die heterogene Initiierung der Eisbildung bei niedrigen Gefrierfeuchten verursacht, was dazu führen kann, daß das homogene Gefrieren der viel zahlreicheren flüssigen Lösungstropfen unterdrückt wird. Ob und wie oft es dazu kommt, hängt von der Anzahl und Größe der Eiskerne, ihrer Gefrierfeuchte, der Temperatur und der Kühlrate ab. Starke, den im letzten Paragraphen beschriebenen dynamischen Änderungen vergleichbare Effekte, zeigen sich erst bei Eiskernkonzentrationen deutlich oberhalb  $0.01 \text{ cm}^{-3}$ , die durch die INCA-Messungen allerdings nicht unterstützt werden.

In Abhängigkeit von ihrer Konzentration können heterogene Gefrierkerne die Auftrittshäufigkeit der Zirren im Vergleich zur rein homogenen Zirrusbildung erhöhen oder verringern. Bleibt die Konzentration der Eiskerne gering ( $< 0.01 \text{ cm}^{-3}$ ), wird die Auftrittshäufigkeit im Mittel erhöht, da in eisübersättigten Gebieten die niedrigen Gefrierfeuchten der Eiskerne weitaus öfter erreicht werden als die homogenen Gefrierfeuchten. Bei einer angenommenen Eiskernkonzentration von  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  nimmt jedoch die mittlere Auftrittshäufigkeit im Vergleich zum Fall mit ausschließlich homogenem Gefrieren ab, da mit zunehmender Konzentration der heterogenen Gefrierkerne der homogene Gefrierpfad vergleichsweise häufig unterdrückt wird. *Diese Arbeit liefert damit erstmals quantitative Information über Eiskerneigenschaften (Gefrierfeuchte und Anzahl), die in Kombination mit mesoskaliger dynamischer Variabilität zu einem signifikanten indirekten Aerosoleffekt in Zirren mittlerer Breiten führen.*

### 7.3 Ausblick

Als Ausblick sind mehrere weiterführende Arbeiten denkbar. Beispielsweise könnten das Depositionswachstum kleiner Eispartikel und heterogene Gefrierprozesse (Ruß, Mineralstaub, ammonisierte Sulfate) in der Aerosolkammer AIDA gemessen und mit dem hier verwendeten Modellansatz interpretiert werden. Zukünftige Zirrusmessungen im Bereich der Tropopause (z.B. in den vorgesehenen EU-Projekten TROCCINOX und SCOUT) könnten durch Analyse der relativen Feuchtestatistik analog zur INCA-Kampagne im Hinblick auf Gefrierprozesse analysiert werden. Weiter könnte untersucht werden, wie genau sich die Gegenwart effektiver Eiskerne auf den Lebenszyklus von Zirren auswirkt. Dieses Problem kann allerdings nur unter akkurater Berücksichtigung von Sedimentationseinflüssen bzw. mit einem mehrdimensionalen, wolkenauflösenden Modell angegangen werden. Es wird vorgeschlagen, die modellbasierten Ergebnisse zum indirekten Aerosoleffekt in Zirren in zukünftigen *in-situ*-Messungen zu überprüfen. Es besteht ein dringender Bedarf, die bestehenden Parametrisierungen der Zirrusbildung in globalen atmosphärischen Zirkulationsmodellen im Hinblick auf Konkurrenzeffekte zwischen flüssigen Aerosolpartikeln und heterogenen Eiskernen zu erweitern. Vermutlich noch größerer Forschungsbedarf liegt aber bei der Entwicklung verbesserter Parametrisierungen für subskalige dynamische Prozesse in globalen Modellen. Hier ist es dringend nötig, mehr Kenntnis über Quellen und Eigenschaften mesoskaliger Temperaturosillationen in eisübersättigten Gebieten zu gewinnen.

