
Entwicklung und Anwendung eines gekoppelten Klima–Chemie–Modellsystems.

Globale Spurengastransporte und chemische Umwandlungsprozesse.

Christian Kurz



München 2005

Entwicklung und Anwendung eines gekoppelten Klima–Chemie–Modellsystems.

Globale Spurengastransporte und chemische Umwandlungsprozesse.

Christian Kurz

Dissertation
an der Fakultät für Physik
der Ludwig–Maximilians–Universität
München

vorgelegt von
Christian Kurz
aus Fürstenfeldbruck

München, Dezember 2005

Erstgutachter: Priv. Doz. M. Dameris

Zweitgutachterin: Prof. S. Crewell

Tag der mündlichen Prüfung: 24.01.2006

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	iii
1 Motivation und Einführung	1
2 Modellbeschreibung	9
2.1 Das globale Zirkulationsmodell ECHAM5	9
2.2 ECHAM5.L41	11
2.2.1 Vertikalkoordinaten in ECHAM	12
2.3 Das NUDGE Modul	18
2.3.1 Die Idee hinter dem Nudging	18
2.3.2 Nudging in ECHAM5(.L41)/NUDGE	19
2.3.3 Bedeutung der Relaxations-Koeffizienten	21
2.3.4 Vorprozessierung der Nudging-Daten	22
2.4 Das Chemiemodul MECCA	23
2.4.1 Obere Randbedingungen für das Chemiemodul	24
2.4.2 Initialisierung der chemischen Spurenstoffe	25
3 Transportstudien mit kanadischen Waldbrand-Spurenstoffen	27
3.1 Hintergründe	28
3.2 Experiment-Setup	29
3.2.1 Beschreibung der Waldbrand-Emissionsdatensätze	29
3.2.2 Übersicht über die durchgeführten Simulationen	32
3.3 Interkontinentaltransport des Waldbrand-Tracers	34
3.4 Beobachtungen an der Station Mace Head	36
3.4.1 Die Simulation „forest fire only“	37
3.4.2 Die Simulation „total CO, passiv“	40
3.4.3 Die Simulation „chemical CO“	42

3.4.4	Simulationen mit reduzierter Modellauflösung	43
3.5	Auswirkung von Waldbrandemissionen auf die Ozonproduktion	47
4	Simulationen zur Chemie der oberen tropischen Troposphäre	51
4.1	Die Bedeutung der Stickoxide – Das Projekt TROCCINOX	51
4.2	Blitzparametrisierung im globalen Modell	53
4.2.1	Parametrisierung nach Price und Rind	53
4.2.2	Parametrisierung nach Grewe	53
4.2.3	Unterscheidung zwischen Wolke–Wolke– und Wolke–Boden–Blitzen	54
4.2.4	Die NO–Produktion durch Blitze	54
4.2.5	Vertikale Verteilung der Blitz–NO–Emissionen	55
4.3	Vergleiche zwischen gemessenen und simulierten Stickoxid–Verteilungen . .	57
4.3.1	Fallstudien: Abweichungen zwischen Modellergebnis und Messung .	64
4.3.2	Vertikale NO–Verteilungen	69
4.4	Die Ozon– und CO–Verteilung während ausgewählter TROCCINOX Flüge	71
4.4.1	Möglicher Einfluss von Emissionen aus Biomassenverbrennung . . .	79
4.5	Variation der Gesamt–Blitz–NO–Emissionen	80
4.6	Anmerkung zur Lösung des chemischen Gleichungssystems	82
5	Simulationen zur Dynamik und Chemie der polaren Stratosphäre	85
5.1	Einführung – der antarktische Polarwirbel im Winter und Frühling 2002 . .	86
5.2	Transport „passiver“ Spurenstoffe im ECHAM5–Modellsystem	87
5.2.1	Die Verteilungen passiver Spurenstoffe in ECHAM5	89
5.2.2	Horizontale Einmischvorgänge in den Polarwirbel	98
5.2.3	Mögliche Gründe für zu starke Einmischvorgänge in den Polarwirbel	102
5.3	Chemie der polaren Stratosphäre in der ECHAM5/MECCA–Simulation . .	104
5.3.1	Die Temperaturverteilung in der ECHAM5–Simulation	104
5.3.2	Die Ozonverteilung im Modell und den MIPAS–Daten	107
5.3.3	Die Verteilungen der chlorhaltigen Spurengase	111
5.4	Abschließende Bewertung und Ausblick	120
6	Zusammenfassung und Ausblick	123
	Literaturverzeichnis	129
	Abkürzungsverzeichnis	141

Kurzfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden Simulationen mit einer neuen, von Beobachtungen der Dynamik mittels Relaxation angetriebenen Version des globalen Klima-Chemie Modells ECHAM5/-NUDGE/MECCA durchgeführt und diskutiert. Dieses Modellsystem stellt ein wichtiges Werkzeug dar, um Modellergebnisse direkt mit Beobachtungen zu vergleichen und gezielt einzelne Parametrisierungen verbessern zu können. Die gewonnenen Erkenntnisse können dann auf das „freilaufende“ Klima-Chemie Modell übertragen werden.

Als wichtiger technischer Schritt wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Modellversion mit einer insbesondere im Tropopausenbereich erhöhten vertikalen Auflösung entwickelt. Diese Modellversion besitzt 41 (vorher: 19) vertikale Schichten. Die Auflösung im Tropopausenbereich konnte mit etwa 700 Metern annähernd verdreifacht werden. Viele im Modell parametrisierte wolkenmikrophysikalische Prozesse sind auflösungsabhängig. Eine Erhöhung der Anzahl an Modellschichten führte zu einer signifikanten Reduzierung der konvektiven Bewölkung, speziell in den Tropen. Dies hatte eine Änderung der Strahlungsbilanz am Oberrand der Modellatmosphäre zur Folge. Daher wurden in einer Reihe von Sensitivitätsstudien die Parameter in der Wolkenparametrisierung auf die neue Modellauflösung angepasst, um die Strahlungsbilanz in Übereinstimmung mit Satellitenbeobachtungen zu bringen.

Als nächster Schritt wurden die großräumigen Transporteigenschaften der neuen ECHAM5/-NUDGE/MECCA Modellversion evaluiert. Dazu wurde der Interkontinentaltransport von Kohlenmonoxid untersucht, das von kanadischen Waldbränden emittiert wurde. Die ECHAM-Modellergebnisse wurden mit bereits vorhandenen, in der Literatur gut dokumentierten Simulationen des Lagrangeschen Partikeldispersionsmodells FLEXPART verglichen. Neben der Untersuchung von Kohlenmonoxid konnte erstmals eine erhöhte photochemische Ozonproduktion durch die Waldbrandspurengase im Modell für diese spezielle Episode nachgewiesen werden. Die resultierenden erhöhten Ozonwerte über Europa konnten durch Beobachtungen bestätigt werden. Das so überprüfte Modell wurde dann eingesetzt, um Stickoxidmessungen in der oberen tropischen Troposphäre während der TROCCINOX-Flugmesskampagne zu bewerten. Da Blitze eine entscheidende Quelle für Stickoxide in der Troposphäre sind, wurden zwei verschiedene Blitz-NO-Parametrisierungen im Modell miteinander verglichen. Eine in der Mehrzahl aller globaler Modelle eingesetzte Standardparametrisierung, die die Blitzhäufigkeit an die konvektive Wolkenhöhe koppelt, war nicht in der Lage die beobachtete Variabilität der NO-Messungen zu reproduzieren. Dies ist erstmals durch Verwendung einer alternativen Parametrisierung möglich, die den konvektiven Massenfluss innerhalb einer Wolke berücksichtigt.

Abschließend wurden Simulationen zum Transportverhalten in der polaren Stratosphäre durchgeführt. Durch einen Vergleich des hauptsächlich durch Transport bestimmten Spurengases Methan mit MIPAS/ENVISAT Satellitenbeobachtungen konnte gezeigt werden, dass insbesondere der vertikale Transport innerhalb des Südpolarwirbels während des Südwinters und -frühlings erst durch Verwendung der im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten, vertikal höher aufgelösten Modellversion reproduziert werden kann. Allerdings fällt der meridionale Gradient der Spurengasverteilung am Wirbelrand wegen der vergleichbar niedrigen horizontalen Modellauflösung von etwa $2,8^\circ$ zu gering aus. Der katalytische Ozonabbau im Polarwirbel ist daher durch Einströmen ozonreicher extrapolarer Luftmassen überlagert. Die simulierten Ozonmischungsverhältnisse fallen somit etwas höher aus als die MIPAS-Messungen.

Kapitel 1

Motivation und Einführung

Der weiträumige, interkontinentale Transport von Spurenstoffen in der Atmosphäre ist ein wichtiger Vorgang, der die chemische Zusammensetzung von Luftmassen auch noch in weit von der Emissionsquelle entfernten Regionen beeinflussen kann. Beispielsweise können verschmutzte Luftmassen aus industrialisierten Gebieten über große Entfernungen transportiert werden und so zu einer messbaren Verschmutzung in ursprünglichen „Reinluftgebieten“ führen: über Nordamerika emittierte Spurengase werden z.B. über den Atlantik verfrachtet und führen in Europa zu nachweisbaren Veränderungen. Auch die in Europa emittierten Abgase können über weite Entfernungen bis über Osteuropa hinweg transportiert werden. Spurenstoffe, die bei der Verbrennung von Biomasse in Afrika freigesetzt werden, können oftmals über Südamerika registriert werden. Daher ist es erforderlich, solche Transportprozesse zu untersuchen. Globale numerische Modelle der Atmosphäre sind dabei ein wichtiges Hilfsmittel. Oftmals geschieht dies mit so genannten „passiven“ Transportmodellen (Partikeldispersionsmodelle), die den Transport sowie Mischungsprozesse, jedoch keine chemischen Umwandlungen simulieren. Gerade für chemisch wenig aktive Spurengase wie Kohlenmonoxid (CO) kann deren Abbau dabei einfach über eine mittlere Lebenszeit parametrisiert werden. Daneben gibt es jedoch auch eine Reihe an chemisch sehr reaktiven Stoffen, wie beispielsweise Stickoxide, für die diese Vereinfachung nicht gültig ist.

Aus diesem Grund werden globale Modelle benötigt, die chemische Umwandlungsprozesse in den Berechnungen mit berücksichtigen. Es wird dabei unterschieden zwischen so genannten Chemietransportmodellen (CTM) und globalen Klima-Chemiemodellen (CCM, *engl.* climate chemistry models). In CTMs wird die Dynamik auf Basis von Beobachtungen oder anderer dynamischer Modellsysteme als externer Antrieb vorgegeben. Dadurch wird Rechenzeit eingespart, die z.B. für die Berechnung zusätzlicher chemischer Reaktionen genutzt werden kann. CTMs verwenden in der Regel sehr komplexe Chemiemechanismen. In CCMs wird dagegen die Dynamik der Atmosphäre explizit vom Modell simuliert. CCMs werden üblicherweise für Klimasimulationen eingesetzt, sie werden über wesentlich längere Zeiträume (meist mehrere Dekaden) integriert. Daher muss aus Effizienzgründen in der Regel der Chemiemechanismus vereinfacht werden. CCMs werden beispielsweise

eingesetzt, um die Auswirkungen menschlicher Aktivitäten auf das Klima zu untersuchen. Wichtig ist dabei, dass auch Rückkopplungsprozesse der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre und der Dynamik untersucht werden können. Die Studien im Rahmen der vorliegenden Arbeit werden mit einer neuen Version des globalen Klima-Chemiemodells ECHAM5/MECCA durchgeführt. Ein wichtiges Ziel ist die Evaluierung des Transportverhaltens und der chemischen Prozesse in diesem neuen Modellsystem.

Insbesondere das vom Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz entwickelte und zur Verfügung gestellte Chemiemodul MECCA (Module Efficiently Calculating the Chemistry of the Atmosphere, Sander et al., 2005) stellt einen wichtigen Fortschritt dar. Aus den oben genannten Gründen waren in bisherigen CCMs im Wesentlichen nur Reaktionen zur Simulation der stratosphärischen Ozonchemie berücksichtigt. Die Troposphärenchemie wurde hingegen mit sehr vereinfachten Reaktionsmechanismen beschrieben, die z.B. die Oxidation von Methan, aber keinerlei höhere Kohlenwasserstoffe enthielten. Chemietransportmodelle, auf der anderen Seite, enthalten meist sehr komplexe troposphärische Reaktionsmechanismen, dafür aber in der Regel keine explizite Stratosphärenchemie. Diese wird oft vereinfachend als obere Randbedingung an der Tropopause vorgegeben. Mit dem neuen Chemiemodul MECCA wird nun sowohl eine komplexe stratosphärische als auch eine vollständige Troposphärenchemie mit höherwertigen Kohlenwasserstoffen bereitgestellt.

Evaluierung eines Klima-Chemiemodellsystems

Bevor diese neue Modellversion eingesetzt wird, muss insbesondere überprüft werden, ob das Chemiemodul in Kombination mit dem globalen ECHAM5-Modell die beobachtete Spurengasverteilung in der Atmosphäre wiedergeben kann. Eine wichtige Motivation für die vorliegende Arbeit ist daher die Fragestellung, wie die Verteilung speziell der chemischen Spurenstoffe in einem Klima-Chemiemodellsystem wie ECHAM5/MECCA validiert werden kann. Prinzipiell existieren dazu 3 verschiedene Ansätze:

- Ein klassisches „Zeitscheibenexperiment“,
- eine „transiente“ Klimasimulation und
- eine bzgl. der Dynamik von Beobachtungen angetriebene Modellsimulation.

Bei einem „**Zeitscheibenexperiment**“ werden die Randbedingungen im Modellsystem (also Meeresoberflächentemperaturen, Sonnenaktivität sowie die Konzentrationen der Treibhausgase) konstant gehalten. Dabei werden Werte verwendet, die charakteristisch für eine bestimmte Epoche (oder „Zeitscheibe“) wie beispielsweise die der 1990er Jahre sind. Das Modellsystem wird dann meist mehrere Dekaden im quasi-stationären Zustand unter den festgeschriebenen Randbedingungen integriert. Sowohl das natürliche wie auch

das simulierte Klima besitzen eine gewisse interannuale Variabilität. Es ist somit nicht möglich, Beobachtungen aus einzelnen Jahren direkt mit den entsprechenden Modelljahren zu vergleichen. Zur Auswertung von Zeitscheibenexperimenten werden daher in der Regel Mittelwerte über alle Modelljahre sowie die Standardabweichungen untersucht. Um Messungen mit diesem simulierten Ensemble sinnvoll vergleichen zu können, sind somit aufgrund der interannualen Variabilität sehr lange Beobachtungszeitreihen notwendig, um statistisch belastbare Aussagen treffen zu können. Hier besteht aber zum Einen die Schwierigkeit, dass gerade von vielen chemischen Spurenstoffen keine langen Zeitreihen existieren. Auch wenn solche vorliegen ergibt sich das Problem, dass diese in der Regel Trends enthalten. Anschaulich wird dies am Beispiel der Methankonzentration in der Atmosphäre, die zeitlich nicht konstant ist sondern durch Emissionen im Laufe der Zeit angestiegen ist und auch gegenwärtig weiter steigt. Solche Trends können aber mit Zeitscheibenexperimenten prinzipiell nicht erfasst werden, da ja die Randbedingungen festgehalten werden.

Deshalb werden so genannte „**transiente**“ **Klimasimulationen** durchgeführt. Hierbei sind nun zeitlich variable Randbedingungen zugelassen. Durch eine Änderung beispielsweise der Meeresoberflächentemperaturen und insbesondere durch eine Zunahme der Treibhausgaskonzentrationen im Lauf der Jahre kann in einer transienten Simulation die Klimaänderung innerhalb mehrerer Dekaden erfasst werden. Eine solche Simulation wurde in jüngster Zeit mit der Modellversion ECHAM4.L39(DLR)/CHEM durchgeführt (Dameris et al., 2005). Diese Art von Modellstudien sind geeignet, um langfristige Trends im Klimasystem zu analysieren. Bei der Validierung eines Modellsystems mittels transientser Simulationen ergibt sich aber auch die Notwendigkeit, dass möglichst lange Beobachtungszeitreihen erforderlich sind. Auch hier besteht wieder das Problem, dass von vielen chemischen Spurenstoffen keine solchen Zeitreihen existieren oder regional sehr begrenzt vorliegen und somit nicht ideal zur Validierung eines globalen Modellsystems geeignet sind.

Aus diesem Grund wird im Rahmen der vorliegenden Arbeit der dritte Ansatz verfolgt, bei dem das globale Zirkulationsmodell mittels **Relaxation** von beobachteten dynamischen Größen angetrieben wird. Somit können gezielt einzelne Episoden nachsimuliert werden und Messungen direkt mit den Modellergebnissen verglichen werden. Hierbei können nun sowohl „Punktmessungen“, also typischerweise Messungen an einzelnen Stationen genutzt werden, als auch Ergebnisse von Messkampagnen, beispielsweise die Spurenstoffverteilung entlang von Flugrouten. Schließlich besteht auch die Möglichkeit, die Modellergebnisse direkt mit punktuellen Satellitenbeobachtungen zu vergleichen. Zusätzlich zur Validierung des eigenen Modellsystems können die Ergebnisse einer relaxierten Simulation natürlich auch direkt genutzt werden, um beispielsweise die während einer Messkampagne gewonnenen Messungen im globalen Zusammenhang zu bewerten.

In der Regel sind die Verteilungen von chemischen Spurenstoffen direkt von der synoptischen Situation abhängig, etwa durch die Dynamik. Die Konzentrationen der Spurenstoffe

sind darüberhinaus auch durch die Temperatur (die die Reaktionsraten bestimmt) oder die Feuchteverteilung (die etwa zum Auswaschen von Spurenstoffen führt) kontrolliert. In der oberen Troposphäre ist darüber hinaus z.B. die Kenntnis von vorangegangenen Gewittern erforderlich, da Gewitter eine sehr wichtige Quelle für Stickoxide sind.

Die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten direkten Vergleiche von ECHAM5/MECCA-Modellergebnissen mit Beobachtungsdaten können nur deshalb durchgeführt werden, da die synoptische Situation im Modell der während der Messung entspricht. Die Relaxation der dynamischen Größen mittels des so genannten „NUDGE“-Moduls stellt ein Werkzeug dar, um die Verteilungen von chemischen Spurenstoffen im neuen Klima-Chemiemodellsystem ECHAM5/MECCA validieren und bewerten zu können. Da die durch den Vergleich mit Beobachtungen erlangten Erkenntnisse auf das „freilaufende“, also nicht relaxierte Klimamodell übertragbar sein sollen, ist es eine entscheidende Voraussetzung, dass die Modellphysik des ECHAM5-Systems nicht zu stark durch die Relaxation gestört wird. Die dazu notwendigen Grundlagen werden in Kapitel 2 vorgestellt.

Bedeutung der atmosphärischen Stickoxide – Der Stickstoffkreislauf

Stickoxide (NO und NO₂) spielen eine wichtige Rolle für die Atmosphärenchemie, da sie beispielsweise die Bildung und den Abbau von Ozon kontrollieren. Während des Tages stellt sich ein photochemisches Gleichgewicht zwischen Stickstoffoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO₂) ein, siehe Abbildung 1.1. Bei hohen Stickoxidmischungsverhältnissen kann dabei katalytisch Ozon produziert werden. Neben natürlichen Quellen wie der mikrobiologischen Produktion im Erdboden durch Bakterien, der Photolyse von Distickstoffoxid (N₂O) in der Stratosphäre sowie durch Blitze werden Stickoxide maßgeblich durch menschliche Aktivitäten wie Industrie und Verkehr sowie den Einsatz stickstoffhaltiger Düngemittel in der Landwirtschaft emittiert (Abbildung 1.1). Die Umwandlung in sehr gut wasserlösliches HNO₃, welches durch Regen ausgewaschen werden kann, stellt die wichtigste Senke dar. Gerade um den anthropogenen Einfluss der Stickoxidemissionen auf die globale Chemie abschätzen zu können, müssen zunächst die natürlichen Quellen bekannt sein und quantifiziert werden. Von allen Stickoxidquellen besitzen die natürlichen Emissionen durch Gewitter gegenwärtig noch den größten Unsicherheitsbereich. Dessen Reduzierung ist eine entscheidende Motivation für die vorliegende Arbeit und stellt gegenwärtig ein wichtiges Thema in der globalen Atmosphärenchemie-Modellierung dar. Desweiteren stellt speziell für Stickoxide die Umwandlung in so genannte „Reservoirgase“ wie PAN (Peroxyacetylnitrat) einen wichtigen Prozess dar. Die mittlere Lebensdauer von PAN in der oberen Troposphäre ist aufgrund der niedrigen Umgebungstemperaturen mit bis zu einigen Monaten deutlich höher als die Lebensdauer der ursprünglichen Stickoxide von wenigen Tagen. PAN kann somit über weite Strecken transportiert werden. In der unteren Troposphäre wird PAN durch die höheren Temperaturen aufgespalten und die

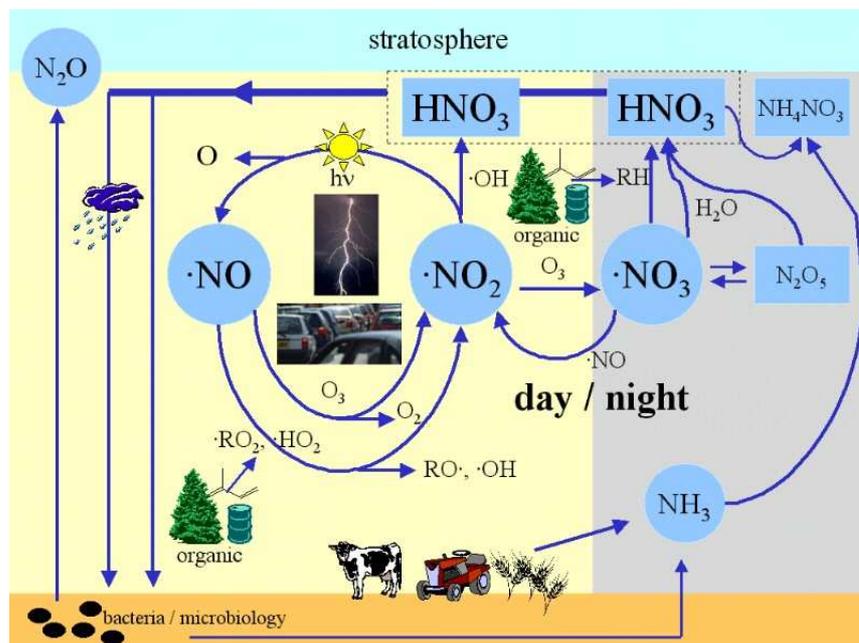


Abbildung 1.1: Schematische Übersicht des atmosphärischen Stickstoffkreislaufes. Elmar Uherek, ESPERE (Environmental Science Published for Everybody Round the Earth).

Stickoxide somit wieder freigesetzt. So können Stickoxidemissionen die Chemie der Atmosphäre in weit entfernten Regionen beeinflussen.

Ein Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit liegt daher auf Analysen von Modellergebnissen im Bereich der oberen tropischen Troposphäre. Dazu konnte das neue ECHAM5/NUDGE/MECCA Modellsystem erfolgreich im Rahmen einer Messkampagne eingesetzt werden: im Februar und März 2004 fand in Brasilien eine Flugmesskampagne im Rahmen des EU-Projektes TROCCINOX (Tropical Convection, Cirrus and Nitrogen Oxides Experiment) statt. Ein wichtiges Ziel von TROCCINOX ist es, speziell den Anteil der durch Gewitter produzierten Stickoxide zu quantifizieren. Durch Verwendung des NUDGE-Moduls kann die Dynamik während der TROCCINOX-Messkampagne im Modell simuliert werden. Die komplexen troposphärenchemischen Prozesse können dank des neuen Chemie-moduls MECCA untersucht werden.

MIPAS/ENVISAT Beobachtungen zur stratosphärischen Ozonchemie

Neben den im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Studien zur troposphärischen Stickoxidchemie ist es eine wichtige Motivation, das ECHAM5/NUDGE/MECCA Modellsystem auch zur Evaluierung von Prozessen einzusetzen, die die stratosphärische Ozonchemie beeinflussen. Die Verteilung der chemischen Spurenstoffe in der polaren Stratosphäre, insbesondere die Ausbildung eines polaren „Ozonlochs“, ist stark von sowohl dy-

namischen wie chemischen Prozessen abhängig. Die Dynamik des stratosphärischen Polarwirbels spielt eine entscheidende Rolle. Am Wirbelrand werden starke Zonalwinde beobachtet, die ein Einströmen von extrapolaren Luftmassen in den Wirbel verhindern. Die Luftmassen im Inneren des Polarwirbels sind daher während der jeweiligen Winter- und Frühlingsmonate von der Umgebungsluft abgegrenzt. Die für einen Ozonabbau entscheidenden Spurengase sind ferner maßgeblich durch einen Abwärtstransport über den Polarregionen aus der mittleren in die untere Stratosphäre beeinflusst. Auch bezüglich solcher stratosphärischer Vorgänge ergab sich die Möglichkeit, das ECHAM5/NUDGE/MECCA Modellsystem im Rahmen der vorliegenden Arbeit auf eine aktuelle Episode anzuwenden. Es wurden der Südwinter und Frühling 2002 ausgewählt, die sich durch eine bislang einzigartige Dynamik in der südpolaren Stratosphäre auszeichnen: es wurde erstmals eine große Stratosphärenenerwärmung beobachtet. Diese Episode ist aus zweierlei Gründen interessant für die Untersuchung. Zum Einen existiert dazu eine Reihe an Studien aus Chemietransportmodellen, mit denen die Ergebnisse des neuen ECHAM5/NUDGE/MECCA-Systems verglichen und bewertet werden können. Zum Anderen liegen hierfür die ersten Messungen des MIPAS-Gerätes (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) an Bord des europäischen Umweltsatelliten ENVISAT (Environmental Satellite) vor. Da es sich bei MIPAS um ein passives Infrarot-Interferometer handelt, sind die damit durchgeführten Messungen von chemischen Spurenstoffen, im Gegensatz zu den bisher weit verbreiteten Okkultationsmessungen, nicht auf direktes Sonnenlicht angewiesen. Somit können im Rahmen der vorliegenden Arbeit auch Aussagen über die Spurenstoffverteilung in der Polarnacht gemacht werden.

Gliederung der Arbeit

Zunächst wird in Kapitel 2 das neue ECHAM5/NUDGE/MECCA Modellsystem vorgestellt. Insbesondere werden einige Anpassungen von wolkenmikrophysikalischen Parametern angeführt, die für eine im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelte Modellversion mit erhöhter Vertikalauflösung nötig sind. Das Ziel dabei ist, die von der vertikalen Modellauflösung abhängige konvektive Bewölkung, und damit verbunden die Strahlungsbilanz am Oberrand der Atmosphäre, in Übereinstimmung mit der Standardmodellversion zu bringen. Dieser Vorgang wird auch als „Tuning“ des Modells bezeichnet.

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit sind im Wesentlichen in 3 Schwerpunkte aufgeteilt. Zunächst wird in Kapitel 3 das Transportverhalten des neuen relaxierten Modellsystems ECHAM5/NUDGE anhand eines Vergleiches mit einer bereits bekannten, in der Literatur sehr gut dokumentierten Episode evaluiert. Hierbei wird der Interkontinentaltransport insbesondere von Kohlenmonoxid untersucht, das von Waldbränden in Nordkanada emittiert wurde. Der Vergleich findet einerseits mit Stationsmessungen und zum Anderen mit Transportstudien eines Lagrangeschen Partikeldispersionsmodells statt. Als Ergänzung zu den dynamischen Ausbreitungsrechnungen können erstmals die Auswirkungen der Wald-

brandemissionen während dieser speziellen Episode auf die Ozonproduktion im Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA quantifiziert werden.

In Kapitel 4 werden Modellsimulationen vorgestellt und diskutiert, die begleitend zur Feldmesskampagne im Rahmen des TROCCINOX-Projektes durchgeführt wurden. Hier wird insbesondere die Spurengasverteilung der oberen tropischen Troposphäre untersucht. Es wurde bereits angedeutet, dass speziell die Stickoxidverteilung in dieser Region maßgeblich durch tropische Gewitter bestimmt ist. Daher wird die relaxierte Modellversion genutzt, um verschiedene Blitz-NO-Parametrisierungen zu testen und die unterschiedlichen simulierten Spurenstoffverteilungen direkt mit den Messungen zu vergleichen. Die Parametrisierung, unter deren Verwendung die Beobachtungen am besten beschrieben werden können, kann dann als zukünftiger Standard in das Klimamodellsystem übertragen werden. Neben der Untersuchung der chemisch reaktiven Spurenstoffe Ozon und der Stickoxide wird auch die ebenfalls während dieser Kampagne vermessene Kohlenmonoxidverteilung untersucht. Dadurch wird, als Weiterführung der in Kapitel 3 durchgeführten Studien, das Transportverhalten des ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystems überprüft und bewertet.

Letztlich werden in Kapitel 5 Simulationen präsentiert, die insbesondere das Transportverhalten des ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystems in der polaren Stratosphäre untersuchen. Es werden Ergebnisse mit einer im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten Modellversion mit erhöhter vertikaler Auflösung vorgestellt. Die Modellergebnisse werden hauptsächlich mit gemessenen vertikalen Spurengasprofilen von MIPAS/ENVISAT verglichen.

Abschließend werden die wichtigsten Ergebnisse zusammengefasst, und es wird mit einem Ausblick auf zukünftige Erweiterungen und Anwendungsmöglichkeiten geschlossen.

Kapitel 2

Modellbeschreibung

2.1 Das globale Zirkulationsmodell ECHAM5

Das globale Zirkulationsmodell ECHAM (Roeckner et al., 1992) ist Teil einer Modellreihe, die ursprünglich aus dem spektralen Wettervorhersagemodell des ECMWF (European Centre for Medium Range Weather Forecasts) hervorging (Simmons et al., 1989). Das ECMWF-Modell wurde in Zusammenarbeit zwischen dem Max-Planck Institut für Meteorologie in Hamburg und dem Meteorologischen Institut der Universität Hamburg zu dem Klimamodell ECHAM erweitert. Für die vorliegende Arbeit stand die neueste Modellversion ECHAM5 (Roeckner et al., 2003) zur Verfügung.

ECHAM ist ein spektrales Modell. Das bedeutet, dass die horizontalen Ableitungen exakt im Wellenzahlraum berechnet werden. Die Variablen werden dazu als Reihe von Kugelflächenfunktionen dargestellt. Die Anzahl der berücksichtigten Kugelflächenfunktionskoeffizienten bestimmt die spektrale Auflösung des Modells. ECHAM5 stellt verschiedene spektrale Auflösungen (T21, T31, T42, T63, T85, T106, T159) zur Verfügung. Nichtlineare Terme (und ein Großteil der Parametrisierungen) werden nach der Transformation in den Gitterpunktraum auf einem Gaußschen Gitter berechnet. Die Auflösung dieses Gitters ist entsprechend abhängig von der Wellenzahl. Eine Zusammenstellung für die in dieser Arbeit verwendeten Auflösungen ist in Tabelle 2.1 gegeben.

ECHAM5 basiert auf den „primitiven Gleichungen“. Der Begriff „primitive Gleichungen“ hat sich als Übersetzung des englischen „primitive equations“ durchgesetzt. Eine geeignetere Übersetzung wäre „grundlegende“ Gleichungen. Hiermit kommt zum Ausdruck, dass die Bewegungsgleichungen in ihrer ursprünglichen Form gelöst werden und nicht durch Näherungen, wie z.B. der quasi-geostrophischen Theorie, approximiert werden. Die primitiven Gleichungen unterscheiden sich von dem vollständigen Satz an Bewegungsgleichungen lediglich dadurch, dass die vertikale Komponente der Bewegungsgleichung durch die hydrostatische Approximation ersetzt wird. Weiterhin werden in den horizontalen

Tabelle 2.1: Übersicht über die in dieser Arbeit verwendeten Modellauflösungen.

spektrale Auflösung	horizontale Auflösung des Gaußgitters	Gitterweite bei 45° (km)	Zeitschritt (Minuten)
T42	2,8125° × 2,8125°	≈ 220	30
T63	1,875° × 1,875°	≈ 150	20
T106	1,125° × 1,125°	≈ 90	12

Gleichungen Terme mit sehr kleinen Skalen vernachlässigt. Die prognostischen Variablen in ECHAM5 sind Temperatur, Divergenz, Vorticity, der Logarithmus des Bodendrucks sowie Wasserdampf. Zusätzlich wird auch das Wolkenwasser (in flüssiger und fester Form) prognostiziert, ebenso der Wolkenbedeckungsgrad.

Der Zeitschritt (Δt) im Modell ist abhängig von der verwendeten horizontalen Auflösung. Aus Gründen der numerischen Stabilität kann er nicht beliebig groß gewählt werden, sondern muss das Courant–Friedrich–Levy Kriterium (CFL) ($\Delta t \leq \Delta x/c$) erfüllen. Hierbei ist c die maximale zu erwartende Phasengeschwindigkeit und Δx der Gitterpunktsabstand. Besonders bei hohen räumlichen Auflösungen wäre dazu ein sehr niedriger Zeitschritt erforderlich. Aus diesem Grund wird in ECHAM ein semi-implizites (Leap–Frog) Zeitschrittverfahren eingesetzt (Robert et al., 1972). Die sehr schnellen (Schwerewellen-) Moden werden implizit berechnet, die nichtlinearen Advektionsterme dagegen explizit. Das CFL-Kriterium muss somit nur noch für den maximalen Zonalwind erfüllt werden und nicht mehr für die wesentlich höheren Phasengeschwindigkeiten der externen Schwerewellen. Ein Zeitfilter (Asselin, 1972) unterdrückt hierbei das Anwachsen von „spuriösen“ (rein numerischen und physikalisch nicht realen) Störungen. Die Zeitschritte für die in dieser Arbeit verwendeten Auflösungen sind in Tabelle 2.1 gezeigt. Das semi-implizite Zeitschrittverfahren trägt entscheidend zur numerischen Effizienz von ECHAM bei.

In der Vertikalen wird ein hybrides σ – p Koordinatensystem verwendet ($\sigma = p/p_{Boden}$). σ –Koordinaten bieten in Bodennähe den Vorteil, dass sie der Orographie folgen und so keine Schnittpunkte/–linien mit dem Boden auftreten können. Ein Nachteil ist jedoch, dass sich etwa hohe Gebirge in σ –Koordinaten bis in die oberste Modellschicht auswirken. Außerdem liefert die Berechnung des Druckterms in σ –Koordinaten eine sehr kleine Differenz aus betragsmäßig sehr großen Termen. Das bedeutet eine schlechte numerische Konditionierung des Problems. Diese beiden Schwierigkeiten werden umgangen, indem die σ –Koordinaten mit zunehmender Höhe in reine Druckkoordinaten (p –Koordinaten) übergehen.

In der Standardversion von ECHAM5 wird die Atmosphäre in 19 vertikale Schichten aufgeteilt, von denen die oberste um 10 hPa (etwa 30 km) zentriert ist. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine vertikal höher aufgelöste Version entwickelt, die 41 Schichten verwendet. Die oberste Modellschicht ist hier um 5 hPa zentriert. Diese neue Modellversion (mit dem Zusatz L41 gekennzeichnet) wird ausführlich in Abschnitt 2.2 vorgestellt.

Mit ECHAM können passive Spurenstoffe (so genannte Tracer) transportiert bzw. prognostiziert werden. In ECHAM5 steht hierfür ein neuer Transportalgorithmus zur Verfügung (Lin und Rood, 1996). Dieser verbindet die Vorteile eines Eulerschen Massenfluss-Schemas (wie exakte Massenerhaltung) mit der numerischen Stabilität von semi-lagrangeschen Verfahren. Optional kann auch der bereits in ECHAM4 verwendete semi-lagrangesche Transportmechanismus verwendet werden.

Aufgrund der vergleichsweise groben horizontalen Auflösung eines globalen Modells können einige wichtige Prozesse nicht direkt aufgelöst werden. Diese müssen in Abhängigkeit der vom Modell aufgelösten Variablen dargestellt werden. Dieser Prozess wird Parametrisierung genannt. Parametrisiert werden in ECHAM5 die horizontale und vertikale Diffusion, Landoberflächen- sowie Oberflächenwasserprozesse, Vorgänge in der planetaren Grenzschicht, durch Orographie angeregte Schwerewellen, Konvektion bzw. Prozesse zur Wolken- und Niederschlagsbildung und die Strahlung. Im Rahmen dieser Arbeit werden zusätzlich Parametrisierungen der Blitzhäufigkeit verwendet (Price und Rind, 1992; Grewe et al., 2001). Diese werden in den Abschnitten 4.2.1 und 4.2.2 vorgestellt.

2.2 ECHAM5.L41

Die Tropopause stellt eine besonders wichtige Region in dem globalen Klimasystem dar. Die Lebensdauer von z.B. Stickoxiden oder Ozon ist hier deutlich höher als in der unteren Troposphäre. Ebenso ist das Potential zur Ozonbildung sowie der Strahlungsantrieb von Ozon in diesem Höhenbereich wesentlich größer als in niedrigeren Atmosphärenschichten (Wang und Sze, 1980; Lacis et al., 1990). Desweiteren werden eine Reihe wichtiger Spurenstoffe gerade in der Tropopausenregion emittiert, wie beispielsweise Emissionen des Luftverkehrs oder durch Blitze produzierte Stickoxide. Aus diesem Grund müssen besonders die Transporteigenschaften in diesem Höhenniveau möglichst realitätsnah simuliert werden. Es zeigte sich allerdings, dass die Standard 19-Schichtenversion hier noch zu verbessern war. Grewe und Dameris (1996) konnten etwa zeigen, dass der großräumige Stratosphären-Troposphären-Austausch bei 19 Schichten zu kräftig ist (im Modell ECHAM3). Land et al. (2002) wiesen nach, dass dieser durch Verwendung der 39 Schichten in ECHAM4.L39 deutlich realistischer simuliert werden konnte.

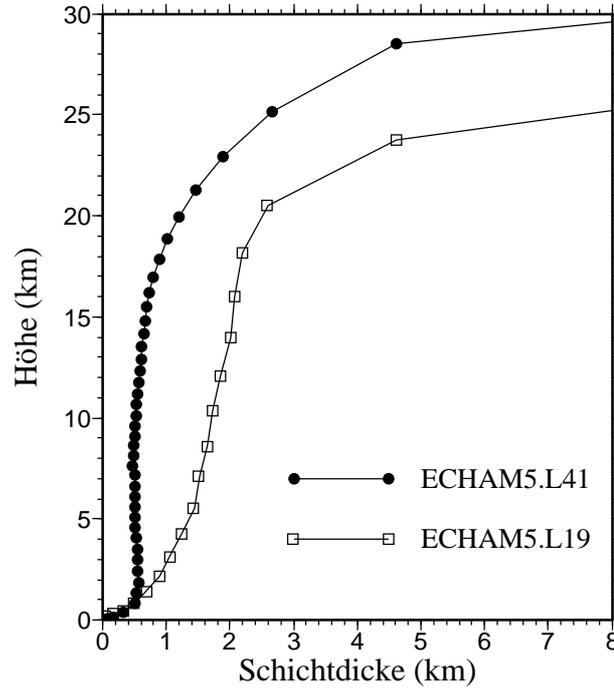


Abbildung 2.1: Schichtdicke bzw. vertikale Auflösung in Abhängigkeit von der Höhe in ECHAM5.L19 und ECHAM5.L41.

Daher wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit eine Modellversion mit einer erhöhten Vertikalaufösung entwickelt. Diese besitzt 41 vertikale Schichten, von denen die oberste um 5 hPa zentriert ist. Wie bereits in ECHAM4.L39 (Land, 1999) war es das Ziel, die Auflösung insbesondere im Tropopausenniveau zu verbessern. In diesem Höhenbereich konnte die vertikale Modellaufösung von etwa 2 km in der Standardversion auf rund 700 Meter in ECHAM5.L41 annähernd verdreifacht werden (Abbildung 2.1).

2.2.1 Vertikalkoordinaten in ECHAM

Wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, wird in ECHAM ein vertikales hybrides σ - p -Koordinatensystem verwendet. Die Koordinatenflächen werden hierbei durch den Druck auf den Schichten zwischen den Modellflächen festgelegt. Der Druck auf den Zwischenschichten ist definiert durch

$$p_{k+\frac{1}{2}} = A_{k+\frac{1}{2}} + B_{k+\frac{1}{2}} p_s \quad (2.1)$$

mit $k = 0$ bis 19 (in L19) bzw. 0 bis 41 (in L41) und dem Bodendruck p_s . Die Konstanten $A_{k+\frac{1}{2}}$ und $B_{k+\frac{1}{2}}$ stellen den Beitrag der p - bzw. der σ -Koordinate dar und definieren somit die Vertikalkoordinate.

Tabelle 2.2: Koeffizienten zur Beschreibung der vertikalen Schichtenverteilung in ECHAM5.L41 sowie der sich daraus ergebende Druck auf den Modellzwischen-schichten ($p_{k+\frac{1}{2}}$).

k	$A_{k+\frac{1}{2}}$	$B_{k+\frac{1}{2}}$	$p_{k+\frac{1}{2}}$	k	$A_{k+\frac{1}{2}}$	$B_{k+\frac{1}{2}}$	$p_{k+\frac{1}{2}}$
0	0.000000	0.0000000000	0	21	15964.490234	0.1296462864	291
1	1000.000000	0.0000000000	10	22	16133.288086	0.1506751627	314
2	2000.000000	0.0000000000	20	23	16210.686523	0.1735944003	338
3	3000.000000	0.0000000000	30	24	16196.766602	0.1974215060	362
4	4000.000000	0.0000000000	40	25	16094.069336	0.2231120467	387
5	4984.193548	0.0001559975	50	26	15872.495117	0.2539166510	416
6	5968.387097	0.0003119950	60	27	15485.536133	0.2912851274	450
7	7051.381348	0.0004847634	71	28	15006.885742	0.3275905550	482
8	8023.973145	0.0027271321	83	29	14386.607422	0.3672676086	516
9	8850.462891	0.0054284441	94	30	13590.409180	0.4116416574	553
10	9684.124023	0.0090405736	106	31	12624.479492	0.4596646428	592
11	10451.444336	0.0133141447	118	32	11451.011719	0.5126966238	634
12	11211.429688	0.0186459497	131	33	10025.228516	0.5721665025	680
13	11951.873047	0.0251555555	145	34	8374.171875	0.6368204355	729
14	12661.167969	0.0329558551	160	35	6522.785156	0.7064121962	781
15	13328.822266	0.0421559066	176	36	5125.141747	0.7816130519	837
16	13944.988281	0.0528536141	193	37	2549.969411	0.8564375573	893
17	14500.676758	0.0651319325	211	38	783.195032	0.9287469142	949
18	14965.269531	0.0783181861	229	39	0.000000	0.9729851852	986
19	15383.209961	0.0939293355	249	40	0.000000	0.9922814815	1005
20	15720.875977	0.1113192663	270	41	0.000000	1.0000000000	1013

Der Druck auf den Modellflächen ergibt sich dann aus

$$p_k = \frac{1}{2}(p_{k+\frac{1}{2}} + p_{k-\frac{1}{2}}) \quad (2.2)$$

Im Rahmen dieser Arbeit wurden somit neue Werte für $A_{k+\frac{1}{2}}$ und $B_{k+\frac{1}{2}}$ definiert, siehe Tabelle 2.2. Eine Anforderung an diese Koeffizienten ist, dass sie eine möglichst stetige und glatte Funktion mit der Höhe darstellen. Die Schichtdicke (also die vertikale Auflösung) in ECHAM5.L41 ist somit eine monoton steigende Funktion der Höhe. Die Vertikalkoordinaten-Koeffizienten in Abhängigkeit der Modellschichten sind in Abbildung 2.2 dargestellt. Die vertikale Verteilung der 41 Schichten in ECHAM5.L41 zeigt deutlich die verbesserte Auflösung in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre gegenüber der Standard 19-Schichtenversion (Abbildung 2.3).