# Symbole und Abkürzungen

## Häufig verwendete Symbole

| Symbol                             | Definition  | SI-Einheit                                    |
|------------------------------------|---|---|
| $a_w, a_w^i$                       | Wasseraktivität, Wasseraktivität bei Eissättigung                 | —   |
| $a_i$                              | Oberflächenkonzentration der Partikel im Größenbin $i$            | $\text{m}^2 \text{m}^{-3}$                    |
| $A$                                | Amplitude Temperaturwellen  | K   |
| $c_{q,\text{tot}}$                 | Totale Anzahlkonzentration der Moleküle der Substanz $q$          | $\text{m}^{-3}$                               |
| $c_{w,\text{tot}}$                 | Totale Anzahlkonzentration der $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle     | $\text{m}^{-3}$                               |
| $c_{q,g}$                          | Gasphasenkonzentration der Moleküle der Substanz $q$              | $\text{m}^{-3}$                               |
| $c_{q,i,\text{aer}}$               | Anzahlkonzentration der Moleküle von $q$ in Tropfen               | $\text{m}^{-3}$                               |
| $c_{w,i,\text{aer}}$               | Anzahlkonzentration der $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle in Tropfen | $\text{m}^{-3}$                               |
| $c_{q,i,\text{ice}}$               | Anzahlkonzentration der Moleküle von $q$ in Eis                   | $\text{m}^{-3}$                               |
| $c_{w,i,\text{ice}}$               | Anzahlkonzentration der $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle in Eis     | $\text{m}^{-3}$                               |
| $d, D_p$                           | Partikeldurchmesser   | m   |
| $D$                                | Diffusionskoeffizient von Wasserdampf in Luft                     | $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$                    |
| $g$                                | Schwerebeschleunigung   | $\text{m} \text{s}^{-2}$                      |
| $h$                                | Planck-Konstante = $6.6252 \times 10^{-34} \text{ J s}^{-1}$      |   |
| $J$                                | Nukleationsrate   | $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$                 |
| $k$                                | Boltzmann-Konstante = $1.3804 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$   |   |
| $k_a$                              | thermische Leitfähigkeit der Luft                                 | $\text{J m}^{-1} \text{s}^{-1} \text{K}^{-1}$ |
| $k_{i,\text{aer},t-\Delta t}$      | Massentransferkoeffizient für Lösungstropfen                      | $\text{s}^{-1}$                               |
| $k_{i,\text{ice},t-\Delta t}$      | Massentransferkoeffizient für Eispartikel                         | $\text{s}^{-1}$                               |
| $K_i, K_{i,t-\Delta t}$            | Kelvinkorrektur für Sättigungsdampfdruck                          | —   |
| $K_n$                              | Knudsenzahl   | —   |
| $l$                                | Säulenhöhe Eiskristall  | m   |
| $L_e, L_m$                         | latente Wärme Kondensation, Schmelzen                             | $\text{J kg}^{-1}$                            |
| $m, m_i, m_s$                      | Masse eines Tropfen, Eiskristall, gelöste Substanz                | kg  |
| $m_i$                              | Massenkonzentration der Partikel im Größenbin $i$                 | $\text{kg m}^{-3}$                            |
| $M_w, M_s$                         | Molare Masse von Wasser, gelöste Substanz                         | $\text{kg mol}^{-1}$                          |
| $n_{\text{ice}}, n_{\text{ice},i}$ | Anzahlkonzentration der Eispartikel (total, im Bin)               | $\text{m}^{-3}$                               |
| $n_{\text{aer}}, n_{\text{aer},i}$ | Anzahlkonzentration der Lösungstropfen (total, im Bin)            | $\text{m}^{-3}$                               |
| $n_i$                              | allg. Anzahlkonzentration der Partikel im Größenbin $i$           | $\text{m}^{-3}$                               |