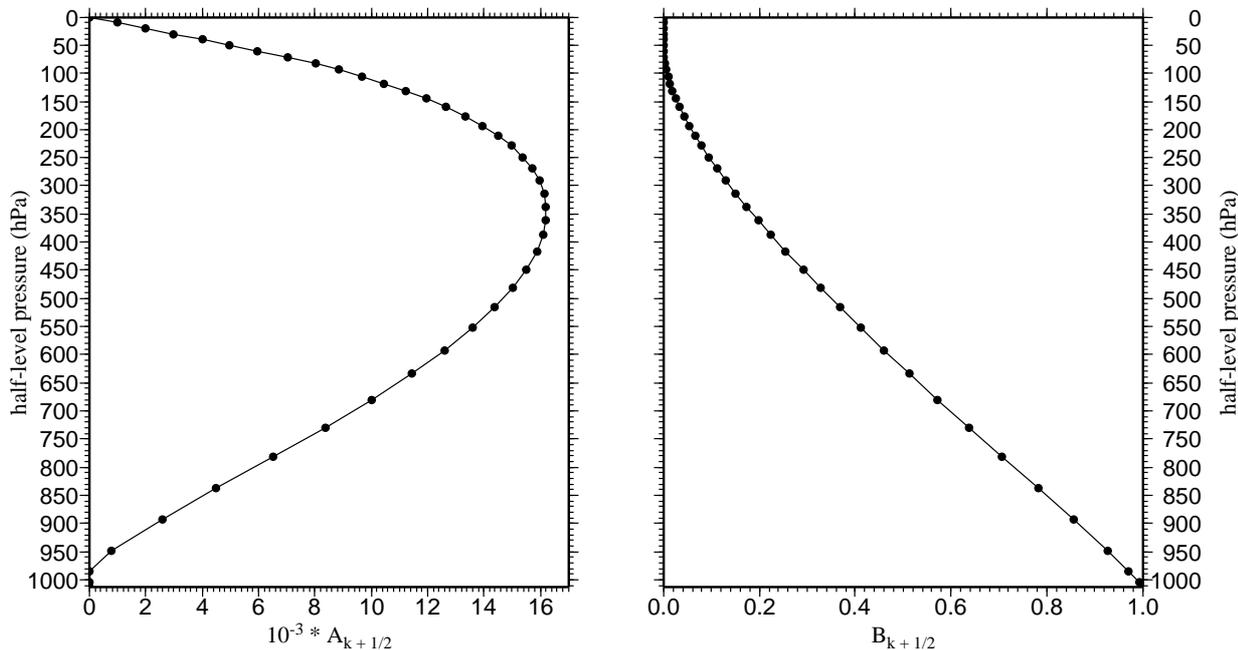


Abbildung 2.2: Vertikalkoordinaten-Koeffizienten $A_{k+\frac{1}{2}}$ (Pa) und $B_{k+\frac{1}{2}}$ für die Zwischenschichten in ECHAM5.L41 in Abhängigkeit von der Höhe.

Die Wahl der 41 neuen Höhenniveaus unterscheidet sich nur im Detail von den in ECHAM4.L39 verwendeten. Insbesondere wurde am oberen Modellrand eine leichte Modifikation durchgeführt. Da sich der „Oberrand der Atmosphäre“ in ECHAM4.L39 im Gegensatz zu ECHAM4.L19 nicht mehr bei 0 hPa (sondern bei 5 hPa) befindet, wurde beschlossen, den Oberrand in ECHAM5.L41 wieder in Übereinstimmung mit der Standard 19-Schichtenversion zu bringen. Aus diesem Grund wurde die oberste Modellschicht in ECHAM5.L41 leicht angehoben, sie ist nun um 5 hPa zentriert¹. Der „Oberrand der Atmosphäre“ in ECHAM5.L41 liegt nun bei 0 hPa. Der zu erwartende positive Nebeneffekt, durch einen höheren Modelloberrand eine realistischere Zirkulation in der Stratosphäre zu erhalten, ist jedoch nicht das Ziel der ECHAM5.L41 Version.

Wie bereits von Land (1999) festgestellt, führt eine Änderung der Vertikalauflösung zu einer signifikanten Änderung des simulierten Klimas, da besonders die mikrophysikalischen Parameter in der Wolkenparametrisierung auflösungsabhängig sind. Insbesondere führt eine Erhöhung der Anzahl an Schichten zu einer deutlichen Reduzierung der (konvektiven) Bewölkung. Dadurch kann ein größerer Anteil der vom Boden ausgesandten langwelligen Strahlung in den Weltraum entweichen. Gerade die langwellige Strahlung (*engl.* outgoing longwave radiation, OLR) ist jedoch eine Größe, welche sehr gut von Satelliteninstrumenten gemessen werden kann. Hier sei insbesondere die ERBE (Earth Radiation Budget Experiment) Satellitenklimatologie (Barkstrom, 1984) erwähnt. In der Regel werden Kli-

¹Die oberste Schicht in der L19-Version ist um 10 hPa zentriert.

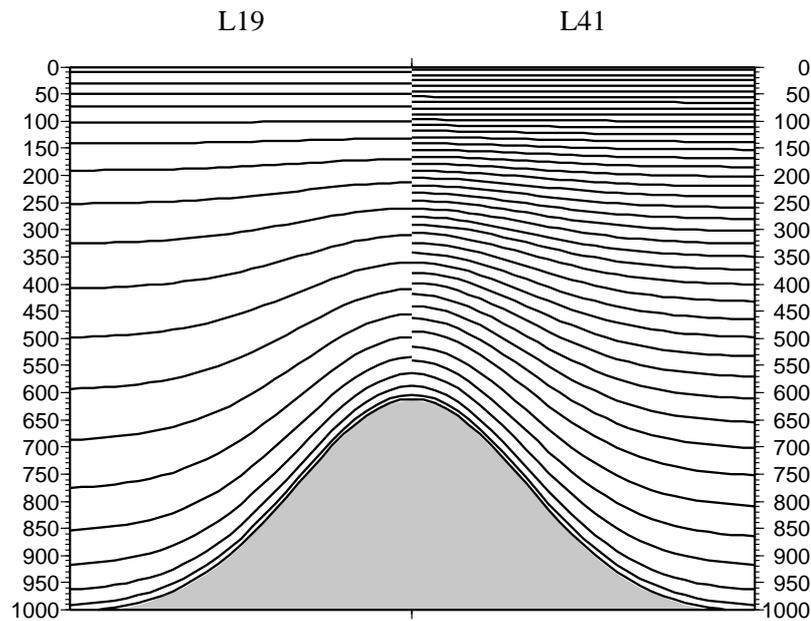


Abbildung 2.3: Vertikalverteilung der Höhenniveaus in ECHAM5.L19 (links) und ECHAM5.L41 (rechts) bei einem Bodendruck von 1013 hPa und einer idealisierten Orographie.

mamodelle derart angepasst, dass ihre simulierte langwellige Ausstrahlung am Oberrand der Atmosphäre mit den von ERBE gemessenen Werten übereinstimmt. Ein solches „Tuning“ wurde im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls für ECHAM5.L41 durchgeführt.

Die Parametrisierungen zur Wolken- und Niederschlagsbildung in ECHAM5 (Tiedtke, 1989; Lohmann und Roeckner, 1996) enthalten einige mikrophysikalische Konstanten, die beispielsweise die Effizienz der Regentropfenbildung aus Wolkenröpfchen beschreiben, deren genauer Wert aber nur sehr ungenau durch Modellierungen festgelegt ist (siehe etwa Xu et al., 2005). Eine Variation dieser (freien) Parameter stellt somit ein zulässiges Mittel zur Verbesserung der Strahlungsbilanz in ECHAM5.L41 dar.

Es wurden dazu intensive Sensitivitätsstudien durchgeführt, bei denen der Einfluss folgender mikrophysikalischer Parameter untersucht wurde²:

- Stärke der Autokonversion in stratiformen Wolken:
Eine Erhöhung der vertikalen Modellauflösung ohne eine Neuanpassung der wolkenmikrophysikalischen Parameter hat eine Erhöhung des simulierten stratiformen Bedeckungsgrades durch Wasserwolken zur Folge. Daher wurde die Effizienz der Bildung von Regentropfen aus Wolkenröpfchen um rund 20% erhöht, was sich auf die mittlere Lebensdauer der Wolken auswirkt. Der zu hohe mittlere Bedeckungsgrad kann damit wieder reduziert werden.

²Die letztendlich abgeleiteten Werte sind in Tabelle 2.3 am Ende dieses Abschnittes zusammengefasst.

Der entgegengesetzte Effekt konnte bei den Eiswolken beobachtet werden. Hier war der simulierte Bedeckungsgrad in der nicht-angepassten 41-Schichtenversion niedriger als in der Standardversion. Daher wurde die Effizienz der Bildung von Schnee aus Eisteilchen um etwa 5% reduziert, was eine Zunahme des Bedeckungsgrades aufgrund einer höheren mittleren Lebensdauer der Eiswolken zur Folge hatte.

- Sedimentationsgeschwindigkeit von Eiskristallen:
Wie gerade beschrieben, musste der Bedeckungsgrad von Eiswolken, der implizit durch deren Lebensdauer bestimmt ist, erhöht werden. Dazu muss jedoch nicht nur die oben beschriebene Autokonversion von Eiskristallen in Schnee neu angepasst werden, sondern insbesondere die Sedimentationsgeschwindigkeit der Eiskristalle. Die Fallgeschwindigkeit wurde daher um etwa 6% reduziert.
- Verdunstung von Niederschlag beim Fallen durch untersättigte Luftmassen:
Der Parameter, der die Verdunstung von Niederschlag beim Durchfallen von ungesättigten Gitterboxen bestimmt, wurde um rund 10% reduziert. Dies wurde erforderlich, damit die oben beschriebene effektivere Bildung von Regentropfen in stratiformen Wolken auch in einer tatsächlich höheren Niederschlagsmenge am Boden resultiert.
- Stärke der Autokonversion in konvektiven Wolken:
Der mit Abstand wichtigste Effekt der unangepassten 41-Schichtenversion war eine starke Verringerung der konvektiven Bewölkung (insbesondere in den Tropen). Aus diesem Grund musste die Effizienz der Niederschlagsbildung aus Wolkenröpfchen in konvektiven Wolken signifikant reduziert werden. Dies hatte eine Erhöhung des mittleren Bedeckungsgrades von konvektiven Wolken zur Folge, der nun in Übereinstimmung mit der Standardmodellversion steht.

Die sich nach der Neuanpassung der wolkenmikrophysikalischen Parameter ergebende Strahlungsbilanz im terrestrischen und solaren Spektralbereich am Oberrand der Atmosphäre in der 41-Schichtenversion steht nun in guter Übereinstimmung mit den ERBE-Messungen, sowie mit der Standardmodellversion (Abbildung 2.4).

Nach dem Anpassen der Strahlungsbilanz darf selbstverständlich nicht vergessen werden eine Konsistenzprüfung aller abgeleiteten Größen durchzuführen. So muss sichergestellt werden, dass beispielsweise nach einer Änderung der Effizienz der konvektiven Niederschlagsbildung auch der simulierte Niederschlag weiterhin in Übereinstimmung mit Beobachtungen steht. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Schwerpunkt auf eine Vergleichbarkeit zwischen ECHAM5.L41 und ECHAM5.L19 gelegt. Es wurden jedoch auch Vergleiche mit Beobachtungen durchgeführt, die hier allerdings nicht im Detail präsentiert werden sollen. Beispielsweise wurden Daten des „Global Precipitation Climatology Projects“ (GPCP) (Huffman et al., 1997) zur Modellvalidierung genutzt. Die Daten wurden vom

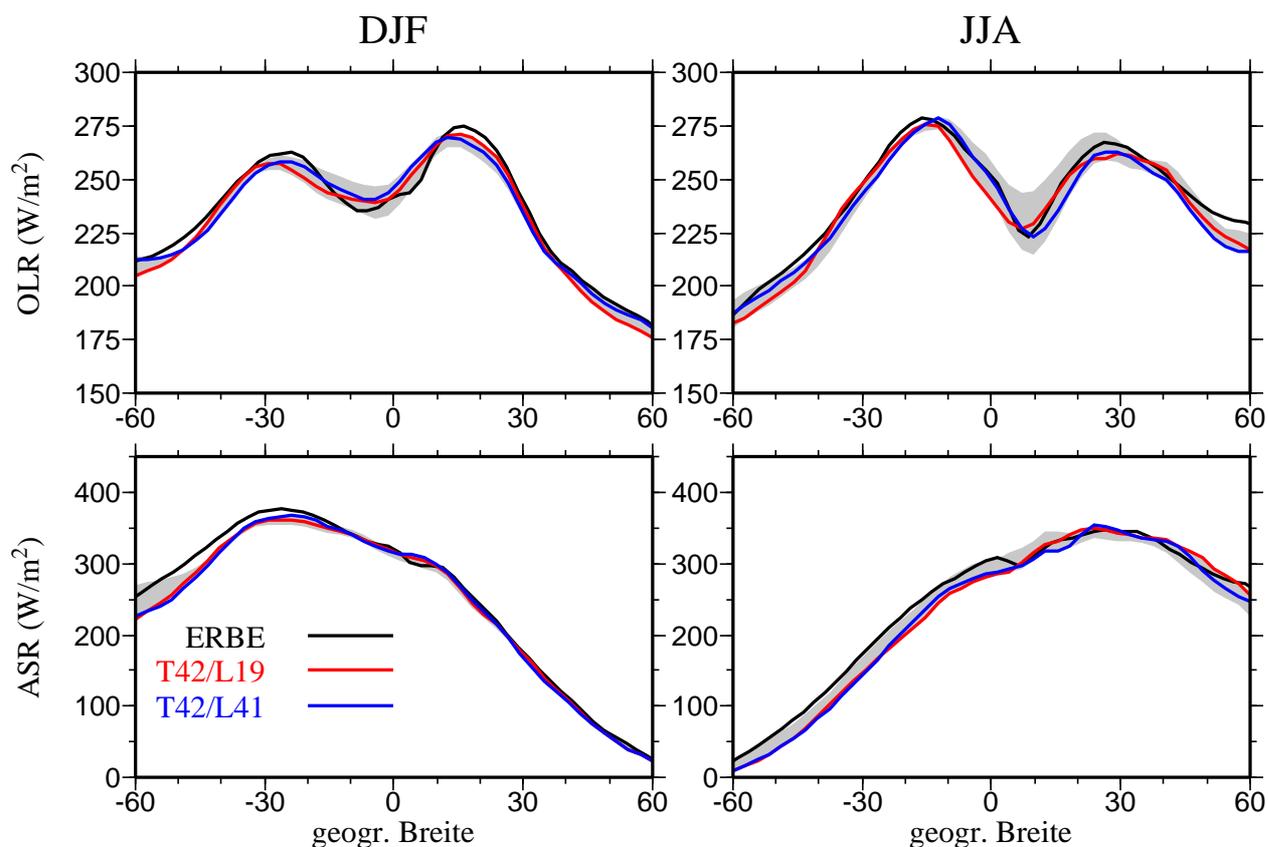


Abbildung 2.4: Strahlungsbilanz in ECHAM5 für die Modellauflösungen T42/L19 und T42/L41 im Vergleich zur ERBE Satellitenklimatologie. **Oben:** langwellige Ausstrahlung am Oberrand der Atmosphäre (*engl.* outgoing longwave radiation, OLR) für Dezember/Januar/Februar (links) und Juni/Juli/August (rechts). **Unten:** analog für die Bilanz der solaren Strahlungsflussdichte (*engl.* absorbed solar radiation, ASR). Die grau schattierte Region umfasst den Wertebereich aus den verschiedenen durchgeführten Sensitivitätsstudien.

NASA Goddard Space Flight Center bereitgestellt. Dieser Datensatz enthält globale Informationen über beobachtete Niederschlagshöhen. Der von ECHAM5.L41 simulierte Niederschlag steht in Übereinstimmung mit diesen Messungen. Lediglich über dem Indischen Ozean und dem Indonesischen Raum fallen die Modellergebnisse rund 2–3 mm/Tag höher aus als die Beobachtungen von etwa 10 mm/Tag³.

Das gesamte ausfällbare Wasser (*engl.* total precipitable water, TPW) über den Ozeanen wurde anhand von Messungen von satellitengebundenen Mikrowellenradiometern des SSM/I (Special Sensor Microwave/Imager) überprüft. Diese Daten wurden von NOAA/NESDIS, Office of Research and Applications, Hydrology Team, zur Verfügung gestellt. Die Modellergebnisse dieser eng mit der Meeresoberflächentemperatur gekoppelten Größe stehen in guter Übereinstimmung mit den Beobachtungen, auch wenn die Absolut-

³Der Gesamtfehler der Messungen in Gebieten mit derart hohen Niederschlagswerten wird jedoch mit bis zu 2 mm/Tag angegeben.

Tabelle 2.3: Im Rahmen der Arbeit abgeleitete Werte der wolkenmikrophysikalischen Parameter in der Standard- und in der neuen 41-Schichtenversion.

Parameter	L19	L41	Referenz in Roeckner et al. (2003)
γ_1	15	18	Gl. (10.45)
γ_3	95	90	Gl. (10.47)
α	3,29	3,1	Gl. (10.29)
a_9	870	800	Gl. (10.57)
c_{conv}	$4,0 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$	Tiedtke (1989)

γ_1 und γ_3 bestimmen die Regen- bzw. Schneebildung in stratiformen Wolken, α die Sedimentationsgeschwindigkeit von Eiskristallen, a_9 die Verdunstung von Niederschlag in untersättigter Luft, und c_{conv} die Niederschlagsbildung in konvektiven Wolken.

werte im Bereich der Innertropischen Konvergenzzone, speziell zwischen Südamerika und Afrika, etwas unterschätzt werden. Allerdings lässt sich auch diese Abweichung bereits in der Standardmodellversion finden. Ein in der Vorgängermodellversion ECHAM4.L39 beschriebenes Defizit, eine Zunge mit deutlich zu hohen TPW-Werten über dem Golfstrom in Richtung Europa im Nordwinter, steht nun in der ECHAM5.L41 Version in sehr guter Übereinstimmung mit den SSM/I Messungen.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Sensitivitätsstudien stellen einen sehr hohen Bedarf an Rechenzeit dar. Aus diesem Grund wurde das Tuning von ECHAM5.L41 bislang nur für eine horizontale Auflösung von T42 durchgeführt. Da die wolkenmikrophysikalischen Parameter aber auch von der horizontalen Auflösung abhängen, können die im Rahmen der vorliegenden Arbeit abgeleiteten Werte nicht ohne Weiteres auf andere Horizontalaufösungen übertragen werden. Die 41-Schichtenversion ist daher operationell nur in der T42 Auflösung verfügbar. Die Bezeichnung ECHAM5.L41 bezieht sich in dieser Arbeit somit immer auf die Version ECHAM5.T42L41.

2.3 Das NUDGE Modul

2.3.1 Die Idee hinter dem Nudging

Nudging, oder Newtonsche Relaxation, ist ein Verfahren, bei dem dynamische Modellvariablen in Richtung von beobachteten Werten relaxiert werden. Somit wird es beispiels-

weise möglich, die großräumige Strömung während ausgewählter Episoden im Modell ECHAM5(.L41) nachzusimulieren. Gerade im Hinblick auf Vergleichbarkeit mit (beispielsweise) Satellitendaten ist eine Übereinstimmung zwischen beobachteter und simulierter Meteorologie unverzichtbar. Im Rahmen dieser Arbeit soll das NUDGE-Modul somit eingesetzt werden, um Modellgrößen wie die allgemeine Zirkulation sowie Temperatur- und Feuchtefelder weitgehend in Übereinstimmung mit Beobachtungsdaten zu simulieren.

Zu diesem Zweck werden in ECHAM5/NUDGE zusätzliche Terme (die so genannten Nudging Terme) in die Modellgleichungen für Vorticity⁴, Divergenz, Temperatur und den Bodendruck eingefügt. Die mathematischen Grundlagen werden im Folgenden vorgestellt.

2.3.2 Nudging in ECHAM5(.L41)/NUDGE

Beim Relaxieren wird ein zusätzlicher, nicht physikalischer Term (der Nudgingterm), in die Modellgleichungen der prognostischen Variablen eingefügt:

$$\frac{\partial X}{\partial t} = F_m(X) + \underbrace{\mu(X_{\text{obs}} - X)}_{\text{Nudgingterm}} \quad (2.3)$$

Hierbei steht X für eine prognostische Modellvariable, die relaxiert werden soll (also Vorticity, Divergenz, Temperatur oder Bodendruck). F_m ist das Forcing im Modell, also die physikalischen und dynamischen Prozesse, die die Entwicklung der Variable X bestimmen. Der Nudging- oder Relaxationsterm $\mu(X_{\text{obs}} - X)$ enthält die Differenz zwischen dem beobachteten (X_{obs}) und dem berechneten Wert der Variable X , gewichtet mit dem entsprechenden Nudging- oder Relaxationskoeffizienten μ .