|                                      |  |                                   |
|--------------------------------------|--|-----------------------------------|
| $n_{\text{satw}}$                    | Sättigungskonzentration H <sub>2</sub> O-Moleküle über Tropfen               | $\text{m}^{-3}$                   |
| $n_{\text{sati}}$                    | Sättigungskonzentration H <sub>2</sub> O-Moleküle über Eis                   | $\text{m}^{-3}$                   |
| $n_t$                                | Totale Anzahlkonzentration der Partikel                                      | $\text{m}^{-3}$                   |
| $N_B$                                | Anzahl der Größenbins im APSC-Modell   | —                                 |
| $p$                                  | Luftdruck  | Pa                                |
| $p_{e,w}$                            | H <sub>2</sub> O-Sättigungsdampfdruck über einer ebenen Wasseroberfläche     | Pa                                |
| $p_{e,s}$                            | H <sub>2</sub> O-Sättigungsdampfdruck über einer ebenen Lösung               | Pa                                |
| $p_{\infty,w}$                       | Partialdruck des Wasserdampfes in der Luft                                   | Pa                                |
| $p_{\text{sat},w}, p_{\text{sat},i}$ | H <sub>2</sub> O-Sättigungsdampfdruck über gekrümmten Tropfen(Eis)oberfläche | Pa                                |
| $r, r_i$                             | Partikelradius, Binradius  | m                                 |
| $r_g, r_{\text{IN}}$                 | Keimradius, IN-Radius  | m                                 |
| $r_m$                                | Massen-Medianradius  | m                                 |
| $R^*$                                | Universelle Gaskonstante = $8.3145 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$        | —                                 |
| $S, S_{\text{cr}}$                   | Sättigungsverhältnis, kritisches Sättigungsverhältnis                        | —                                 |
| $s_{\text{cr}}$                      | kritische Übersättigung  | —                                 |
| $\Delta t$                           | APSC-Modellzeitschritt   | s                                 |
| $\Delta z$                           | Sedimentationsstrecke Eispartikel  | m                                 |
| $t$                                  | (Modell)Zeit   | s                                 |
| $T$                                  | Lufttemperatur   | K                                 |
| $v_i$                                | mittleres Partikelvolumen im Größenbin $i$                                   | $\text{m}^3$                      |
| $v_s$                                | Sedimentationsgeschwindigkeit Eispartikel                                    | $\text{m s}^{-1}$                 |
| $v_i$                                | Volumenkonzentration der Partikel im Größenbin $i$                           | $\text{m}^3 \text{ m}^{-3}$       |
| $v_{\text{th}}$                      | mittlere thermische Geschwindigkeit der Moleküle                             | $\text{m s}^{-1}$                 |
| $V_{\text{rat}}$                     | Volumenverhältnis der diskretisierten Größenverteilung                       | —                                 |
| $w$                                  | vertikale Windgeschwindigkeit  | $\text{m s}^{-1}$                 |
| $\alpha$                             | Massenakkomodationskoeffizient   | —                                 |
| $\beta, \beta_i$                     | Knudsen-Korrekturfaktor  | —                                 |
| $\gamma_a$                           | Kinematische Viskosität der Luft   | $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$       |
| $\eta_a$                             | Dynamische Viskosität der Luft   | $\text{kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ |
| $\kappa, \kappa_i$                   | Kapazitätsfaktor   | m                                 |
| $\lambda$                            | mittlere freie Weglänge der Moleküle   | m                                 |
| $\rho_w, \rho_p,$                    | Dichten von Wasser, Lösungstropfen, Luft, Eis                                | $\text{kg m}^{-3}$                |
| $\rho_a, \rho_i$                     | geometrische Standardabweichung Größenverteilung                             | —                                 |
| $\sigma$                             | Grenzflächenspannung Eis zu Luft   | $\text{J m}^{-2}$                 |
| $\sigma_{i/a}$                       | Grenzflächenspannung Lösung zu Luft  | $\text{J m}^{-2}$                 |
| $\sigma_{s/a}$                       | Grenzflächenspannung Eis zu Wasser   | $\text{J m}^{-2}$                 |
| $\sigma_{i/w}$                       | Grenzflächenspannung Eis zu Lösung   | $\text{J m}^{-2}$                 |
| $\sigma_{i/s}$                       |  |                                   |

|                               |  |                          |
|-------------------------------|--|--------------------------|
| $\sigma_{\text{IN}/w}$        | Grenzflächenspannung IN zu Wasser                            | $\text{J m}^{-2}$        |
| $\sigma_{\text{IN}/i}$        | Grenzflächenspannung IN zu Eis                               | $\text{J m}^{-2}$        |
| $\tau$                        | Sedimentationszeit Eispartikel                               | s                        |
| $\tau_{\text{fr}}$            | Zeitskala Gefrierprozeß                                      | s                        |
| $\tau_{\text{gas}}$           | Zeitskala Abnahme der H <sub>2</sub> O-Gasphase bei Wachstum | s                        |
| $\tau_w$                      | Wellenperiode  | s                        |
| $\phi, \phi_i$                | Ventilationsfaktor   | —                        |
| $\chi$                        | H <sub>2</sub> O-Volumenmischungsverhältnis                  | $\mu\text{mol mol}^{-1}$ |
| $\omega, \omega_{\text{mix}}$ | Gefrierrate  | $\text{s}^{-1}$          |
| $\Omega$                      | Kreisfrequenz Schwerewellen                                  | $\text{s}^{-1}$          |

## Abkürzungen

|           |   |
|-----------|---|
| AIDA      | Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere   |
| APSC      | Advanced Particle Simulation Code   |
| CN        | Condensation Nuclei   |
| CNC       | Condensation Nuclei Counter   |
| CVI       | Counterflow Virtual Impactor  |
| DMA       | Differential Mobility Analyser  |
| DLR       | Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt   |
| ECMWF     | European Center for Medium-range Weather Forecasts  |
| FISH      | Fast <i>In-situ</i> Stratospheric Hygrometer  |
| FTIR      | Fourier Transform Infrared Spectroscopy   |
| FZK       | Forschungszentrum Karlsruhe   |
| FZJ       | Forschungszentrum Jülich  |
| IN        | Ice Nuclei (Gefrier- oder Eiskern)  |
| INCA      | INterhemispheric differences in Cirrus properties<br>from Anthropogenic emissions   |
| NH        | Nordhalbkugel   |
| PAZI      | Partikel und Zirren   |
| PCS       | Optical Particle Spectrometer   |
| ppmv      | parts per million by volume (Mischungsverhältnis in Volumenteile<br>je $10^6$ Gesamtvolumenteile); SI Einheit: $\mu\text{mol mol}^{-1}$ |
| RH        | Relative Humidity (relative Feuchte)  |
| RHI       | Relative Humidity with respect to Ice (relative Feuchte<br>in Bezug auf Eis)  |
| SCOUT     | Stratospheric-Climatic links with emphasis on the Upper Troposphere<br>and lower stratosphere   |
| SH        | Südhalbkugel  |
| TROCCINOX | TRopical Convection, CIrrus, and Nitrogen OXides experiment   |

# Literaturverzeichnis

- Allen, S.J. and R.A. Vincent, Gravity wave activity in the lower atmosphere: Seasonal and latitudinal variations, *J. Geophys. Res.*, 100, 1327–1350, 1995.
- Baker, M.B., Cloud microphysics and climate, *Science*, 276, 1072–1078, 1997.
- Birner, T., A. Dörnbrack and U. Schumann, How sharp is the tropopause at midlatitudes?, *Geophys. Res. Lett.*, 29(14), 1700, doi:10.1029/2002GL015142, 2002.
- Borrmann, S., S. Solomon, J.E. Dye and B. Luo, The potential of cirrus clouds for heterogeneous chlorine activation, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2133–2136, 1996.
- Boucher, O., Air traffic may increase cirrus cloudiness, *Nature*, 397, 30–31, 1999.
- Chang, H.-Y., T. Koop, L.T. Molina and M.J. Molina, Phase transitions in emulsified HNO<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>O and HNO<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O solutions, *J. Phys. Chem. A.*, 103, 2673–2679, 1999.
- Chen, Y., P.J. DeMott, S.M. Kreidenweis, D.C. Rogers and D.E. Sherman, Ice formation by sulfate and sulfuric acid aerosols particles under upper tropospheric conditions, *J. Atmos. Sci.*, 57, 3752–3766, 2000.
- Colberg, C.A., B.P. Luo, H. Wernli, T. Koop and Th. Peter, A novel model to predict the physical state of atmospheric H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/NH<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>O aerosol particles, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 909–924, 2003.
- DeMott, P.J., D.C. Rogers and S.M. Kreidenweis, The susceptibility of ice formation in upper tropospheric clouds to insoluble aerosol components, *J. Geophys. Res.*, 102, 19575–19584, 1997.
- DeMott, P.J., Y. Chen, S.M. Kreidenweis, D.C. Rogers and D.E. Sherman, Ice formation by black carbon particles, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 2429–2432, 1999.
- Eckhardt, S., A. Stohl, H. Wernli, P. James, C. Forster and N. Spichtinger, A 15-year climatology of warm conveyor belts, *J. Climate*, 17, 218–237, 2004.
- Field, P.R., R.J. Cotton, K. Noone, P. Glantz, P.H. Kaye, E. Hirst, R.S. Greenaway, C. Jost, R. Gabriel, T. Reiner, M. Andreae, C.P.R. Saunders, A. Archer, T. Choularton,