Es stellt sich zunächst die Frage, welche Modellgrößen für eine Relaxation gewählt werden sollen. Hier sind im Wesentlichen drei Möglichkeiten zu diskutieren:

- Relaxation des Windfeldes (man lasse das Massenfild sich daran anpassen)
- Relaxation des Massenfildes (man lasse das Windfeld sich daran anpassen)
- sowohl Wind- als auch Massenfild werden relaxiert

In umfangreichen Sensitivitätsstudien konnten Kuo und Guo (1989) zeigen, dass die besten Ergebnisse durch gleichzeitiges Relaxieren sowohl des Wind- als auch des Massenfildes erzielt werden. Dieser Ansatz wird daher auch in ECHAM5/NUDGE verfolgt.

⁴Im Folgenden wird weiterhin vereinfachend von „Beobachtungen“ gesprochen, obwohl Vorticity und Divergenz streng genommen nur aus dem 3-dimensionalen Windfeld abgeleitete Größen sind.

Desweiteren stellt sich die Frage, welcher Anteil des Windfeldes relaxiert werden soll:

- nur der Rotationsanteil wird relaxiert
- nur der divergente Anteil wird relaxiert
- sowohl Vorticity als auch Divergenz werden relaxiert

Der Rotationsanteil wird im Allgemeinen als der entscheidende Part angesehen. Dieser ist eng verbunden mit der geostrophischen Approximation. Die Entwicklung einer rossbywellen-typischen Strömung lässt sich mit diesem Ansatz bis zu einigen Tagen gut vorhersagen. Durch Relaxation der Vorticity kann somit insbesondere die großräumige Strömung in den Extratropen besonders gut simuliert werden. Daher wird die Vorticity in ECHAM5/NUDGE mit einem hohen Gewicht relaxiert (siehe Abschnitt 2.3.3).

Bei Verwendung des divergenten Anteils des Windfeldes ergibt sich die Schwierigkeit, dass die Divergenz aus dem 3-dimensionalen Windfeld abgeleitet ist und insbesondere die vertikale Geschwindigkeitskomponente eine nur unzureichend zu beobachtende Größe darstellt. Dennoch wird in ECHAM5/NUDGE auch die Divergenz relaxiert: Jeuken et al. (1996) konnten durch eine Reihe von Sensitivitätsexperimenten zeigen, dass eine Relaxation der Divergenz zu signifikant besseren Ergebnissen des Feuchtefeldes sowie des Niederschlags führt. Dies gilt insbesondere für den Bereich der Tropen. Da gerade konvektive Ereignisse in tropischen Regionen einen wichtigen Aspekt der vorliegenden Arbeit darstellen, wurde der divergente Windanteil für die Relaxation berücksichtigt. Das Gewicht ist jedoch niedriger als im oben diskutierten Fall der Vorticity.

Ebenfalls durch Sensitivitätsstudien von Jeuken et al. (1996) begründet, wird auch eine Relaxation der Temperatur durchgeführt. In Zusammenhang mit einer gleichzeitigen Relaxation der Divergenz konnten so insbesondere die Ergebnisse für den simulierten Niederschlag und die Verdunstung signifikant verbessert werden.

In ECHAM5/NUDGE wird auch eine Relaxation des Bodendrucks durchgeführt. Die Studien von Brill et al. (1991) legen den Schluss nahe, dass es zu einer Akkumulation von Fehlern am Boden kommen kann, falls nur Modellvariablen oberhalb des Bodens relaxiert werden.

Das Feuchtefeld wird in ECHAM5/NUDGE nicht relaxiert. Dies wäre nicht nützlich in einem Verfahren, das auf einer dynamischen Anpassung basiert, da die Feuchte eher durch diabatische Prozesse bestimmt ist.

Zur Relaxation werden im Rahmen der vorliegenden Arbeit die operationellen ECMWF-Modellanalysen in einer spektralen Auflösung von T106 verwendet. Die Anzahl der ver-

tikalen Schichten des ECMWF-Modells ist abhängig von der untersuchten Episode (vor 1999: 31 Schichten bis 10 hPa, danach: 60 Schichten bis 0,1 hPa). Die zeitliche Auflösung beträgt 6 Stunden. Die in Gleichung 2.3 angegebene Relaxation wird in ECHAM5/NUDGE zu jedem Zeitschritt durchgeführt. Die nötigen Beobachtungen bzw. Modellanalysen liegen jedoch nicht in einer derart hohen zeitlichen Auflösung vor. Sie werden daher linear auf den entsprechenden Modellzeitschritt interpoliert. Brill et al. (1991) wiesen nach, dass diese lineare Interpolation bis zu einem Zeitintervall von 6 Stunden konsistent ist. Optional besteht in ECHAM5/NUDGE die Möglichkeit, die Beobachtungsdaten mittels einer kubischen Splineinterpolation auf den Modellzeitschritt zu interpolieren. Hierdurch konnten jedoch keine signifikanten Verbesserungen erreicht werden.

2.3.3 Bedeutung der Relaxations-Koeffizienten

Aus Gleichung 2.3 kann die allgemeine Bedeutung der Relaxations-Koeffizienten abgelesen werden: ohne Dynamik und Physik würde sich ein Modellwert exponentiell asymptotisch dem entsprechenden Beobachtungswert annähern. Die für diesen Relaxationsprozess charakteristische Zeitskala wird gerade durch die Relaxations-Koeffizienten bestimmt.

Die grundsätzliche Idee der Relaxation besteht darin, die Modellvariablen in Richtung der Beobachtungen zu ziehen, ohne dass dadurch das dynamische Gleichgewicht im Modell zu stark gestört wird. Ebenso könnten durch eine zu starke Relaxation in den Beobachtungen eventuell enthaltene Ungleichgewichte künstlich verstärkt werden. Aus diesem Grund ist der Relaxationsterm in der Regel kleiner als die größten Terme der Physik und der Dynamik. Es ist jedoch offensichtlich, dass die Relaxations-Gewichte nicht zu klein gewählt werden dürfen, da sich ansonsten die Modellvariablen nicht in der gewünschten Weise den vorgegebenen Beobachtungen annähern würden.

Bei der Ableitung der Relaxations-Koeffizienten ergibt sich die Schwierigkeit, dass es keinen mathematischen Formalismus zur Bestimmung einer theoretisch optimalen Lösung gibt. Das NUDGE-Modul besitzt somit einige freie Parameter, deren Werte in umfangreichen Tuning-Simulationen ermittelt werden müssen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Reihe von Sensitivitätsexperimenten durchgeführt. Letztlich wurden für die Simulationen in der vorliegenden Arbeit nicht die ursprünglich von Jeuken et al. (1996) angegebenen Werte verwendet, sondern von Kaas et al. (1999) abgeleitete Koeffizienten (Tabelle 2.4). Damit ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen ECHAM Modellsimulationen und ECMWF Modelldaten, die ECHAM-Dynamik wird jedoch weniger stark gestört. Bereits Jeuken et al. (1996) konnten zeigen, dass sich eine zu starke Relaxation negativ auf die Modellergebnisse auswirkt: wurden die Relaxations-Koeffizienten zu hoch gewählt, führte dies zu einer signifikanten Abnahme des global gemittelten Niederschlags. Ebenso konnte eine deutliche Reduzierung des vertikalen Traceraustauschs beobachtet werden.

Tabelle 2.4: In dieser Arbeit verwendete Relaxations-Koeffizienten (μ) sowie die entsprechenden, für die Relaxation typischen Zeitskalen.

	μ (1/Sekunden)	$1/\mu$ (Stunden)
Divergenz	$0,579 \times 10^{-5}$	≈ 48
Vorticity	$0,463 \times 10^{-4}$	≈ 6
Temperatur	$0,116 \times 10^{-4}$	≈ 24
Bodendruck	$0,116 \times 10^{-4}$	≈ 24

Im Rahmen dieser Arbeit werden die Relaxations-Koeffizienten als räumlich und zeitlich konstant angesehen. Das NUDGE-Modul ist jedoch sehr flexibel. Bei Bedarf können die Koeffizienten für jede Modellschicht separat angegeben werden. Dies ermöglicht es beispielsweise, nur bestimmte Höhenbereiche zu relaxieren bzw. einzelne Regionen mit einem höheren/niedrigeren Gewicht als andere Gebiete relaxieren zu lassen. Ebenfalls ist eine zeitliche Änderung der Relaxations-Koeffizienten möglich. Somit wäre es möglich, zu jedem Zeitpunkt und für jeden Modellgitterpunkt ein optimales Relaxations-Gewicht zu verwenden. Zou et al. (1992) zeigten jedoch, dass der damit verbundene Rechenaufwand dieses Verfahren in der Praxis undurchführbar machen würde.

2.3.4 Vorprozessierung der Nudging-Daten

Beim Assimilieren von Beobachtungsdaten (oder Modellanalysen) ergibt sich folgende Schwierigkeit. In der Regel liegen diese Daten sowohl horizontal wie vertikal nicht auf dem in ECHAM5 verwendeten Gitter vor. Die zu relaxierenden Felder müssen also zunächst auf das entsprechende Modellgitter interpoliert werden.

Horizontale Interpolation: Wie in Abschnitt 2.3.2 beschrieben werden im Rahmen dieser Arbeit operationelle Modellanalysen des ECMWF in einer spektralen T106-Auflösung zur Assimilation verwendet. Hier ergibt sich der Vorteil, dass es sich sowohl bei ECHAM als auch dem ECMWF-Modell um spektrale Modelle handelt. Die horizontale Interpolation auf das ECHAM5 Gitter wird somit im Spektralraum mittels „Dreiecksabschneidung“ durchgeführt. Eine Ausnahme bildet hier lediglich die Temperatur-Interpolation für Gitterpunkte am Boden. Hier muss zwischen Land- und See-Punkten unterschieden werden. Dazu wird ein einfaches Box-Mittelungsverfahren angewendet. Handelt es sich bei dem ECHAM Modellgitterpunkt um eine Land(See)-Box, werden nur die entsprechenden Land(See)-Gitterpunkte des ECMWF-Eingabefeldes für die Mittelung verwendet.

Vertikale Interpolation: Bei der vertikalen Interpolation kommt zusätzlich zu dem Problem unterschiedlicher Vertikalkoordinaten eine Schwierigkeit bezüglich der verwendeten Orographie hinzu. Diese unterscheidet sich zwischen ECHAM und ECMWF. Während in ECHAM eine mittlere Orographie verwendet wird, nutzt das ECMWF-Modell eine Einhüllende. Dabei wird zu der mittleren Orographie deren subgitter-skalige Varianz hinzuaddiert. Bei gleicher horizontaler Auflösung kann der Unterschied zwischen ECHAM- und ECMWF-Orographie einige hundert Meter betragen. Die dadurch erzeugte Geopotentialänderung am Boden würde eine vertikal sehr ausgedehnte Störung des Massenfeldes bedeuten. Gemäß der linearen Theorie der geostrophischen Anpassung (Økland, 1970) würde sich das Massenfeld nun dem ungestörten Windfeld geostrophisch anpassen. Eine starke, nicht physikalische Anregung von Schwerewellen wäre die Folge. Der Bodendruck muss somit unbedingt auf die neue Orographie angepasst werden.

Die technischen Details dieser Bodendruckkorrektur sollen hier nicht diskutiert werden. Eine Beschreibung der notwendigen Schritte findet sich beispielsweise in Majewski (1985) oder in Vignes (1999).

2.4 Das Chemiemodul MECCA

Für die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Chemiesimulationen wurde das neue Chemiemodul MECCA (Module Efficiently Calculating the Chemistry of the Atmosphere, Sander et al., 2005) verwendet. MECCA wurde am Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz entwickelt und mittels des „Modular Earth Submodel Systems“ (MESy, Jöckel et al., 2005; ein Standard, der die „Kopplung“ verschiedenster Submodule an ein „Basismodell“ wie ECHAM beschreibt) an das globale Zirkulationsmodell ECHAM5 angekoppelt. Das Chemiemodul wurde freundlicherweise bereits in einer frühen Form für diese Arbeit zur Verfügung gestellt⁵.

MECCA enthält einen umfangreichen Satz von 116 Spurenstoffen und 295 Gasphasenreaktionen. Standardmäßig sind Reaktionen für eine (vereinfachte) O₃, CH₄, NO_x und HO_x Troposphärenchemie vorhanden. Verschiedene Modellstudien (z.B. von Kuhlmann et al., 2003) haben gezeigt, dass insbesondere Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (*engl.* non methane hydrocarbons, NMHC) einen entscheidenden Einfluss auf troposphärenchemische Prozesse haben. Beispielsweise führt die Berücksichtigung von NMHCs im Modell zu signifikant höheren Ozonwerten. Aus diesem Grund sind NMHCs sowie deren Reaktionen im Modul MECCA implementiert (von Kuhlmann et al., 2003). Desweiteren beinhaltet MECCA Reaktionsmechanismen für troposphärische Halogenchemie (Sander und Crutzen, 1996, sowie von Glasow et al., 2002).

⁵MESy Version 0.9l

Stratosphärische Chemie in MECCA basiert auf den Arbeiten von Steil et al. (1998, 2003) sowie Meilinger (2000). Gegenüber der Vorgängerversion CHEM (Steil et al., 1998) ist nun insbesondere eine zusätzliche stratosphärische Bromchemie implementiert. Elf heterogene Reaktionen sind in MECCA berücksichtigt. Ein neues Modul, das die Bildung und Sedimentation von polaren Stratosphärenwolken (PSCs) beschreibt, wurde von Buchholz (2005) entwickelt.

2.4.1 Obere Randbedingungen für das Chemiemodul

Besonders für die polare Stratosphärenchemie spielen Chlorverbindungen eine entscheidende Rolle. In den jeweiligen Wintermonaten ist ein großräumiges Absinken von Luftmassen in polaren Breiten zu beobachten. Dadurch werden Luftmassen, die hohe Mischungsverhältnisse an Chlorverbindungen aufweisen, aus der mittleren Stratosphäre nach unten transportiert. Dieser Mechanismus stellt eine wichtige Quelle für Chlorverbindungen in der unteren Stratosphäre dar. Wie jedoch in Abschnitt 2.1 beschrieben wurde, wird für die Studien im Rahmen dieser Arbeit eine Modellversion verwendet, deren oberste Modellschicht um 10 hPa (L19) bzw. 5 hPa (L41) zentriert ist. Damit die eben vorgestellte, wichtige Quelle für Chlorverbindungen dennoch berücksichtigt werden kann, muss hierfür eine feste obere Randbedingung vorgeschrieben werden. In der Vorgängerversion CHEM (Steil et al., 1998) wurde dies dadurch realisiert, dass das Mischungsverhältnis für Chlor- (und Stickstoff-) Verbindungen in der obersten Modellschicht konstant gehalten wurde⁶. Für die Modellsimulationen in der vorliegenden Arbeit wurde die obere Randbedingung nun mittels „Tracer-Nudging“ realisiert. Ähnlich dem in Abschnitt 2.3.2 beschriebenen Verfahren werden die Mischungsverhältnisse der Chlor- und Stickstoffverbindungen gegen einen vorgeschriebenen Wert relaxiert. Dieser Ansatz wird angewendet auf die „Spurenstofffamilien“ „ClX“ (= Cl + ClO + ClOH + 2·Cl₂O₂ + 2·Cl₂ + ClONO₂ + HCl) und „NOY“ (= N + NO + NO₂ + NO₃ + 2·N₂O₅ + HNO₃ + HNO₄). Es ist wichtig anzumerken, dass diese Spurenstofffamilien nur für den Transport, jedoch nicht für die chemische Integration gebildet werden. Die hier durchgeführte Zusammenfassung der unterschiedlichen chlor- und stickstoffhaltigen Verbindungen entspricht somit nicht dem oftmals in Chemiemodulen angewendeten „Familienkonzept“⁷. Das Familienkonzept ist in der gegenwärtigen MECCA-Version nicht implementiert. Die beiden Spurenstofffamilien „ClX“ und „NOY“ müssen nur deshalb gebildet werden, da die Mischungsverhältnisse der für die obere Randbedingung benötigten Chlor- und Stickstoffverbindungen gerade für diese Familien, und nicht für deren einzelnen Komponenten, verfügbar sind.

⁶Diese Werte wurden aus Simulationen eines 2D-Modells (Groß, 1996) abgeleitet.

⁷Auch dabei werden Verbindungen mit unterschiedlichen mittleren Lebensdauern zu einer Spurenstofffamilie zusammengefasst, die eine höhere Lebenszeit besitzt als die einzelnen Mitglieder. Nach dem Transport werden die längerlebigen Spurenstoffe chemisch integriert, die Konzentrationen der kurzlebigen Komponenten ergeben sich unter der Annahme eines photochemischen Gleichgewichts.

2.4.2 Initialisierung der chemischen Spurenstoffe

Zu Beginn einer Simulation müssen notwendigerweise für jeden Modellgitterpunkt Informationen über alle chemischen Spurenstoffe bereitgestellt werden. Verständlicherweise existieren zu keinem Zeitpunkt globale Informationen über Spurenstoffmessungen aller Tracer, deren Reaktionen für atmosphärenchemische Prozesse von Bedeutung sind. Somit wird deutlich, dass keine Simulation mit dem tatsächlichen chemischen Hintergrundzustand der Atmosphäre beginnen kann. Als Initialisierung wird daher immer ein klimatologischer Mittelwert verwendet, der repräsentativ für die zu simulierende Jahreszeit ist. Die Spurengase in ECHAM5/MECCA werden mit Modellergebnissen initialisiert, die aus einer Simulation des Chemie-Transportmodells MATCH (T63 Auflösung) stammen (von Kuhlmann et al., 2003). Allerdings muss bei der Auswertung berücksichtigt werden, dass die Verteilung der chemischen Spezies gerade zu Beginn der Simulation noch stark von der Initialisierung dominiert ist. Ein Ausweg ist daher, die Simulation einige Monate vor der auszuwertenden Episode zu initialisieren und zu starten. Die für die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Simulationen verwendeten Initialisierungs-Zeitpunkte werden bei den Experiment-Beschreibungen in den folgenden Kapiteln angegeben.

Kapitel 3

Transportstudien mit kanadischen Waldbrand–Spurenstoffen

In diesem Kapitel werden zunächst passive Transportstudien, d.h. ohne die Berücksichtigung von chemischen Umwandlungsprozessen, zur Evaluierung der Transporteigenschaften der ECHAM5/NUDGE Modellkonfiguration durchgeführt. Um die Verlässlichkeit dieses neuen Modellsystems zu untersuchen werden die Ergebnisse mit bereits vorhandenen und in der Literatur sehr gut dokumentierten Studien einer ausgewählten Episode verglichen. Es wurde der August 1998 gewählt. Dieser Zeitraum ist geprägt von starken borealen Waldbränden in Kanada. Dabei wurde in großen Mengen Kohlenmonoxid (CO) emittiert, welches nach interkontinentalem Transport in Europa gemessen werden konnte. Diese Episode wurde im Detail mit einem Lagrangeschen Partikel–Dispersionsmodell (FLEXPART, Stohl et al., 2005) von Forster et al. (2001) sowie von Spichtinger et al. (2001) analysiert. Mit diesen beiden Studien liegt eine vollständige Dokumentation eines troposphärischen Interkontinentaltransports von Spurenstoffen vor, die durch boreale Waldbrände emittiert wurden.

Neben diesen passiven Transportstudien wurde die genannte Episode im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstmals auch mit voller troposphärischer Chemie mit dem Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA simuliert. Hierdurch können eindeutige Aussagen über die Bedeutung der Waldbrand–Emissionen auf die Troposphärenchemie speziell über Europa gemacht werden, die in den passiven Studien von Forster et al. (2001) (im Folgenden *FO2001*) sowie von Spichtinger et al. (2001) lediglich als Hypothese aufgestellt wurden. Insbesondere können die Auswirkungen der emittierten Spurengase auf die Ozonproduktion im Modellsystem quantifiziert werden.

3.1 Hintergründe

Jedes Jahr verbrennen große Flächen borealen Waldes, diese Brände weisen eine ausgeprägte Jahr-zu-Jahr Variabilität auf (Lavoué et al., 2000). Neben Aerosolen werden hierbei große Mengen an Spurengasen wie Kohlenmonoxid oder Stickoxide emittiert. Beides sind wichtige Vorläufersubstanzen zur Bildung von troposphärischem Ozon.

Im Sommer 1995 wurden in den östlichen und südöstlichen USA erhöhte Konzentrationen von bodennahem Ozon gemessen. Dies konnte zurückgeführt werden auf Emissionen von borealen Waldbränden in Kanada (Wotawa und Trainer, 2000).

Über Washington, D.C., wurden im Juli 2002 Rauch und Spurengase aus Waldbränden in Quebec in einem Höhenbereich zwischen 2 und 3 km beobachtet. Die Wolke wurde in die planetare Grenzschicht eingemischt und bis zum Boden transportiert (Colarco et al., 2004). Dies hatte starke negative Auswirkungen auf die Luftqualität in dieser Region. Kurze Zeit nachdem LIDAR-Messungen das Einmischen der Waldbrand-Wolke in Bodennähe belegten, konnte eine signifikante Zunahme des bodennahen Ozons beobachtet werden. Dieses Ozon wurde auf photochemische Produktion, verursacht durch die Waldbrand-Spurenstoffe, zurückgeführt.