- M. Smith, R. Brooks, C. Hoell, B. Bandy, D. Johnson and A.J. Heymsfield, Ice nucleation in orographic wave clouds: Measurements made during INTACC, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 127, 1493–1512, 2001.
- Fletcher, N.H., *The Physics of Rainclouds*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1962.
- Fu, Q. and K.-N. Liou, Parameterization of the Radiative Properties of Cirrus Clouds, *J. Atmos. Sci.*, 50, 2008–2025, 1993.
- Gardner, C.S, C.A. Hostetler and S.J. Franke, Gravity wave models for the horizontal wave number spectra of atmospheric velocity and density fluctuations, *J. Geophys. Res.*, 98, 1035–1049, 1993.
- Gary, B., Mesoscale temperature fluctuations: An overview, verfügbar auf Website: <http://reductionism.net.seanic.net/bgary.mtp2/isentrop/index.html>, 2002.
- Gierens, K., U. Schumann, M. Helten, H. Smit and A. Marenco, A distribution law for relative humidity in the upper troposphere and lower stratosphere derived from three years of MOZAIC measurements, *Ann. Geophys.*, 17, 1218–1226, 1999.
- Gierens, K., U. Schumann, M. Helten, H. Smit and P.-H. Wang, Ice-supersaturated regions and subvisible cirrus in the northern midlatitude upper troposphere, *J. Geophys. Res.*, 105, 22743–22753, 2000.
- Haag, W., B. Kärcher, S. Schaefer, O. Stetzer, O. Möhler, U. Schurath, M. Krämer and C. Schiller, Numerical simulations of homogeneous freezing processes in the aerosol chamber AIDA, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 195–210, 2003a.
- Haag, W., B. Kärcher, J. Ström, U. Lohmann, J. Ovarlez and A. Stohl, Freezing thresholds and cirrus cloud formation mechanisms inferred from in situ measurements of relative humidity, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1791–1806, 2003b.
- Haynes, D.R., N.J. Tro and S.M. George, Condensation and evaporation of H<sub>2</sub>O on ice surfaces, *J. Phys. Chem.*, 96, 8502–8509, 1992.
- Heymsfield, A.J. and L.M. Miloshevich, Homogeneous ice nucleation and supercooled liquid water in orographic waves clouds, *J. Atmos. Sci.*, 50, 2335–2353, 1993.
- Heymsfield, A.J. and L.M. Miloshevich, Relative humidity and temperature influences on cirrus formation and evolution: Observations from wave clouds and FIRE II, *J. Atmos. Sci.*, 52, 4302–4326, 1995.
- Heymsfield, A.J., L.M. Miloshevich, C. Twohy, G. Sachse and S. Oltmans, Upper-tropospheric relative humidity observations and implications for cirrus ice nucleation, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 1343–1346, 1998.

- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), *Climate Change 2001: The Science of Climate Change*, Third Assessment Report, edited by J.T. Houghton et al., Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2001.
- Jacobson, M.Z., *Fundamentals of Atmospheric Modeling*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, U. K., 1999.
- Jensen, E.J., O.B. Toon, D.L. Westphal, S. Kinne and A.J. Heymsfield, Microphysical modeling of cirrus, 1. Comparison with 1986 FIRE IFO measurements, *J. Geophys. Res.*, 99, 10421–10442, 1994a.
- Jensen, E.J., O.B. Toon, D.L. Westphal, S. Kinne and A.J. Heymsfield, Microphysical modeling of cirrus, 2. Sensitivity studies, *J. Geophys. Res.*, 99, 10443–10454, 1994b.
- Jensen, E.J., O.B. Toon, L. Pfister and H.B. Selkirk, Dehydration of the upper troposphere and lower stratosphere by subvisible cirrus clouds near the tropical tropopause, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 825–828, 1996.
- Jensen, E.J. and O.B. Toon, The potential impact of soot particles from aircraft exhaust on cirrus clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 249–252, 1997.
- Jensen, E.J., O.B. Toon, A. Tabazadeh, G.W. Sachse, B.E. Anderson, K.R. Chan, C.W. Twohy, B. Gandrud, S.M. Aulenbach, A.J. Heymsfield, J. Hallett and B. Gary, Ice nucleation processes in upper tropospheric wave-clouds observed during SUCCESS, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 1363–1366, 1998.
- Jensen, E.J., O.B. Toon, S.A. Vay, J. Ovarlez, R. May, T.P. Bui, C.H. Twohy, B.W. Gandrud, R.F. Peuschel and U. Schumann, Prevalence of ice-supersaturated regions in the upper troposphere: Implications for optically thin ice cloud formation, *J. Geophys. Res.*, 106, 17253–17266, 2001.
- Kärcher, B. and W. Haag, Factors controlling upper tropospheric relative humidity, *Ann. Geophys.*, im Druck, 2004.
- Kärcher, B. and U. Lohmann, A parameterization of cirrus cloud formation: Homogeneous freezing including effects of aerosol size, *J. Geophys. Res.*, 107(D23), 4698, doi:10.1029/2001JD001429, 2002.
- Kärcher, B. and U. Lohmann, A parameterization of cirrus cloud formation: Heterogeneous freezing, *J. Geophys. Res.*, 108(D14), 4402, doi:10.1029/2002JD003220, 2003.
- Kärcher, B. and J. Ström, The roles of dynamical variability and aerosols in cirrus cloud formation, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 823–838, 2003.
- Koop, T., B.P. Luo, U.M. Biermann, P.J. Crutzen and Th. Peter, Freezing of HNO<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O solutions at stratospheric temperatures: Nucleation statistics and Experiments, *J. Phys. Chem. A.*, 101, 1117–1133, 1997.