Ein bezüglich der Stärke borealer Waldbrände herausragendes Jahr war 1998. Alleine in Kanada verbrannten in diesem Jahr 47000 km² Wald, eine um mehr als das siebenfach größere Fläche als beispielsweise im Jahr 1997 (UNECE, 1999). Es wurde berichtet, dass Aerosole aus diesen Waldbränden bis in die Stratosphäre nachzuweisen waren (Fromm et al., 2000, 2005). Bereits Wotawa et al. (2001) konnten auf qualitative Weise zeigen, dass 1998 die gesamte nördliche Hemisphäre eine signifikante Erhöhung des bodennahen CO aufwies. Diese erhöhten CO Einträge bewirkten eine Störung des CO-Mischungsverhältnisses über die planetare Grenzschicht hinaus bis in die freie Troposphäre. Dieses Phänomen wurde erstmals von Yurganov et al. (2004) quantitativ für die „hohe nördliche Hemisphäre“ (30°–90°N) analysiert. In „ungestörten“ Jahren zeigen Emissionsdatensätze in diesem Bereich CO-Emissionen aus Biomassenverbrennung von rund 52 Tg/Jahr. Alleine im August 1998 jedoch wurde die Emissionsanomalie auf 28 Tg abgeschätzt, für das gesamte Jahr 1998 auf 96 Tg. Dieser Effekt wurde nahezu vollständig auf Waldbrandemissionen zurückgeführt. Damit waren die Kohlenmonoxid-Emissionen aus borealen Waldbränden im August 1998 etwa doppelt so hoch wie die entsprechenden Emissionen aus der Verbrennung fossiler Treibstoffe.

Bei der Berücksichtigung solcher Waldbrand-Emissionen in (globalen) Modellen muss jedoch beachtet werden, dass die Abschätzungen über die Gesamtmenge des emittierten CO immer noch mit großen Unsicherheiten verbunden sind. Erst in letzter Zeit (French et al., 2004) wird versucht, diese Unsicherheiten systematisch zu untersuchen und zu reduzieren. Es erweist sich als vergleichsweise einfach, Angaben über verbrannte Waldflächen abzuleiten. Boreale Waldbrände sind in der Regel weit ausgedehnt und somit leicht zu

lokalisieren. Etwa 98% der gesamten abgebrannten Fläche sind auf die großen Brände zurückzuführen. Es erweist sich jedoch als schwierig, die genaue Zusammensetzung des Brennstoffes (vorallem im Unterholz) oder die Effizienz der Verbrennung zu bestimmen. Beides hat jedoch insbesondere wichtige Auswirkungen auf die pro Fläche emittierte Menge an CO. French et al. (2004) kommen zu dem Schluss, dass gegenwärtige Abschätzungen über den Gesamtbetrag von Emissionen aus borealen Waldbränden bezüglich der Unsicherheiten immernoch zu wenig beschränkt sind.

Letztlich ist davon auszugehen, dass auch der vom Menschen bedingte Klimawandel einen Einfluss auf die zukünftige Entwicklung borealer Waldbrände hat. Ein statistisch signifikanter Zusammenhang zwischen anthropogenen Klimaänderungen und der Fläche verbrannten Waldes konnte beispielsweise von Gillet et al. (2004) gezeigt werden. Verschiedene Modellstudien prognostizieren eine Zunahme an borealen Waldbränden in Kanada, verursacht durch einen vom Menschen bedingten Klimawandel (Flannigan et al., 2004; Stocks et al., 1998; Wotton und Flannigan, 1993). Die Studie von Gillet et al. (2004) legt den Schluss nahe, dass dieser Effekt bereits beobachtet wird.

3.2 Experiment–Setup

3.2.1 Beschreibung der Waldbrand–Emissionsdatensätze

Die in diesem Kapitel verwendeten Emissionsdaten basieren auf dem Originaldatensatz, der für die Studien von *FO2001* benutzt wurde. Damit soll eine möglichst gute Vergleichbarkeit dieser Studien mit den im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Simulationen gewährleistet werden. Bei der Ableitung des Emissionsdatensatzes wurde im Wesentlichen wie folgt vorgegangen.

Im August 1998 wurden in Kanada schwere Waldbrände gemeldet. Besonders in den Nordwestlichen Territorien wurde eine weit überdurchschnittliche Waldbrandaktivität beobachtet. Alleine in der Woche vom 5. bis zum 11. August wurden über 10.000 km² borealer Wald durch Brände vernichtet. Ein derart hoher Wochenwert wurde in den gesamten 1990er Jahren nicht registriert.

Von den dadurch verursachten CO–Emissionen wird angenommen, dass sie proportional zur Fläche des abgebrannten Waldes sind. *FO2001* verwenden einen aus der Literatur entnommenen Wert von $4,5 \cdot 10^5$ kg (CO)/km².

Bei der Angabe von Emissionsregionen konnte teilweise auf bodengebundene Beobachtungen zurückgegriffen werden: speziell in den Nordwestlichen Territorien existieren detaillierte Informationen über das Auftreten von Waldbränden, sowie über deren Intensität, Dauer und die abgebrannte Fläche (Government of the Northwest Territories, 2000). Hier-

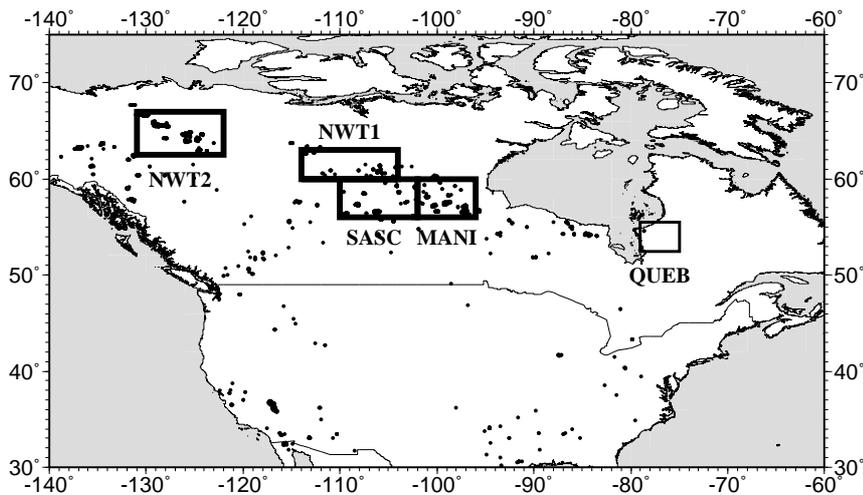


Abbildung 3.1: Die fünf Haupt-Emissionsgebiete: 2 Gebiete in den Nordwestlichen Territorien (NWT1 und NWT2), je eines in den Provinzen Saskatchewan (SASC), Manitoba (MANI) und Quebec (QUEB). Schwarze Punkte: Daten der „ATSR global fire hotspot map“ (nächtliche Beobachtung aktiver Feuer vom 1. bis 12.08.1998).

durch konnten die zwei Emissionsgebiete NWT1 und NWT2 (siehe Abbildung 3.1) festgelegt werden. Aus anderen Provinzen liegen derart detaillierte Beobachtungen nicht vor. Daher wurde versucht, weitere wichtige Emissionszentren anhand von Satellitenbeobachtungen nächtlicher Feuer aus Daten der ATSR (Along Track Scanning Radiometer) „hot spot map“ (Arino et al., 2001) zu ermitteln. Anhand dieser Beobachtungen wurden zwei weitere Emissionsgebiete definiert, je eines in den Provinzen Saskatchewan (SASC) und Manitoba (MANI). Auch Quebec (QUEB) wurde in den Studien von *FO2001* als Emissionsgebiet verwendet.

Soweit vorhanden (speziell in den Nordwestlichen Territorien) wurden Beobachtungen verwendet, um den zeitlichen Verlauf der Emissionsstärke zu ermitteln. Wo dies nicht möglich war wurde versucht, diese aus der ATSR hot spot map abzuleiten. Der zeitliche Verlauf der durch boreale Waldbrände verursachten CO-Emissionen, wie er von *FO2001* abgeleitet wurde und im Rahmen der vorliegenden Arbeit verwendet wird, weist (mit Ausnahme von QUEB) ein Maximum der Emissionen am 8. August, gefolgt von einem langsamen Rückgang, auf (Abbildung 3.2). Emissionen nach dem 12. August werden linear extrapoliert.

In den Modellsimulationen von *FO2001* sowie denen in der vorliegenden Arbeit werden diese Emissionen vertikal gleichverteilt bis zu einer Höhe von 2500 Metern über dem Boden. Dieser Höhenbereich sollte als Mittel über die verschiedenen Phasen eines Waldbrandes verstanden werden. Während des Kronenfeuers können die Spurenstoffe deutlich höhere (effektive) Emissionshöhen aufweisen. In späteren Phasen, wenn sich die Flammen eher in Bodennähe befinden, werden die Emissionen in niedrigeren Höhen auftreten.

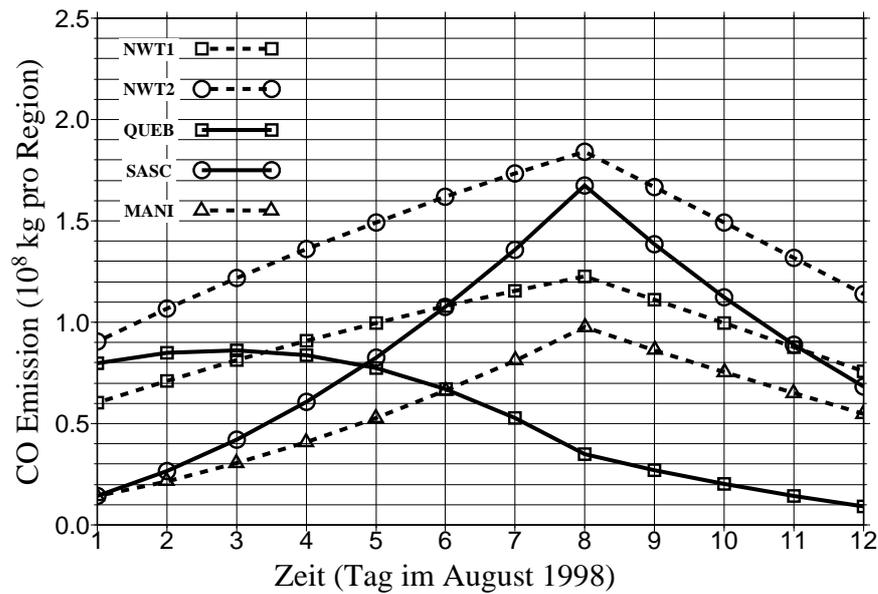


Abbildung 3.2: Zeitlicher Verlauf der CO–Emissionen (in 10^8 kg pro Region) in den fünf Haupt–Emissionsgebieten NWT1, NWT2, QUEB, SASC und MANI (siehe Abbildung 3.1).

Da CO in den Studien von *FO2001* als passiver Spurenstoff behandelt wird, muss dessen chemischer Abbau über eine Halbwertszeit parametrisiert werden. In den im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten passiven Tracertransport–Simulationen wurde eine von *FO2001* angenommene Halbwertszeit von 35 Tagen verwendet¹.

Organisches Material enthält in der Regel einen hohen Anteil an Stickstoffverbindungen. Bei der Verbrennung dieses Materials werden signifikante Mengen an Stickoxiden (hier: NO) emittiert. Spichtinger et al. (2001) haben die Studien von *FO2001* auf Simulationen mit einem passiven Stickoxid–Tracer erweitert und dazu einen Datensatz für NO–Emissionen abgeleitet. Auch diese Emissionen werden für die Simulationen in der vorliegenden Arbeit verwendet. Neben den NO–Emissionen werden hier jedoch auch die wichtigen Nicht–Methan–Kohlenwasserstoffe berücksichtigt. Die räumliche Verteilung sowie der zeitliche Verlauf all dieser Emissionen entsprechen den oben vorgestellten CO–Emissionen. Die Quellstärken dieser zusätzlichen Emissionen relativ zu CO (im Folgenden Emissionsverhältnis genannt) wurden aus einem Übersichtsartikel von Andreae und Merlet (2001) entnommen.

Das Emissionsverhältnis $EV_{(X/CO)}$ eines Spurengases X relativ zu CO ist definiert als:

$$EV_{(X/CO)} = \frac{M_{CO}}{M_X} \cdot \frac{EF_X}{EF_{CO}} \quad (3.1)$$

¹In den zusätzlich durchgeführten Simulationen mit vollständiger Troposphärenchemie wird keine künstliche Lebenszeit benötigt, da sich diese ja aus den Reaktionen mit anderen Spurenstoffen ergibt.

Tabelle 3.1: Emissionsverhältnisse verschiedener Spurengase relativ zu Kohlenmonoxid (CO). Zur Definition des Emissionsverhältnisses siehe Gleichung 3.1.

Spurengas	Emissionsverhältnis (‰)
NO	26
HCHO (Formaldehyd)	19
CH ₃ COOH (Essigsäure)	17
HCOOH (Ameisensäure)	16
CH ₃ OH (Methanol)	16
C ₂ H ₄ (Ethen)	10
C ₂ H ₆ (Ethan)	5
CH ₃ CHO (Ethanal, Acetaldehyd)	3
CH ₃ COCH ₃ (Aceton)	2
N ₂ O	1,5
C ₅ H ₈ (Isopren)	0,5

Hierbei ist M_{CO} die molare Masse des Referenzspurengases CO ($28 \cdot 10^{-3}$ kg/mol), M_X die molare Masse des Vergleichsspurenstoffes sowie $(EF_X)/(EF_{CO})$ das aus Andreae und Merlet (2001) abgeleitete Verhältnis der Emissionsfaktoren (Einheit: Gramm pro Kilogramm verbranntes trockenes Material) von Spurenstoff X zu CO. Eine Zusammenstellung der im Rahmen der vorliegenden Arbeit verwendeten zusätzlichen Waldbrandemissionen sowie deren Quellstärke ist in Tabelle 3.1 aufgeführt.

3.2.2 Übersicht über die durchgeführten Simulationen

In diesem Kapitel werden im Wesentlichen drei Experiment-Konfigurationen besprochen:

„**forest fire only**“: passive Tracertransport-Studie mit der Modellversion ECHAM5/-NUDGE. Die Waldbrandemissionen wurden als passiver „CO“-Tracer mit einer Halbwertszeit von 35 Tagen implementiert. Es werden keine zusätzlichen CO-Emissionen berücksichtigt. Da diese passive Studie kein Hintergrund-CO enthält, wird zu den Modellergebnissen ein konstanter Offset hinzuaddiert. Aus Gründen der Konsistenz wird hierzu der in *FO2001* abgeleitete Wert von 97 nmol/mol verwendet.

Dieses Experiment dient als Referenzstudie in der vorliegenden Arbeit. Durch einen direkten Vergleich der „forest fire only“ Studie mit den Ergebnissen aus *FO2001* soll das Modellsystem ECHAM5/NUDGE in Bezug auf Transport und Nudging bewertet werden.

„**total CO, passiv**“: ebenfalls eine passive Transport-Studie wie „forest fire only“, allerdings werden zusätzlich zu dem Waldbrand-Tracer auch anthropogene CO-Emissionen aus Industrie sowie dem Straßen- und Schiffsverkehr verwendet, weiterhin sind Emissionen aus Biomassenverbrennung berücksichtigt. Die CO-Emissionen basieren auf dem EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research, Version 3.2) Datensatz (Olivier und Berdowski, 2001). Da auch diese Studie kein Hintergrund-CO enthält, muss wieder ein Offset von 97 nmol/mol berücksichtigt werden. Die Halbwertszeit des emittierten CO beträgt auch hier 35 Tage.

Auch diese Simulation soll mit einer analogen FLEXPART-Studie aus *FO2001* verglichen werden. Allerdings beruhen die CO-Emissionen in der FLEXPART-Simulation nicht auf den EDGAR-Daten, sondern es wurden verschiedene Datensätze für Europa (EMEP, 2000), die Vereinigten Staaten (EPA, 1997) sowie Kanada (EPA, 1989) verwendet. Es wurde darauf verzichtet, einen neuen Emissionsdatensatz für ECHAM zu erstellen, der auf den von FLEXPART verwendeten Daten beruht. Die grundlegenden Transporteigenschaften von ECHAM/NUDGE werden ja bereits anhand der vorigen „forest fire only“ Modellsimulation validiert. Anhand der „total CO, passiv“ Studie können nun die Auswirkungen verschiedener Emissionsdatensätze untersucht werden.

„**chemical CO**“: ECHAM5/NUDGE/MECCA Simulation mit vollständiger Troposphärenchemie. Es werden die gleichen Quellen für CO verwendet wie in der Studie „total CO, passiv“. Allerdings sind diese nun keine passiven Tracer mehr, sondern stellen „echtes“ (chemisch reaktives) CO dar. Zusätzlich sind die in Tabelle 3.1 angegebenen Stickoxid- bzw. NMHC-Emissionen berücksichtigt.

Es ist eine wichtige Motivation der vorliegenden Arbeit, die Transportstudien in Abhängigkeit unterschiedlicher horizontaler Modellauflösungen zu bewerten. Es ist zu erwarten, dass sich horizontal hochaufgelöste Simulationen sehr gut für einen direkten Vergleich zwischen Modellergebnis und Beobachtung eignen. Prinzipielle Modellschwächen wie fehlerhafter Tracertransport könnten hiermit identifiziert werden. Es muss aber sichergestellt werden, dass diese Ergebnisse auch auf niedrigere Auflösungen übertragbar sind. Dies ist eine Voraussetzung, damit langjährige Klima-Simulationen durchführbar sind. Alle drei beschriebenen Simulationen werden daher zusätzlich in jeweils drei verschiedenen Modellauflösungen durchgeführt: T42/L19, T63/L19 und T106/L19. Abschließend wird eine Sensitivitätsstudie mit der T42/L41 Modellversion präsentiert. Hierbei soll untersucht werden, ob die höhere Vertikalaufklärung in dieser Transportstudie zu einer Verbesserung der Simulationsergebnisse im Vergleich zu der L19 Vertikalaufklärung führt.

3.3 Interkontinentaltransport des Waldbrand-Tracers

Der interkontinentale Transport des ECHAM Waldbrand CO-Tracers über den Atlantik bis nach Europa während der Simulationsdauer von Anfang bis Ende August 1998 ist deutlich an den hohen CO-Säulenwerten erkennbar (Abbildung 3.3). Die im Folgenden qualitativ besprochene Struktur der Tracerwolke steht in guter Übereinstimmung mit den Modellergebnissen in *FO2001*, wie der direkte Vergleich zwischen der FLEXPART- und der ECHAM5/NUDGE-Simulation für 3 ausgewählte Termine zeigt (Abbildung 3.4). Die einzelnen Filamente, die an dieser Stelle für die ECHAM Modellergebnisse diskutiert werden, wurden auch von *FO2001* anhand der TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) Aerosol Index Daten identifiziert². Wie der Name andeutet liefern diese TOMS-Daten Informationen über optische Eigenschaften von Luftmassen, die durch Aerosole beeinflusst sind. Es handelt sich nicht um CO-Beobachtungen. Speziell in Regionen weit ab der Emissionsgebiete kann ein großer Teil der Waldbrand-Aerosole durch Deposition aus diesen Luftmassen entfernt worden sein. Diese sind somit in den TOMS-Daten nicht mehr zu identifizieren. Dennoch kann die Waldbrandwolke weiterhin eine hohe Konzentration an Spurengasen wie CO enthalten. Wie von *FO2001* beschrieben kann mit Hilfe des TOMS Aerosol Index lediglich die Existenz einer Waldbrand-Tracer-Wolke belegt werden, aber keinesfalls deren Nicht-Existenz.

Bereits am 4. August ist ein feines Filament des CO-Tracers zu erkennen, das über den Atlantik transportiert wurde und Europa erreicht hat. Die Absolutwerte innerhalb dieser Luftmassen sind jedoch noch sehr gering. Speziell in Nähe der Emissionsgebiete kann die Struktur der Tracerwolke sehr gut durch Beobachtungen des TOMS Aerosol Index bestätigt werden. Zwei Tage später, am 6. August, zeigt die Modellsimulation eine ausgeprägte Waldbrand-Tracer-Wolke, die nordostwärts über Grönland zieht. Auch diese Struktur konnten *FO2001* anhand der TOMS Beobachtungen identifizieren.

Ab dem 8. August ist bereits deutlich zu erkennen, dass die Tracerwolke in der Region um Grönland unter den Einfluss eines Tiefdruckgebietes gelangt und verwirbelt wird. Dieses ist besonders am 10. August zu erkennen. Hier trifft das südliche Filament der Tracerwolke erstmals an der Westküste Irlands ein, während der nördliche Teil über Grönland bis nach Zentraleuropa transportiert wird. Speziell letzteres Filament, das sich von der Ostküste Grönlands bis nach Osteuropa erstreckt, konnte sehr klar in den TOMS Daten gefunden werden. Am 14. August sind bereits weitere Luftmassen mit hohen Werten über dem Atlantik zu erkennen, welche um den 16. August Zentraleuropa erreichen. Die Modellergebnisse deuten an, dass noch bis zum Ende des Monats der Einfluss der durch Waldbrände beeinflussten Luftmassen in Europa nachzuweisen ist.

²Diese Daten sind hier nicht zusätzlich gezeigt, siehe dazu Farbtafel 2 in *FO2001*.