- Koop, T., H.P. Ng, L.T. Molina and M.J. Molina, A new optical technique to study aerosol phase transitions: The nucleation of ice from  $\text{H}_2\text{SO}_4$  aerosols, *J. Phys. Chem. A.*, 102, 8924–8931, 1998.
- Koop, T., B.P. Luo, A. Tsias and Th. Peter, Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions, *Nature*, 406, 611–614, 2000.
- Kristensson, A., J.F. Gayet, J. Ström and F. Auriol, In situ observations of a reduction in effective crystal diameter in cirrus clouds near flight corridors, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 681–684, 2000.
- Krüger, O. and H. Graßl, The indirect aerosol effect over Europe, *Geophys. Res. Lett.*, 29(19), 1925, doi:10.1029/2001GL014081, 2002.
- Lin, R.-F., K.J. Noone, J. Ström and A.J. Heymsfield, Small ice crystals in cirrus clouds: A model study and comparison with in situ observations, *J. Atmos. Sci.*, 55, 1928–1939, 1998a.
- Lin, R.-F., K.J. Noone, J. Ström and A.J. Heymsfield, Dynamical influences on cirrus cloud formation processes, *J. Atmos. Sci.*, 55, 1940–1949, 1998b.
- Lin, R.-F., D.O’C. Starr, P.J. DeMott, R. Cotton, K. Sassen, E. Jensen, B. Kärcher and X. Liu, Cirrus parcel model comparison project phase 1: The critical components to simulate cirrus initiation explicitly, *J. Atmos. Sci.*, 59, 2305–2329, 2002
- Liou, K.-N., Influence of cirrus clouds on weather and climate processes: A global perspective, *Mon. Wea. Rev.*, 114, 1167–1199, 1986.
- Lohmann, U. and B. Kärcher, First interactive simulations of cirrus clouds formed by homogeneous freezing in the ECHAM general circulation model, *J. Geophys. Res.*, 107(D10), 4105, doi:10.1029/2001JD000767, 2002.
- Luo, B.P., K.S. Carslaw, Th. Peter and S.L. Clegg, Vapour pressures of  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{HCl}/\text{HBr}/\text{H}_2\text{O}$  solutions to low stratospheric temperatures, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 247–250, 1995.
- Marti, J. and K. Mauersberger, A survey and new measurements of ice vapor pressure at temperatures between 150 and 250 K, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 363–366, 1993.
- Meilinger, S.K., B. Kärcher, R. von Kuhlmann and Th. Peter, On the impact of heterogeneous chemistry on ozone in the tropopause region, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 515–518, 2001.
- Meerkötter, R., U. Schumann, D.R. Doelling, P. Minnis, T. Nakajima and Y. Tsushima, Radiative forcing by contrails, *Ann. Geophys.*, 17, 1080–1094, 1999.

- Minikin, A., A. Petzold, J. Ström, R. Krejci, M. Seifert, P. van Velthoven, H. Schlager and U. Schumann, Aircraft observations of the upper tropospheric fine particle aerosol in the northern and southern hemispheres at midlatitudes, *Geophys. Res. Lett.*, 30(10), 1503, doi:10.1029/2002GL016458, 2003.
- Minnis, P., U. Schumann, D.R. Doelling, K.M. Gierens and D.W. Fahey, Global distribution of contrail radiative forcing, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 1853–1856, 1999.
- Möhler, O., O. Stetzer, S. Schaefers, C. Linke, M. Schnaiter, R. Tiede, H. Saathoff, M. Krämer, A. Mangold, P. Budz, P. Zink, J. Schreiner, K. Mauersberger, W. Haag, B. Kärcher and U. Schurath, Experimental investigations of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 211–223, 2003.
- Müller, R. and Th. Peter, The numerical modelling of the sedimentation of polar stratospheric cloud particles, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, 3, 353–361, 1992.
- Murphy, D.M., D.S. Thomson and M.J. Mahoney, In situ measurements of organics, meteoritic material, mercury, and other elements in aerosols at 5 to 19 kilometers, *Science*, 282, 1664–1669, 1998.
- Ovarlez, J. and P. van Velthoven, Comparison of water vapor measurements with data retrieved from ECMWF analyses during the POLINAT experiment, *J. Appl. Meteorol.*, 36, 1329–1335, 1997.
- Ovarlez, J., P. van Velthoven, G. Sachse, S. Vay, H. Schlager and H. Ovarlez, Comparison of water vapor measurements from POLINAT 2 with ECMWF analyses in high-humidity conditions, *J. Geophys. Res.*, 105, 3737–3744, 2000.
- Ovarlez, J., J.-F. Gayet, K. Gierens, J. Ström, H. Ovarlez, F. Auriol, R. Busen and U. Schumann, Water vapour measurements inside cirrus clouds in Northern and Southern hemispheres during INCA, *Geophys. Res. Lett.*, 29(16), 1813, doi:10.1029/2001GL014440, 2002.
- Pichler, H., *Dynamik der Atmosphäre*, Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, 1997.
- Prenni, A.J., M.E. Wise, S.D. Brooks and M.A. Tolbert, Ice nucleation in sulfuric acid and ammonium sulfate particles, *J. Geophys. Res.*, 106, 3037–3044, 2001.
- Preuße, P., *Satellitenmessungen von Schwerewellen in der mittleren Atmosphäre mit CHRISTA*, Dissertation, Bergische Universität – Gesamthochschule Wuppertal, 2001.
- Pruppacher, H.R. and J.D. Klett, *Microphysics of Clouds and Precipitation*, Kluwer Acad. Pub., Dordrecht, 1997.
- Rogers, D.C., P.J. DeMott, S.M. Kreidenweis and Y. Chen, Measurements of ice nucleating aerosols during SUCCESS, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 1383–1386, 1998.

- Schröder, F., B. Kärcher, C. Duroure, J. Ström, A. Petzold, J.-F. Gayet, B. Strauss, P. Wendling and S. Borrmann, On the transition of contrails into cirrus clouds, *J. Atmos. Sci.*, 57, 464–480, 2000.
- Schröder, F., B. Kärcher, M. Fiebig and A. Petzold, Aerosol states in the free troposphere at northern midlatitudes, *J. Geophys. Res.*, 107(D21), 8126, doi:10.1029/2000JD000194, 2002.
- Seifert, M., J. Ström, R. Krejci, A. Minikin, A. Petzold, J.-F. Gayet, U. Schumann and J. Ovarlez, In situ observations of aerosol particles remaining from evaporated cirrus crystals: Comparing clean and polluted air masses, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1037–1049, 2003.
- Sheridan, P.J., C.A. Brock and J.C. Wilson, Aerosol particles in the upper troposphere and lower stratosphere: Elemental composition and morphology of individual particles at northern midlatitudes, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2587–2590, 1994.
- Solomon, S., S. Borrmann, R.R. Garcia, R. Portmann, L. Thomason, L.R. Poole, D. Winker and M.P. McCormick, Heterogeneous chlorine chemistry in the tropopause region, *J. Geophys. Res.*, 102, 21411–21429, 1997.
- Spichtinger, P., K. Gierens and W. Read, The statistical distribution law of relative humidity in the global tropopause region, *Meteorol. Z.*, 11, 83–88, 2002.
- Stohl, A., M. Hittenberger and G. Wotawa, Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data, *Atmos. Environ.*, 32, 4245–4264, 1998.
- Stohl, A. and P. Seibert, Accuracy of trajectories as determined from the conservation of meteorological tracers, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 124, 1465–1484, 1998.
- Ström, J., B. Strauss, T. Anderson, F. Schröder, J. Heintzenberg and P. Wendling, In situ observations of the microphysical properties of young cirrus clouds, *J. Atmos. Sci.*, 54, 2542–2553, 1997.
- Ström, J. and S. Ohlsson, In situ measurements of enhanced crystal number densities in cirrus clouds caused by aircraft exhaust, *J. Geophys. Res.*, 103, 11355–11361, 1998.
- Ström, J., M. Seifert, B. Kärcher, J. Ovarlez, A. Minikin, J.F. Gayet, R. Krejci, A. Petzold, F. Auriol, W. Haag, R. Busen, U. Schumann, and H.C. Hansson, Cirrus cloud occurrence as function of ambient relative humidity: A comparison of observations obtained during the INCA experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1807–1816, 2003.
- Tabazadeh, A., E.J. Jensen and O.B. Toon, A model description for cirrus cloud nucleation from homogeneous freezing of sulfate aerosols, *J. Geophys. Res.*, 102, 23845–23850, 1997.