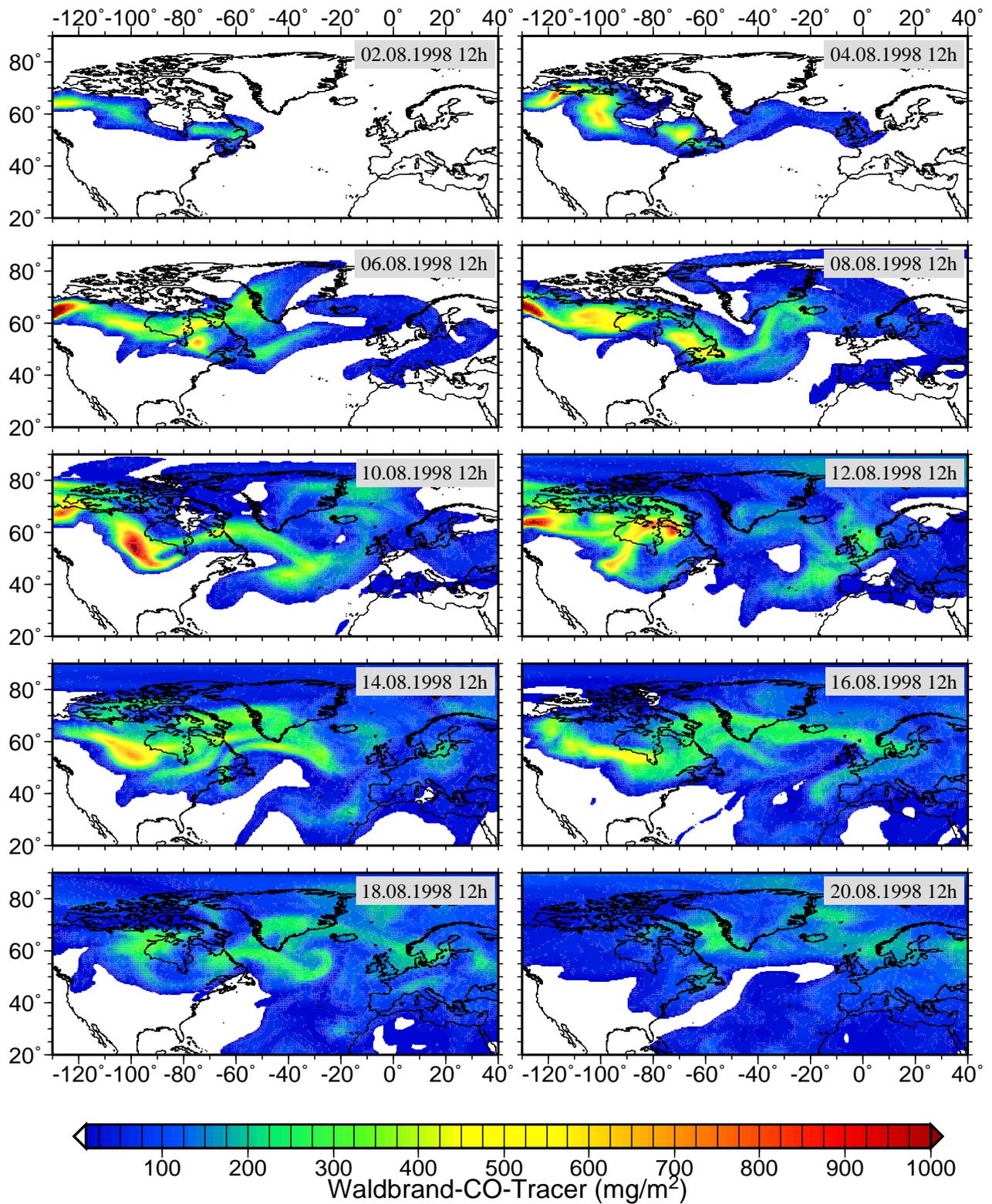


Abbildung 3.3: Vertikal integrierte Säule des ECHAM Waldbrand-CO-Tracers. Werte kleiner als 10 mg/m² sind nicht dargestellt.

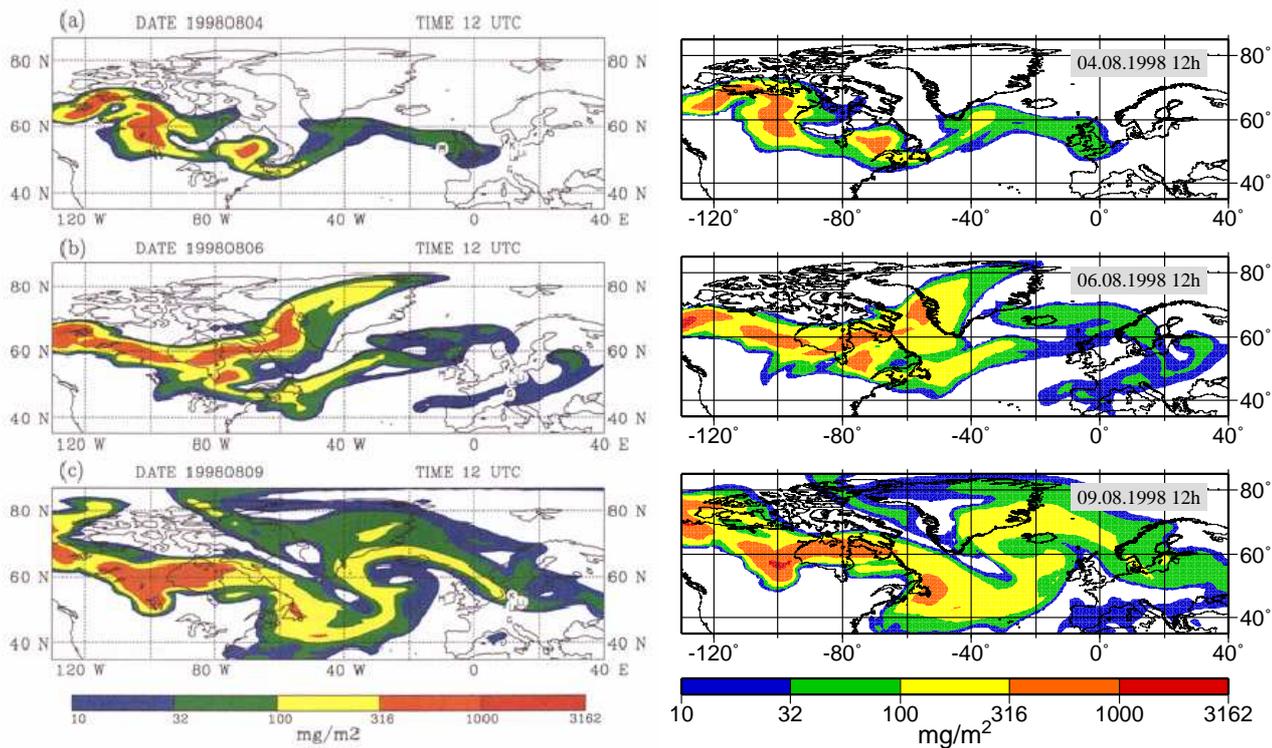


Abbildung 3.4: Vertikal integrierte Säule des simulierten Waldbrand-CO-Tracers (in mg/m^2). Zu beachten ist die logarithmische Skalierung. **Links: FLEXPART** (Farbtafel 4 aus Forster et al., 2001), **rechts: ECHAM5/NUDGE**.

3.4 Beobachtungen an der Station Mace Head

FO2001 wählten für den Vergleich ihrer Modellergebnisse mit Beobachtungen die Messstation Mace Head. Diese ist an der Westküste Irlands gelegen ($9^{\circ}54'$ W sowie $53^{\circ}20'$ N). Die Messungen an der Station sind in der Regel geprägt von Luftmassen, die vom Atlantik kommen und sehr geringe Schadstoffkonzentrationen aufweisen. Diese Reinluftmessungen werden regelmäßig von Episoden unterbrochen, die von einem interkontinentalen Transport von Schad- oder allgemein von Spurenstoffen vom amerikanischen Kontinent nach Europa charakterisiert sind.

Zunächst wird eine Zeitreihe von CFC-11 (= CFC_3 , Trichlorfluormethan, oft auch als Freon11 bezeichnet) Messungen in 25 Metern Höhe an der Station Mace Head besprochen. Diese Diskussion wurde auch von *FO2001* durchgeführt. Im Gegensatz zu Spurenstoffen wie CO, die sowohl natürliche wie auch anthropogene Quellen besitzen, wird CFC-11 ausschließlich durch menschliche Aktivitäten emittiert³. Dieses Gas eignet sich somit sehr gut als Indikator für Luftmassen, die durch anthropogene Quellen dominiert sind.

³Einsatz in Kälteaggregaten und als Treibmittel.

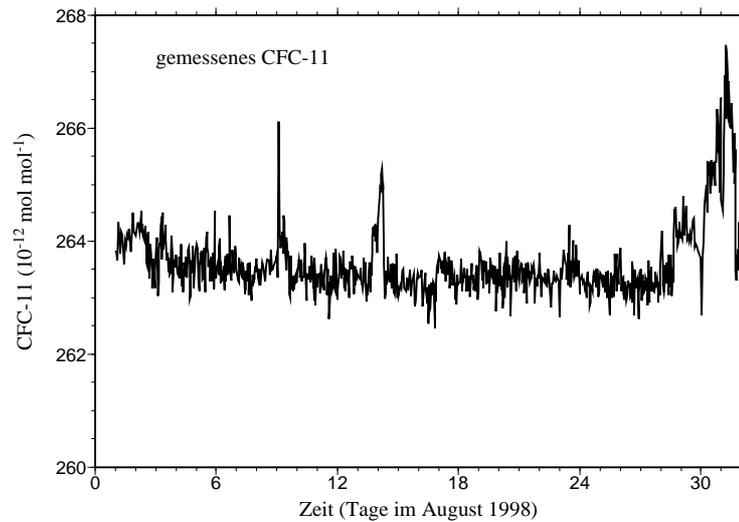


Abbildung 3.5: Messungen des CFC-11 Mischungsverhältnisses (in pmol/mol) in 25 Meter Höhe an der Station Mace Head. Daten bereitgestellt vom U.S. Department of Energy, Oak Ridge National Laboratory.

Das CFC-11-Mischungsverhältnis an der Station Mace Head weist im August 1998 im Wesentlichen einen konstanten Hintergrundwert zwischen etwa 263 und 264 pmol/mol auf (Abbildung 3.5). Die einzelnen Spitzen deuten auf Luftmassen hin, die stark durch anthropogene Quellen beeinflusst sind. Insbesondere ist dies um den 9. August zu erkennen. Eine weitere Erhöhung ist in der zweiten Hälfte des 14. August zu sehen. Gegen Ende des Monats, besonders deutlich ab dem 29. August, steigen die CFC-11 Werte stark an. Dieser Zeitraum ist somit durch Luftmassen gekennzeichnet, die aus anthropogen beeinflussten Regionen stammen.

3.4.1 Die Simulation „forest fire only“

Analog zu den Studien in *FO2001* wird nun die Ausbreitung des passiven „CO“-Waldbrand-Tracers diskutiert, wie er mit dem Modell ECHAM5/NUDGE simuliert wurde (Modellauflösung T106/L19). Die Zeitreihe der CO-Messungen zeigt eine erste stark ausgeprägte Spitze am 11. August (Abbildung 3.6 a). Diese wird gut von der Modellsimulation „forest fire only“ reproduziert, auch wenn der Absolutbetrag des Maximums ein wenig überschätzt wird. In den CFC-11 Messungen (siehe Abbildung 3.5) sind keine erhöhten Werte zu beobachten. Dies deutet darauf hin, dass diese Luftmassen nicht durch anthropogene Einflüsse gestört sind. Die erhöhten CO Werte, die die Messung zeigt, können somit mit hoher Wahrscheinlichkeit dem Waldbrand-Tracer zugeordnet werden. Dieses in *FO2001* beschriebene Ergebnis wird somit sehr gut durch die ECHAM Modellergebnisse bestätigt.

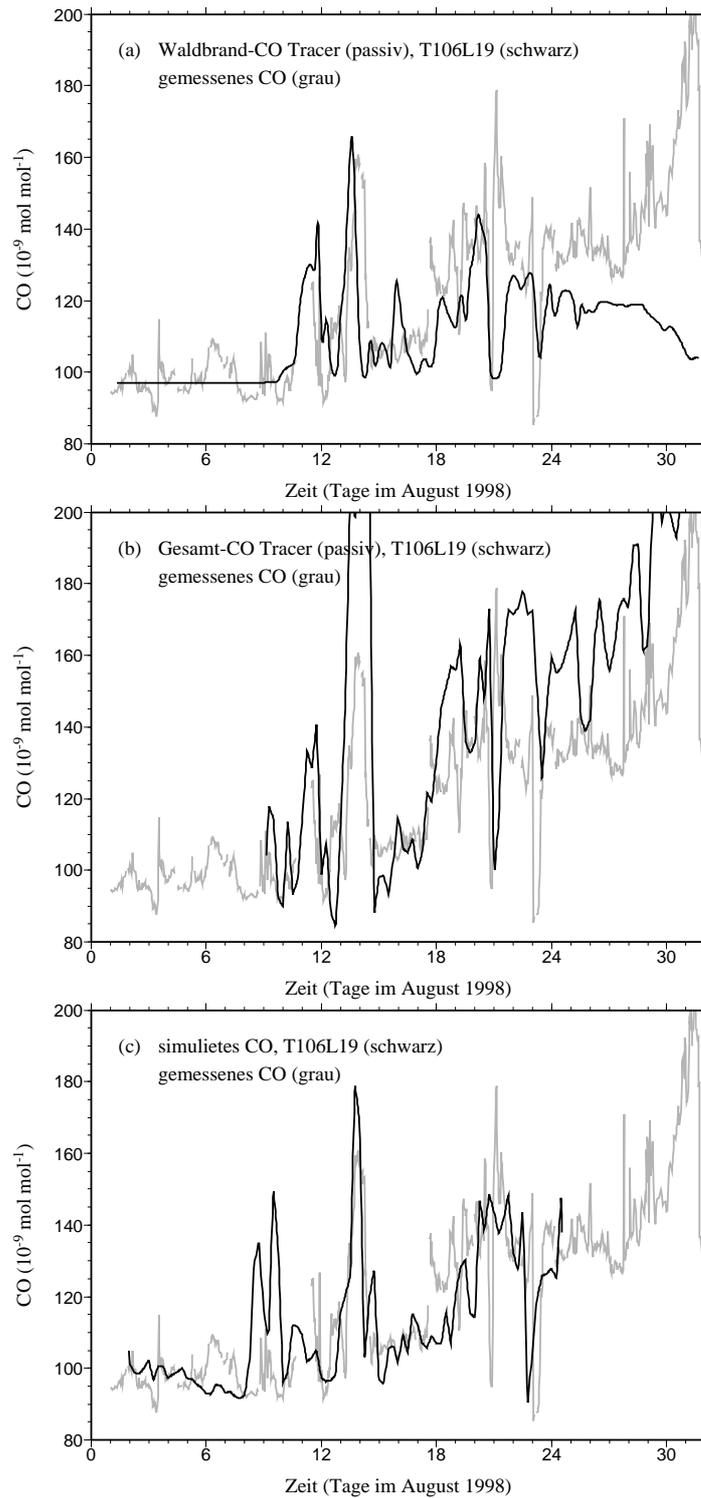


Abbildung 3.6: CO Mischungsverhältnis (in nmol/mol) in 25 Meter Höhe an der Station Mace Head. Passiver „CO“ Waldbrand-Tracer (a), passiver „CO“ Tracer Waldbrand + anthropogene Emissionen (b), MECCA CO (Waldbrand + anthropogene Emissionen) (c). Modellauflösung: T106L19.

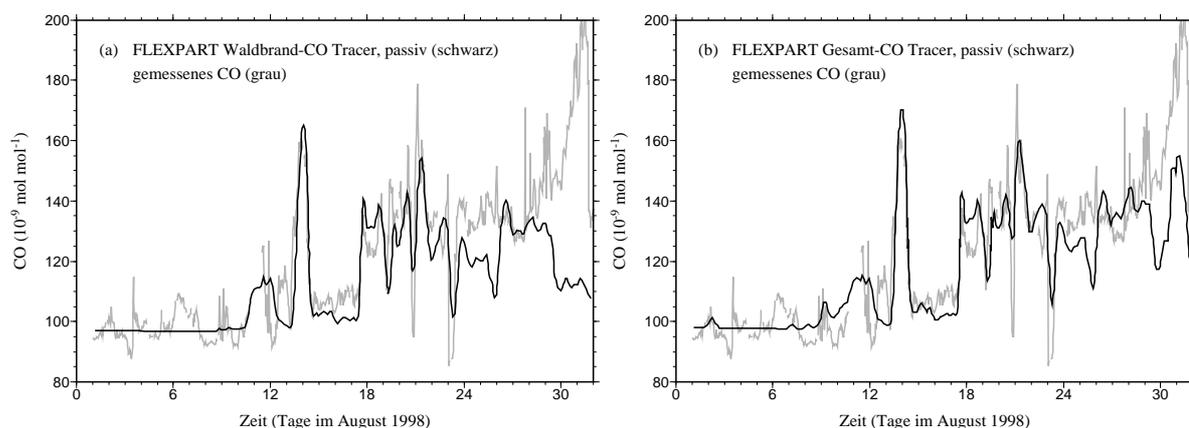


Abbildung 3.7: CO Mischungsverhältnis (in nmol/mol) in 25 Meter Höhe an der Station Mace Head. Passiver FLEXPART „CO“ Waldbrand-Tracer (a), passiver FLEXPART „CO“ Tracer Waldbrand + anthropogene Emissionen (b). (Abbildung 8b und 8c aus Forster et al., 2001.)

Eine weitere Spitze in der CO Messung findet sich am 14. August. Wie bereits oben anhand der CFC-11 Messungen beschrieben ist diese wahrscheinlich überlagert von anthropogenen Luftmassen, speziell in der zweiten Hälfte. Auch dieses Ereignis wird sehr gut vom ECHAM-Modell wiedergegeben. Der Anstieg der simulierten CO Werte ist in der ersten Hälfte des 14. August zu erkennen, konsistent mit niedrigen CFC-11 Werten zu diesem Zeitpunkt.

Ab dem 17. August ist in den CO Messungen ein kontinuierlicher Anstieg der Werte zu beobachten. Dieser wird unterbrochen von zwei kurzen Episoden, die sehr geringe CO Mischungsverhältnisse aufweisen. Sowohl das Ansteigen der CO Werte ab dem 17. August als auch die Lage der beiden Minima werden sehr gut von ECHAM5/NUDGE erfasst. Allerdings sind die räumliche und zeitliche Modellauflösung nicht ausreichend, um scharfe Gradienten aufzulösen. Besonders deutlich wird dies um den 21. August. Innerhalb weniger Stunden steigen die gemessenen CO Werte von einem Minimum um etwa 90 nmol/mol auf einen maximalen Wert von etwa 180 nmol/mol. Dies kann auch in der schon vergleichsweise hohen Modellauflösung von T106 nicht reproduziert werden.

Gerade in den letzten Tagen des Monats August nehmen die Mischungsverhältnisse des CO-Waldbrand-Tracers deutlich sichtbar ab, während die Messungen einen starken Anstieg zeigen. Auch dies steht in sehr guter Übereinstimmung mit den ebenfalls ansteigenden CFC-11 Werten die darauf hinweisen, dass die hohen CO Werte gegen Ende des Monats durch anthropogene Emissionen verursacht werden.

Ein Vergleich der ECHAM-Modellergebnisse mit den FLEXPART-Studien zeigt allgemein eine gute Übereinstimmung zwischen diesen beiden Modellexperimenten. Auch die analoge in *FO2001* durchgeführte passive Modellsimulation (Abbildung 3.7 a) zeigt ein deutliches Signal um den 11. August. Der Absolutbetrag dieses, von Waldbrand-CO verursachten (lokalen) Maximums, fällt etwas niedriger aus als in der Messung und ist somit

auch etwas geringer als in der ECHAM-Simulation. Das stark ausgeprägte Maximum um den 14. August wird sowohl zeitlich als auch betragsmäßig sehr gut von der FLEXPART-Simulation wiedergegeben. Während die maximalen Werte in dem ECHAM-Modelllauf geringfügig früher auftreten, stimmt ihr Absolutwert sehr gut mit dem FLEXPART-Ergebnis überein. Im weiteren Verlauf zeigt sich, dass der starke Anstieg der CO-Werte ab dem 17. August vom FLEXPART-Modell besser reproduziert werden kann als von ECHAM/NUDGE. Der sehr starke Gradient um den 21. August kann allerdings auch in der FLEXPART-Simulation nicht vollständig erfasst werden. Die simulierten Minimalwerte fallen deutlich höher aus als in der Messung, hier weisen die ECHAM-Ergebnisse betragsmäßig eine bessere Übereinstimmung mit der Messung auf. Das FLEXPART-Modell ist jedoch in der Lage, das direkt folgende Maximum zu erfassen, wenn auch die simulierten Werte niedriger ausfallen als die Messwerte. Ein folgendes Minimum am 23. August kann von beiden Modellstudien reproduziert werden. Gegen Ende des Monats weist die FLEXPART-Simulation einen etwas höheren CO-Hintergrund aus Waldbränden auf, um den 29. des Monats ist ein starker Abfall zu erkennen. Die ECHAM-Simulation zeigt hingegen etwas niedrigere Werte, die eher kontinuierlich abfallen.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass der erstmals in *FO2001* beschriebene eindeutige Zusammenhang zwischen CO-Messungen in Europa (hier Mace Head) und Spurenstoffen aus borealen Waldbränden in Kanada ebenfalls mit dem Modellsystem ECHAM5/NUDGE nachgewiesen konnte. Die folgende Simulation „total CO, passiv“ soll jetzt zeigen, ob darüber hinaus auch die sehr wichtigen anthropogenen Quellen richtig erfasst werden.

3.4.2 Die Simulation „total CO, passiv“

Auch diese ECHAM5/NUDGE Modellstudie, die sowohl Waldbrand- als auch anthropogene CO-Emissionen enthält, beschreibt die Ausbreitung eines passiven Tracers. Die Simulation enthält somit kein Hintergrund-CO. Da die ersten Moleküle des emittierten Tracers die Messstation Mace Head erst nach einigen Tagen erreichen, beginnt die Modell-Zeitreihe ebenfalls erst nach einer gewissen Zeit (Abbildung 3.6 b).