- Talbot, R.W., J.E. Dibb and M.B. Loomis, Influences of vertical transport on free tropospheric aerosols over the central USA in springtime, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 1367–1370, 1998.
- Tiedke, M., Representation of clouds in large-scale models, *Mon. Wea. Rev.*, 121, 3040–3061, 1993.
- Toon, O.B, R.P. Turco, J. Jordan, J. Goodman and G. Ferry, Physical processes in polar stratospheric ice clouds, *J. Geophys. Res.*, 94, 11359–11380, 1989.
- Twomey, S., Pollution and the planetary albedo, *Atmos. Environ.*, 8, 1251–1256, 1974.
- Wirth, V., Static stability in the extratropical tropopause region, *J. Atmos. Sci.*, 60, 1395–1409, 2003.
- Zöger, M., A. Afchine, N. Eicke, M.-T. Gerhards, E. Klein, D.S. McKenna, U. Mörschel, U. Schmidt, V. Tan, F. Tuitjer, T. Woyke and C. Schiller, Fast in situ stratospheric hygrometers: A new family of balloon-borne and airborne Lyman- $\alpha$  photofragment fluorescence hygrometers, *J. Geophys. Res.*, 104, 1807–1816, 1999.
- Zuberi, B., A.K. Bertram, T. Koop, L.T. Molina and M.J. Molina, Heterogeneous freezing of aqueous particles induced by crystallized  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ , ice, and letovicite, *J. Phys. Chem. A.*, 105, 6458–6464, 2001.
- Zuberi, B., A.K. Bertram, C.A. Cassa, L.T. Molina and M.J. Molina, Heterogeneous nucleation of ice in  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$  particles with mineral dust immersions, *Geophys. Res. Lett.*, 29(10), 1504, doi:10.1029/2001GL014289, 2002.



## Danksagung

Mein Dank gilt insbesondere Priv.Doz. Dr. Bernd Kärcher für die Betreuung dieser Arbeit. Seine ständige Bereitschaft für Fragen, seine Anregungen und sein Einsatz trugen wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit bei.

Prof. Dr. Joseph Egger danke ich für die Übernahme der Tätigkeit als Zweitgutachter und Prof. Dr. Ulrich Schumann für die Möglichkeit, eine Dissertation am Institut für Physik der Atmosphäre des DLR Oberpfaffenhofen anfertigen zu können.

Bei Univ.Doz. Dr. Andreas Stohl von der TUM möchte ich mich für die Berechnung der ECMWF-Trajektorien bedanken, für das Aufbereiten der INCA-Daten gilt mein Dank Dr. Andreas Minikin. Dr. Klaus-Peter Hoinka danke ich für das Bereitstellen von ECMWF-Daten.

Für die gute Zusammenarbeit mit dem Forschungszentrum Karlsruhe möchte ich mich stellvertretend bei Dr. Ottmar Möhler bedanken.

Schließlich möchte ich mich bei allen Mitarbeitern des Instituts für Physik der Atmosphäre bedanken, die mir während meiner Arbeit hilfreich zur Verfügung standen.



# Lebenslauf

## Persönliche Daten

Name: Werner Haag  
geboren am: 31.8.1972  
in: Zams, Österreich  
wohnhaft: Marktplatz 16, A-6500 Landeck  
Staatsbürgerschaft: Österreich

## Schulbildung

1978–1982 Volksschule Landeck  
1982–1986 Hauptschule Landeck  
1986–1991 Bundeshandelsakademie Imst

## Studium

1991–1998 Meteorologiestudium am Institut für Meteorologie der Universität Innsbruck  
Thema der Diplomarbeit: “Untersuchungen von polaren Kaltluftausbrüchen nach Mitteleuropa mit Hilfe des Konzeptes der potentiellen Vorticity”

## Wehrdienst

01/1999–09/1999

## Promotion

seit Juli 2000 Doktorand am Institut für Physik der Atmosphäre des DLR Oberpfaffenhofen