Sehr schön zu erkennen ist eine erste Spitze in den Modellergebnissen um den 9. August, die durch die Messung bestätigt wird. Ein Vergleich mit der vorigen Simulation „forest fire only“ (Abbildung 3.6 a) beweist, dass es sich hierbei nicht um den Waldbrand-Tracer handelt. Vielmehr ist diese Luftmasse von anthropogenen Quellen beeinflusst. Dies wird sehr deutlich durch die erhöhten CFC-11 Messungen zu diesem Zeitpunkt belegt.

Die folgende Spitze um den 11. August wurde bereits oben als Waldbrand-Tracer identifiziert. Sie ist folglich in dieser Simulation nahezu unverändert. An dieser Stelle sei angemerkt, dass die hier diskutierte Simulation eine dreifach höhere zeitliche Auflösung

besitzt als das Experiment „forest fire only“. Das hat insbesondere zur Folge, dass das auf den 11. August folgende Minimum niedriger ausfällt als in der vorherigen Studie. Durch die hohe Zeitaufösung wurde hier zufälligerweise der Zeitpunkt dieses absoluten Minimums genau getroffen.

Wie bereits bei der Diskussion der CFC-11 Messung angedeutet, enthält die in der CO Messung stark ausgeprägte Spitze um den 14. August ein deutliches anthropogenes Signal. Auch dies ist eindeutig in den Modellergebnissen zu erkennen. Allerdings führt der zusätzliche anthropogene Tracer dazu, dass die bereits vorhandene Spitze durch den Waldbrand-Tracer deutlich stärker ausfällt als beobachtet. Der Zeitpunkt des Maximums stimmt jedoch sehr gut zwischen Messung und Simulation überein.

Die Modellergebnisse zeigen ein Maximum der CO-Werte um den 22. August, das offensichtlich durch anthropogene Quellen verursacht wurde. Allerdings ist dies nicht durch CFC-11 Messung belegt. Es ist möglich, dass diese Spitze dem im vorigen Abschnitt diskutierten Maximum am 21. August zuzuordnen ist.

Gegen Ende des Monats ist zu erkennen, dass die starke Zunahme des gemessenen CO Mischungsverhältnisses nur durch die Berücksichtigung anthropogener Emissionen erklärt werden kann. Auch dieses, von *FO2001* beschriebene Ergebnis ist durch die CFC-11 Messungen bestätigt und kann sehr gut vom Modellsystem ECHAM5/NUDGE reproduziert werden.

Auch diese ECHAM-Ergebnisse können mit der entsprechenden FLEXPART-Simulation, die ebenfalls Emissionen aus Waldbränden und anthropogenen Quellen enthält, verglichen werden (Abbildung 3.7 b). Dabei fällt zunächst auf, dass das Maximum um den 14. August praktisch kein Signal aus anthropogenen Quellen enthält. Der Absolutbetrag ist gegenüber der Simulation, die ausschließlich Waldbrandemissionen enthält, nur um wenige nmol/mol erhöht. Dies steht jedoch nicht in Übereinstimmung mit den deutlich erhöhten CFC-11-Messungen zu diesem Zeitpunkt, siehe Abbildung 3.5. In der ECHAM-Simulation ist zu diesem Termin ein deutlich höherer anthropogener Beitrag enthalten, dies erklärt die signifikanten Unterschiede der beiden Modellstudien an diesem Tag. Speziell in der zweiten Monatshälfte fällt auf, dass der Absolutbetrag des anthropogenen Tracers in der ECHAM-Simulation systematisch höher ausfällt als in dem FLEXPART-Lauf. Die Struktur der Messkurve, insbesondere die Lage der beiden Minima am 21. und 23. August, wird jedoch von beiden Modellen gut reproduziert. Lediglich an den letzten Tagen zeigen sich deutlichere Abweichungen. Während die ECHAM-Ergebnisse aufgrund des starken anthropogenen Signals zu hohe Werte aufweisen, fallen die FLEXPART-Werte signifikant zu niedrig aus.

Vergleichend lässt sich sagen, dass die kombinierte ECHAM-Simulation mit sowohl einem Waldbrand- als auch anthropogenem passiven CO-Tracer ebenso wie die FLEXPART-Simulation gut in der Lage ist, die Struktur der beobachteten Mace Head CO-Zeitreihe zu erklären. Allerdings fällt, wie bereits angesprochen, in der ECHAM-Simulation (Ab-

bildung 3.6 b) ein deutlicher Offset in den Modellergebnissen auf. Eine einfache mögliche Erklärung hierfür wäre, dass die verwendeten anthropogenen CO-Emissionen zu hoch gewählt sind. Weiterhin ist denkbar, dass die gewählte mittlere Lebensdauer des passiven Tracers ungeeignet gewählt ist, bzw. dass die Annahme eines chemisch nicht aktiven Spurenstoffes hier nicht getroffen werden dürfte. Ein naheliegender Grund ist der bewusst zu den Modellergebnissen hinzuaddierte Offset von 97 nmol/mol, der das Hintergrund-CO beschreiben soll, siehe Erläuterungen in Abschnitt 3.2.2. Da das im Rahmen der vorliegenden Arbeit implementierte Modellsystem insbesondere für chemische Studien verwendet werden soll, wird die Diskussion über mögliche Gründe dieses Offsets hier nicht weitergeführt. Vielmehr wird eine Simulation mit vollständiger Troposphärenchemie („chemical CO“) durchgeführt, bei der keine Parametrisierung der Lebenszeit nötig ist. Ebenso muss kein künstlicher CO-Hintergrund zu den Ergebnissen dazuaddiert werden. Sollte auch diese Modellsimulation systematische Abweichungen zu den Beobachtungen zeigen, muss die hier skizzierte Diskussion wieder aufgenommen werden.

3.4.3 Die Simulation „chemical CO“

In Abschnitt 2.4.2 wurde beschrieben, wie die chemischen Spurenstoffe der hier durchgeführten ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation initialisiert werden. Es wurde angedeutet, dass eine Initialisierung einige Monate vor der auszuwertenden Episode wünschenswert ist, damit die Modellergebnisse nicht mehr zu stark von den Anfangsbedingungen bestimmt sind. Gerade die in diesem Abschnitt beschriebene hochaufgelöste (T106/L19) Simulation mit vollständiger Troposphärenchemie benötigt jedoch so viel Rechenzeit, dass ein früherer Simulationsbeginn nicht durchzuführen war⁴. Alle Experimente in diesem Kapitel wurden daher am 01.08.1998, 00UTC, initialisiert.

Die beschriebene Unsicherheit bei der Initialisierung ist beispielsweise an der ersten CO-Spitze um den 9. August zu erkennen, die in der Simulation eher zwei getrennte Maxima aufweist (Abbildung 3.6 c). Ähnliches gilt für die erhöhten CO-Werte um den 11. August, die Modellergebnisse zeigen diese Erhöhung ein wenig früher.

Eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der Simulation und den Messungen zeigt sich um den 14. August. Der Zeitpunkt des Maximums wird exakt vom Modell reproduziert. Auch die simulierten Absolutwerte des Maximums liegen nur wenig über den beobachteten CO-Werten. Dies ist ein wichtiges Ergebnis, zeigten doch die Ergebnisse der passiven Transportstudien deutlich zu hohe Absolutwerte.

Auch der kontinuierliche Anstieg des CO-Mischungsverhältnisses ab dem 17. August wird sehr gut vom Modell simuliert. Eine überhöhte Spitze, die um den 19. August in dem passiven Simulationslauf (Abbildung 3.6 b) erkennbar war, steht nun in deutlich besserer Übereinstimmung mit den Beobachtungen.

⁴Insbesondere sollen aus Konsistenzgründen alle in dieser Arbeit durchgeführten Modellsimulationen zum gleichen Zeitpunkt initialisiert werden.

Es fällt allerdings auf, dass das Minimum vom 21. August in den Modellergebnissen fehlt. Dies konnte als Effekt der CO-Hintergrundverteilung identifiziert werden. In der hier diskutierten „chemical CO“ Simulation weist die Modellgitterbox, die für die minimalen Kohlenmonoxidwerte verantwortlich wäre, einen etwas höheren CO-Hintergrund auf, der immernoch von der Anfangsverteilung geprägt ist. Dies zeigt erneut, welche wichtige Rolle die Initialisierung der Hintergrundverteilung darstellt.

Ein sehr gutes Beispiel, bei dem auch der CO-Hintergrund sehr realitätsnah erfasst wird, ist um den 23. August zu erkennen. Auch hier zeigt die Messung minimale CO-Werte. Dieses Minimum ist auch in den Simulationsergebnissen eindeutig zu erkennen, lediglich der Zeitpunkt ist um einige Stunden vorverlagert. *FO2001* zeigten, dass es sich hierbei um eine kurze Episode handelt, die durch Advektion tropischer Luftmassen geprägt ist. Erwartungsgemäß weisen diese tropischen Luftmassen auch in ECHAM5/NUDGE/MECCA deutlich niedrigere CO-Mischungsverhältnisse auf als Luftmassen, die für mittlere Breiten charakteristisch sind. Somit kann während dieser Episode das Minimum in den CO-Werten realistisch simuliert werden.

Aufgrund des hohen Rechenbedarfs dieser hochaufgelösten Studie konnte die Simulation nicht bis zum Ende des Modellmonats durchgeführt werden. Allerdings wurden Experimente mit niedrigerer Auflösung durchgeführt (diese werden im Folgenden vorgestellt) die eindeutig zeigen, dass der starke Anstieg des CO-Mischungsverhältnisses gegen Ende des Monats sowohl von der Struktur als auch im Betrag sehr gut mit dem neuen Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA reproduziert werden kann, siehe nächster Abschnitt.

Bereits hier lässt sich feststellen, dass ECHAM5/NUDGE/MECCA sehr gut in der Lage ist, sowohl die Struktur als auch die Absolutwerte des CO-Mischungsverhältnisses dieser klassischen Waldbrand-Episode zu simulieren.

3.4.4 Simulationen mit reduzierter Modellauflösung

Gerade bei der Durchführung der im vorigen Abschnitt vorgestellten ECHAM5/NUDGE/MECCA-Studie „chemical CO“ hat sich gezeigt, dass hochaufgelöste (T106) Simulationen mit Troposphärenchemie mit den heute zur Verfügung stehenden Rechnerkapazitäten noch nicht praktikabel sind. Zur Modellvalidierung muss daher die Modellauflösung reduziert werden. Im Folgenden wird untersucht, wie stark sich der Verlust an Auflösung auf den Vergleich zwischen Messung und Modellergebnis auswirkt. Es zeigt sich, dass die über die gesamte Episode gemittelten CO-Mischungsverhältnisse nur eine geringe Sensitivität von wenigen Prozent bezüglich einer verringerten horizontalen Modellauflösung aufweisen (Tabelle 3.2). Zusätzlich wird die Korrelation zwischen Modellergebnis und Messung angegeben. Hier fällt zunächst der vergleichsweise niedrige Absolutwert der jeweiligen Korrelationskoeffizienten auf (vgl. Tabelle 3.2). Es muss jedoch immer die vergleichsweise grobe Horizontalauflösung der globalen Modelldaten bedacht werden.

Tabelle 3.2: Verhältnis der modellierten (\bar{y}) und gemessenen (\bar{x}) mittleren CO-Mischungsverhältnisse, sowie dem Korrelationskoeffizienten zwischen Messung und Modellergebnis in Abhängigkeit der horizontalen Modellauflösung. „Chemical CO“ Simulationen.

Horizontale Auflösung	Verhältnis \bar{y}/\bar{x}	Korrelationskoeffizient
T106/L19	0,99 [§]	0,66 [§]
T63/L19	1,07	0,67
T42/L19	1,10	0,63

[§] Nur bis zum 25. August (Messung und Modellergebnis).

Die Simulation „total CO, passiv“ in der Auflösung T63/L19: Die erste deutlich Spitze in den Modellergebnissen (Abbildung 3.8 a) tritt zeitlich etwas früher auf als in der höher aufgelösten Simulation. Auch der Absolutbetrag des Maximums fällt etwas höher aus. Das hierauf folgende Minimum wird allerdings sehr gut reproduziert, wenn auch wie in den vorherigen Studien einige Stunden später als beobachtet. Auch bei der diskutierten Spitze um den 14. August fällt praktisch kein Unterschied zu der T106-Simulation auf. Der Anstieg des CO-Mischungsverhältnisses ab dem 17. August wird ebenfalls bereits in der T63-Auflösung sehr gut erfasst. Bei einigen Strukturen erscheint die Übereinstimmung mit der Beobachtung sogar besser als bei den höher aufgelösten Modellergebnissen, beispielsweise zeigt sich in der hier diskutierten Simulation keine zu hohe CO-Spitze um den 19. August. Die beiden Minima am 21. und 23. August werden ebenfalls sehr gut reproduziert, wiederum zeigen sich kaum Unterschiede zur T106-Simulation. Auch der Anstieg der CO-Werte gegen Ende des Monats zeigt keine signifikant höheren Abweichungen von der Beobachtung.

Die Simulation „chemical CO“ in der Auflösung T63/L19: Die Reduzierung der Modellauflösung hat keine signifikante Verschlechterung der Korrelation zwischen modellierten und gemessenen CO-Mischungsverhältnissen zur Folge (Tabelle 3.2). Die Modellergebnisse dieser ECHAM5/NUDGE/MECCA-Simulation weisen deutlich zwei Maxima um den 9. und 11. August auf (Abbildung 3.8 b). Allerdings reicht hier die T63-Auflösung nicht aus, um die dazwischen liegende Episode mit niedrigeren CO-Werten zu erfassen. Die Spitze um den 14. August ist in Anbetracht der reduzierten Auflösung sehr gut simuliert. Es ist sogar die Doppelstruktur der Spitze (Signale sowohl von anthropogenen wie Waldbrand-Quellen) zu erkennen. Die Absolutwerte des Maximums fallen nur geringfügig höher aus als in der T106-Studie. Auch der simulierte Anstieg der CO-Werte ab dem 17. August zeigt keinen starken Informationsverlust dieser niedriger aufgelösten Modellstudie. Die beiden eingebetteten Minima am 21. und 23. August stehen hier sogar

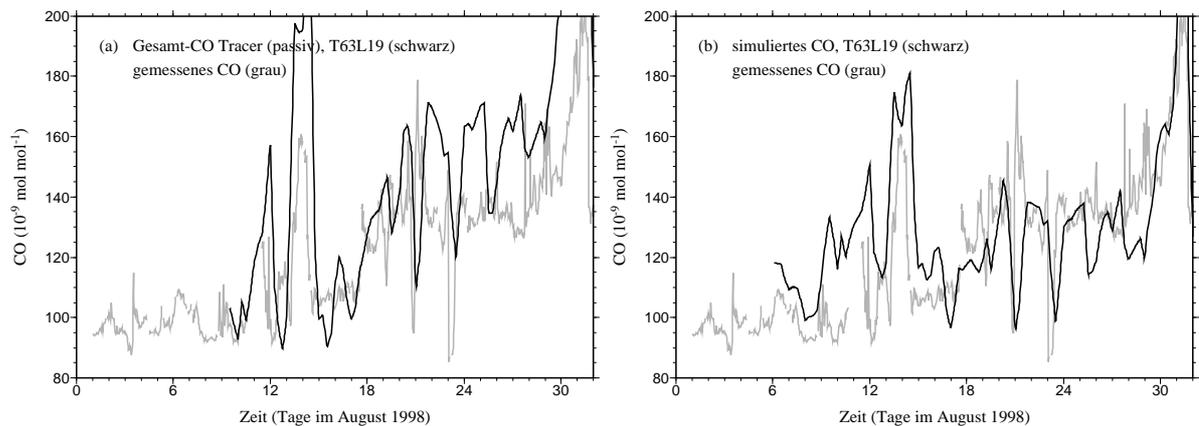


Abbildung 3.8: CO Mischungsverhältnis (in nmol/mol) in 25 Meter Höhe an der Station Mace Head. Passiver „CO“ Tracer Waldbrand + anthropogene Emissionen (a), MECCA CO (Waldbrand + anthropogene Emissionen) (b). Modellauflösung: T63L19.

in besserer Übereinstimmung mit der Messung. Bis zum Monatsende wird das simulierte CO-Mischungsverhältnis etwas unterschätzt. Der starke Anstieg um den 30. August kann allerdings sehr gut reproduziert werden, insbesondere auch deutlich realistischer als in allen bisher vorgestellten passiven Modellläufen.

ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulationen in der T63-Auflösung erweisen sich hier als geeignet für die Validierung des im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Modellsystems mit Beobachtungen. Der geringfügige, unvermeidliche Verlust an Informationen durch Reduzierung der Modellauflösung wird durch die deutlich reduzierte Rechenzeit kompensiert.

Die Simulation „total CO, passiv“ in der Auflösung T42/L19: Die Struktur der simulierten CO-Werte soll hier nicht noch einmal im Detail diskutiert werden. Prinzipiell lässt sich erkennen, dass in Anbetracht der nun deutlich reduzierten horizontalen Modellauflösung immernoch eine vergleichsweise gute Übereinstimmung zwischen Modellergebnis und Messung erzielt wird (Abbildung 3.9 a). Die niedrigere Horizontalauflösung führt dazu, dass steile Spitzen deutlich geglättet werden. Dies führt dazu, dass einige überhöhte Werte in den vorherigen Simulationen nun besser in Übereinstimmung mit der CO-Messung stehen. Auf der anderen Seite treten hierdurch jedoch die zuvor sehr gut simulierten Minima nicht mehr so deutlich in Erscheinung.

Die Simulation „chemical CO“ in der Auflösung T42/L19: Auch diese ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation (Abbildung 3.9 b) soll hier nicht mehr detailliert vorgestellt werden. Es fällt jedoch auf, dass die Modellergebnisse nur eine geringfügig schlechtere Korrelation mit der Messung aufweisen als die horizontal höher aufgelösten Simulationen (vgl. Tabelle 3.2). Prinzipiell lässt sich sagen dass kleine, eng aufeinander folgende Extremwerte, beispielsweise die Maxima am 9. und 11. August, weniger gut ge-

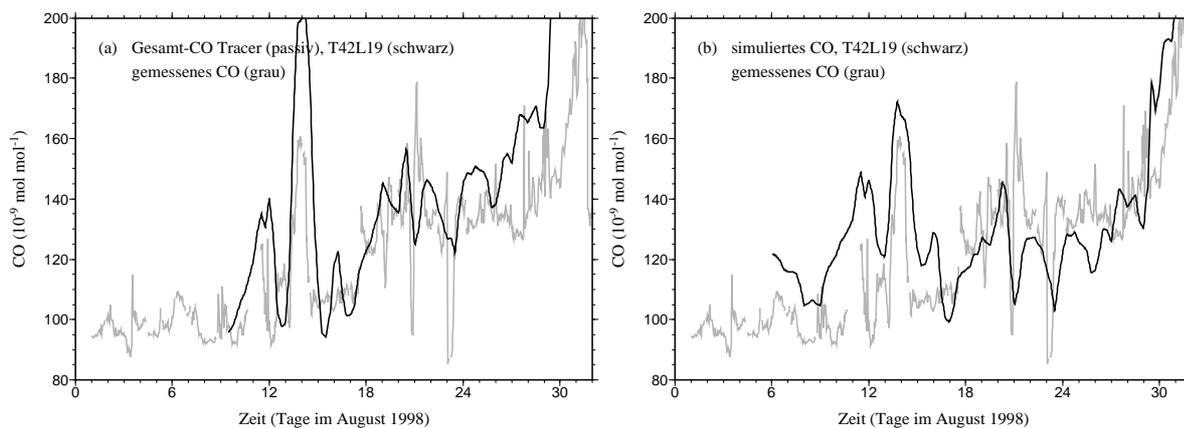


Abbildung 3.9: Wie Abbildung 3.8, jedoch in der Modellauflösung T42L19.

trennt werden können als in den horizontal höher aufgelösten Studien. Das prominenteste Ereignis dieser Episode, die Spitze um den 14. August, ist jedoch bereits in dieser vergleichsweise niedrigen Horizontalauflösung reproduzierbar. Auch der Anstieg im weiteren Verlauf sowie die beiden eingebetteten Minima können simuliert werden. Die starke Spitze am Monatsende wird korrekt erfasst.

Dies zeigt, dass hier unter Einschränkungen selbst die vergleichsweise niedrige horizontale Modellauflösung von T42 zur Modellvalidierung herangezogen werden kann. Sofern dies die Rechenzeit zulässt sollten die ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulationen jedoch idealerweise in der T63-Auflösung durchgeführt werden.

Sensitivitätsstudie mit der Modellversion T42/L41. Um zu überprüfen, ob eine Erhöhung der Vertikalauflösung die simulierten Ergebnisse beeinflusst, wurde eine ECHAM5/NUDGE-Sensitivitätsstudie in der T42/L41 Auflösung durchgeführt. Es zeigte sich jedoch keine signifikante Änderung der Ergebnisse. Sowohl die Werte der vertikal integrierten Tracer-Gesamtsäule als auch die der auf die Messstation Mace Head interpolierten Zeitreihe zeigten lediglich Abweichungen, die im Bereich der Rechengenauigkeit liegen. Dieses Ergebnis ist für die in dem vorliegenden Kapitel untersuchte Episode verständlich. Die neuen Höhenniveaus der L41-Version wurden, wie in Abschnitt 2.2 beschrieben, so gewählt, dass sich ein maximaler Gewinn an vertikaler Auflösung im Tropopausenniveau ergibt. Der hier diskutierte Tracertransport findet jedoch in niedrigeren Höhen statt, in keiner der durchgeführten ECHAM-Simulationen wurde der Waldbrandtracer bis in die Stratosphäre transportiert. Auch Trajektorienrechnungen haben gezeigt, dass die Transportwege der Waldbrandspurenstoffe in der mittleren und unteren Troposphäre verlaufen (FO2001). Daher ist die verwendete Modellversion mit 19 vertikalen Schichten ausreichend, um den Interkontinentaltransport des Waldbrandtracers zu simulieren.

3.5 Auswirkung von Waldbrandemissionen auf die Ozonproduktion

In *FO2001* wurde beschrieben, dass innerhalb der Waldbrand-Wolke eine erhöhte Ozonkonzentration gemessen wurde. Das Ozonprofil aus einem Radiosondenaufstiegs für den 10. August 1998 an der Station Lindenberg (Ostdeutschland) zeigt oberhalb von etwa 3 km deutlich eine Schicht, die um etwa 20 bis 25 nmol/mol erhöhte Ozonmischungsverhältnisse aufweist (Abbildung 3.10). In *FO2001* wird vermutet, dass diese Schicht durch eine erhöhte Ozonproduktion innerhalb der Waldbrand-Wolke erklärt werden könne. Spichtinger et al. (2001) haben hierzu die in *FO2001* durchgeführten Studien um eine Modellsimulation mit dem Dispersionsmodell FLEXPART erweitert, bei dem zusätzlich zu dem passiven CO-Tracer auch ein passiver NO_x-Tracer durch Waldbrände emittiert wird. Diese passiven Modellstudien legen nahe, dass aus Waldbränden erzeugte Stickoxide bis nach Europa transportiert werden können und zu einer erhöhten Ozonproduktion beitragen können. Diese Hypothese kann nun erstmals im Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA überprüft werden, da in der im vorigen Abschnitt diskutierten Simulation „chemical CO“ (hier: T63/L19) zusätzlich zu den bereits beschriebenen CO-Emissionen auch NO- sowie wichtige NMHC-Emissionen der borealen Waldbrände in Kanada berücksichtigt sind (vgl. Tabelle 3.1).

Diese ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation weist eindeutig eine Wolke mit erhöhten Ozonmischungsverhältnissen in 650 hPa auf, die sich von den Emissionsgebieten in Kanada über den Atlantik und Grönland bis nach Europa erstreckt (Abbildung 3.11). Ein Vergleich mit der Vertikalsäule des Waldbrandtracers (Abbildung 3.3) beweist, dass

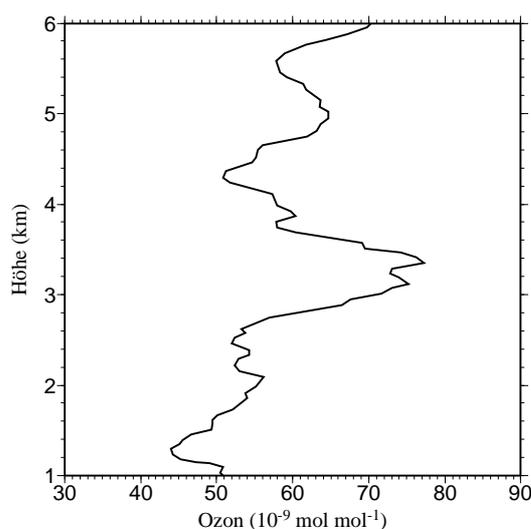


Abbildung 3.10: Vertikalprofil des Ozonmischungsverhältnisses (in nmol/mol) über Lindenberg, 10.08.1998 10:45UTC. (Abbildung 3 aus Forster et al., 2001)

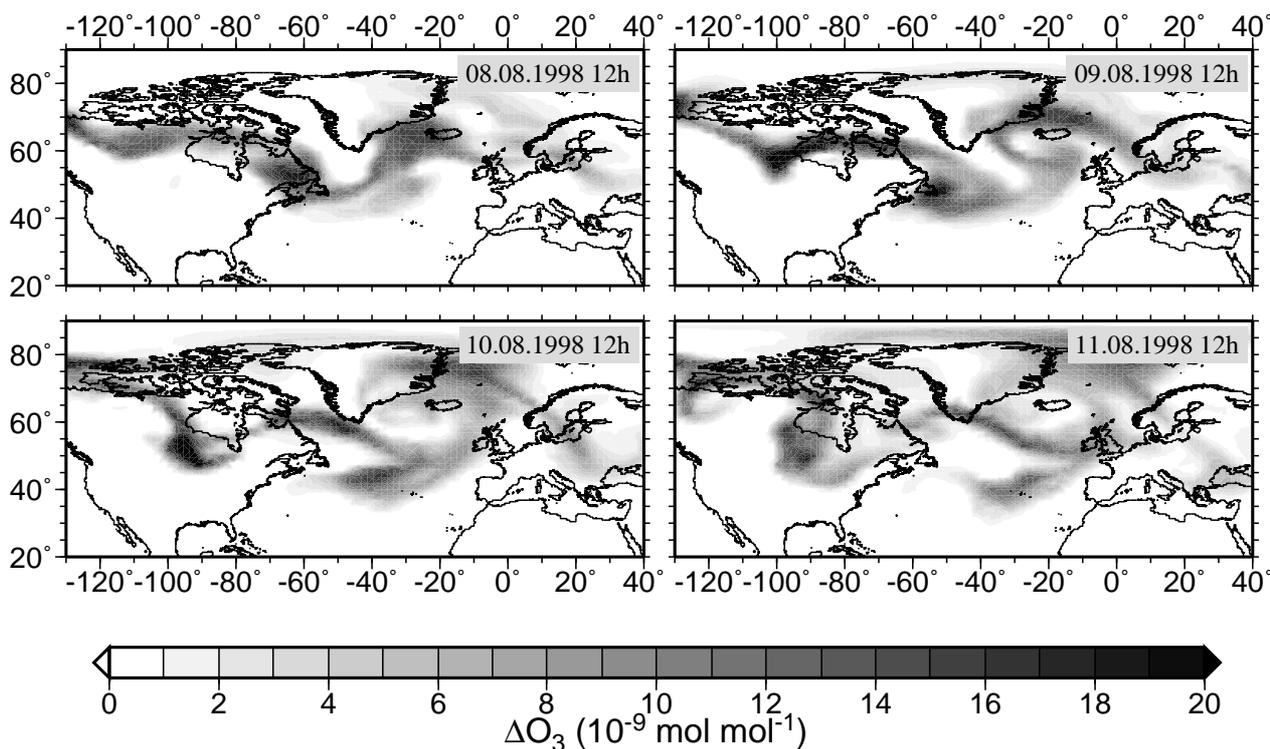


Abbildung 3.11: Ozonzunahme (in nmol/mol) in 650 hPa, verursacht durch Waldbrand-Emissionen. Differenz zweier ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulationen (T63/L19) mit bzw. ohne zusätzliche CO-, NO- und NMHC-Emissionen der borealen Waldbrände in Kanada.

es sich dabei gerade um die oben identifizierte Waldbrandwolke handelt. Am 10. August überstreicht ein Filament mit erhöhten Ozonwerten Zentraleuropa. Genau zu dieser Zeit und in diesem Höhenbereich (etwa 3,5 km) zeigt auch die Radiosondenmessung signifikant erhöhte Ozonmischungsverhältnisse (siehe Abbildung 3.10). Die Absolutwerte der Ozonzunahme fallen in der Modellsimulation mit etwa 11 nmol/mol etwas niedriger aus als in der Messung. Dies ist verständlich, da es sich bei dem Radiosonden-Profil um eine Punktmessung handelt, während das Modellergebnis einen Mittelwert über eine gesamte Modellgitterbox darstellt.

Als abschließendes Indiz soll nun noch direkt die photochemische Ozonproduktion in den ECHAM5/NUDGE/MECCA Simulationen gezeigt werden. In einem Sensitivitätslauf ohne Waldbrand-Emissionen fällt zunächst in 650 hPa ein Band mit erhöhten Werten der photochemischen Ozonproduktion über dem Atlantik auf, das sich von der Ostküste der USA bis nach Großbritannien erstreckt (Abbildung 3.12, obere Hälfte). Hierbei handelt es sich jedoch nicht um eine Waldbrandwolke. Diese Luftmassen sind vielmehr durch anthropogene Stickoxidquellen in den Ballungszentren an der amerikanischen Ostküste dominiert. Speziell über dem europäischen Kontinent fallen einzelne Bereiche mit sehr hohen Werten auf, die ebenfalls mit sehr hohen anthropogenen Emissionen korreliert sind.

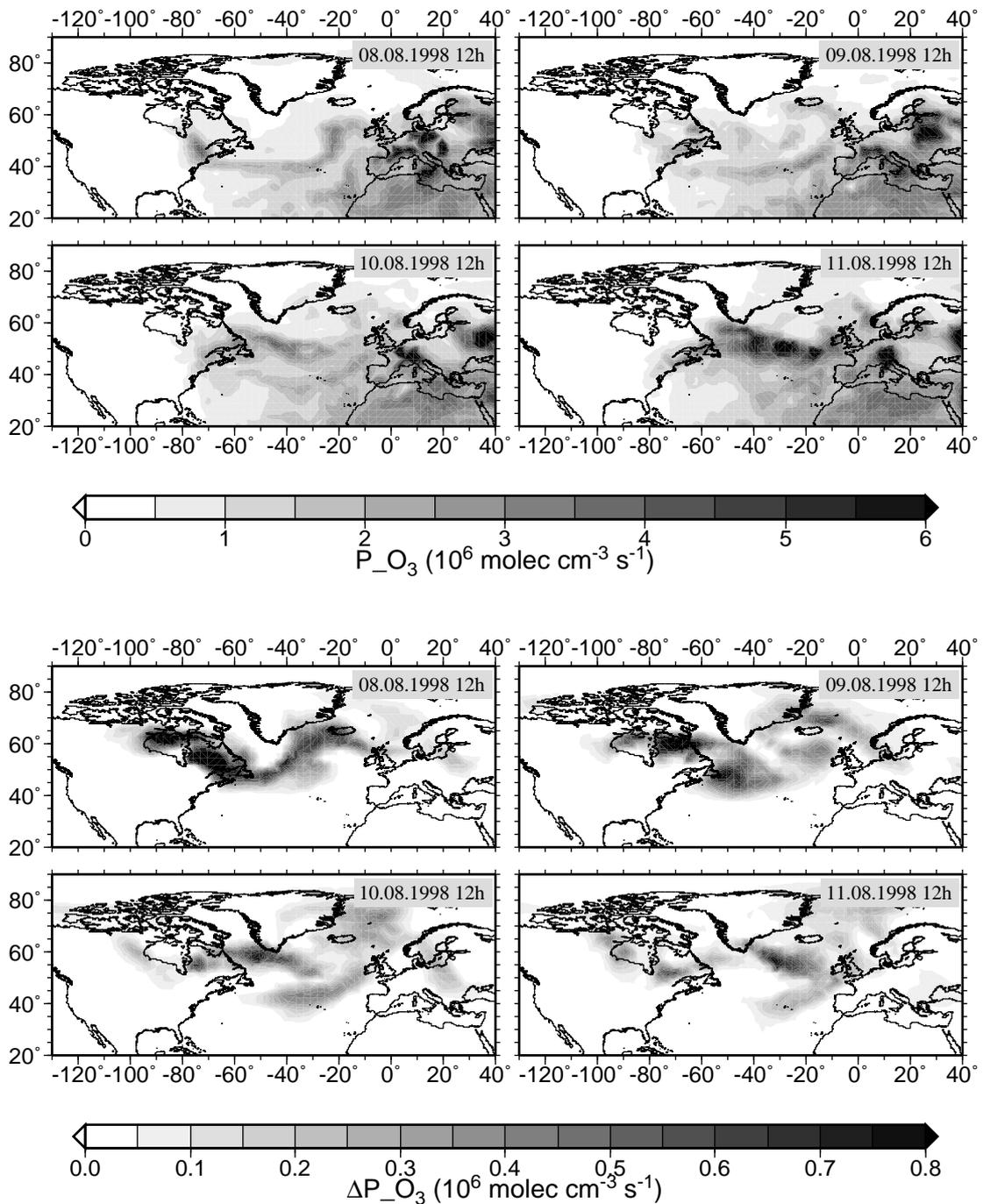


Abbildung 3.12: ECHAM5/NUDGE/MECCA (T63/L19) Modellergebnisse. **Obere Hälfte:** Photochemische Ozonproduktion (in $10^6 \text{ molec/cm}^3/\text{s}$) in 650 hPa. Sensitivitätsstudie ohne Waldbrand-Emissionen. **Untere Hälfte:** Zunahme der photochemischen Ozonproduktion (in $10^6 \text{ molec/cm}^3/\text{s}$) in 650 hPa durch Waldbrand-Emissionen.

Die in dem vorliegenden Kapitel diskutierte Referenzsimulation mit Berücksichtigung der Waldbrand-CO-, NO- und NMHC-Emissionen zeigt hingegen eindeutig, dass innerhalb der in den vorigen Abschnitten analysierten Waldbrandwolke eine erhöhte photochemische

Ozonproduktion stattfindet (Abbildung 3.12, untere Hälfte). Die typischen Strukturen am 8. August, sowie die verwirbelten Filamente am 9. August wurden bereits mehrfach als Waldbrandwolke identifiziert. Sogar in dem Filament, das am 10. August über Zentraleuropa advehiert wird, ist noch eine deutlich erhöhte Ozonproduktion zu erkennen.

Damit konnte erstmals im Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA die erhöhte photochemische Ozonproduktion innerhalb der Waldbrand-Wolke durch CO-, NMHC- und NO-Emissionen aus kanadischen Waldbränden belegt werden. Der Transport des dabei produzierten Ozons bis nach Zentraleuropa kann eindeutig durch die Radiosondenmessung über Lindenberg bestätigt werden.

Diese zusätzliche ECHAM5/NUDGE/MECCA Simulation vervollständigt somit dieses Beispiel einer klassischen borealen Waldbrand-Episode.

Kapitel 4

Simulationen zur Chemie der oberen tropischen Troposphäre

4.1 Die Bedeutung der Stickoxide – Das Projekt TROCCINOX

Stickoxide ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$) spielen eine entscheidende Rolle für die Chemie der Atmosphäre. So wird beispielsweise die Ozonproduktion bzw. der Ozonabbau durch die Stickoxidkonzentration kontrolliert. Während hohe Stickoxidkonzentrationen zur Bildung von Ozon führen, überwiegen bei niedrigen NO -Konzentrationen die Reaktionsmechanismen, die zum Abbau von Ozon führen. Weiterhin wird durch Stickoxide auch die Konzentration der Hydroxylradikale (OH) bestimmt. Eine Vielzahl von Oxidationsprozessen in der Atmosphäre wird von den OH -Radikalen dominiert. Insbesondere kann hierdurch das wichtige Treibhausgas Methan (CH_4) oxidiert und abgebaut werden. Eine realistische Behandlung der Stickoxide ist somit eine entscheidende Voraussetzung in einem globalen Klima-Chemiemodell.

Stickoxide besitzen eine Reihe natürlicher wie auch anthropogener Quellen. Im Rahmen des Chemiemoduls MECCA werden diese gemäß dem EDGAR (Version 3.2) Datensatz (Olivier und Berdowski, 2001) emittiert (von Kuhlmann et al., 2003), die Emissionen sind abgeleitet für das Referenzjahr 1995. Im Einzelnen sind dies die Verbrennung fossiler Energiequellen (jährliche Gesamtemission etwa 24 Tg(N), [Unsicherheitsbereich 16–30 Tg(N), dieser sowie die folgenden Unsicherheitsbereiche aus Bradshaw et al., 2000]), die Verbrennung von Biomasse (8 Tg(N) [4–16 Tg(N)]), mikrobiologische Produktion im Erdboden (6 Tg(N) [3–8 Tg(N)]) und der Flugverkehr¹ (0,55 Tg(N)). Natürliche Quellen von Stickoxiden in der Atmosphäre sind die Produktion in der Stratosphäre durch Photolyse von N_2O (0,64 Tg(N), Kasibhatla et al., 1991, [0,08–1 Tg(N)]) sowie Blitze. Auch die Anga-

¹Schmitt und Brunner, 1997 [0,5–0,6 Tg(N)]

ben über die Gesamtemission von Stickoxiden aus Gewittern sind gegenwärtig noch mit einem sehr hohen Unsicherheitsbereich von 2–20 Tg(N)/Jahr behaftet (Lawrence et al., 1995; Price et al., 1997a, 1997b; Huntrieser et al., 1998, 2002; Höller und Schumann, 2000; Labrador et al., 2005). Die Auswirkungen dieser großen Unsicherheit auf die Chemie der Atmosphäre sind insbesondere deshalb so stark, da Blitzemissionen direkt in der oberen Troposphäre und damit in einem für die Atmosphärenchemie besonders sensitiven Bereich auftreten, siehe hierzu Abschnitt 4.2.5. Es ist somit unbedingt nötig, den Unsicherheitsbereich der globalen jährlichen Gesamtemission von Stickoxiden aus Gewittern signifikant zu reduzieren. Dies ist eines der entscheidenden Ziele des EU-Projektes TROCCINOX (Tropical Convection, Cirrus and Nitrogen Oxides Experiment).

Im Rahmen von TROCCINOX werden dazu Flugzeugmessungen von Stickoxiden und weiteren Spurengasen in der oberen tropischen Troposphäre und Simulationsergebnisse von globalen Klima-Chemie- sowie Chemie-Transport-Modellen kombiniert. Dazu wurden im Februar und März 2004 in der Region um den Kampagnenstandort Bauru (etwa 49°W, 22°S) in Brasilien 14 Messflüge mit dem DLR-Forschungsflugzeug Falcon durchgeführt. Im Februar und März 2005 fand eine zweite Phase der Kampagne statt (TROCCINOX-2). Hierbei konnte zusätzlich zu der DLR-Falcon das russische Höhenforschungsflugzeug Geophysica eingesetzt werden. Dieses ermöglicht Messflüge bis in Höhen um 20 km, also bis in die untere Stratosphäre, wohingegen die Falcon eine maximale Gipfelhöhe um 12 km erreicht. Die Ergebnisse der TROCCINOX-2 Messkampagne können im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht mehr ausgewertet und präsentiert werden. Diese Messungen sollen genutzt werden, um die Blitz-NO-Parametrisierung im globalen Modell zu überprüfen. Durch Verwendung des NUDGE-Moduls ist es erstmals möglich, verschiedene Blitzparametrisierungen im Modell ECHAM5/NUDGE/MECCA zu testen und die sich hieraus ergebende Stickoxidverteilung direkt mit den TROCCINOX-Messungen zu vergleichen. Durch eine Variation der Quellstärke von Blitz-NO-Emissionen kann ferner ein Ensemble von Modellläufen erstellt werden. Der Vergleich mit den Messdaten kann dann die Frage beantworten, für welche der angenommenen Gesamtemissionen die Abweichung zwischen Modellergebnis und Messung minimal ist.

Um diese Fehlerminimierung anwenden zu können muss jedoch zunächst garantiert sein, dass die eingesetzten Modelle bzw. Parametrisierungen überhaupt in der Lage sind, die Vielfalt der vorhandenen Messungen (keine, schwache oder starke Konvektion, tropisch oder subtropisch geprägte Luftmassen, lokale Konvektion oder Messungen „gealterter“ Luftmassen in Ausströmgebieten konvektiver Zellen) zu reproduzieren. Gerade dies ist Thema des vorliegenden Kapitels. Erst durch den direkten Vergleich der Modellergebnisse mit den Messungen kann entschieden werden ob das entscheidende Ziel des TROCCINOX-Projektes, die signifikante Reduzierung der Unsicherheiten der globalen Stickoxidproduktion durch Blitze, mit den gegenwärtig verfügbaren globalen Modellen bzw. Parametrisierungen überhaupt erreichbar ist.

4.2 Blitzparametrisierung im globalen Modell

4.2.1 Parametrisierung nach Price und Rind

Price und Rind (1992) leiteten aus Beobachtungen der Wolkenoberkanten H (m) von Gewittern und den entsprechenden Blitzraten F (Blitze/Minute) eine global gültige Regression ab, die als Blitzparametrisierung in globalen Modellen verwendet wird. Diese Parametrisierung unterscheidet zwischen kontinentalen und maritimen Gewittern. Es kann beobachtet werden, dass in maritimen Gewittern trotz vergleichbar hoher Wolkenoberkanten signifikant niedrigere Blitzraten erreicht werden als in Gewittern über Land. Die von Price und Rind (1992) abgeleitete Parametrisierung der Blitzraten F_k (kontinental) und F_m (maritim) erhält im Folgenden den Zusatz CTH (*engl.* Cloud Top Height), um an die Abhängigkeit von der Wolkenoberkante zu erinnern:

$$F_k(\text{CTH}) = 3,44 \times 10^{-5} H^{4,90} \quad (4.1)$$

$$F_m(\text{CTH}) = 6,40 \times 10^{-4} H^{1,73} \quad (4.2)$$

4.2.2 Parametrisierung nach Grewe

Der Grund für die Tatsache, dass in maritimen Gewittern niedrigere Blitzraten beobachtet werden, ist die geringere Aufwindgeschwindigkeit in diesen Wolken. Die eigentliche Elektrifizierung der Gewitterwolke geschieht durch Kollision und Reiben der Hydrometeore, im Wesentlichen Eiskristalle und Tröpfchen unterkühlten Wassers, innerhalb der Wolke. Stärkere Aufwinde und damit verbunden ein stärkerer konvektiver Massenfluss, führen somit zum Aufbau eines deutlich stärkeren elektrischen Feldes innerhalb von kontinentalen Gewitterwolken und zu höheren Blitzraten. Es erscheint somit naheliegend, die Blitzraten im Modell direkt an den konvektiven Massenfluss bzw. die Aufwindgeschwindigkeit zu koppeln. Dieser Ansatz wurde von Grewe et al. (2001) realisiert.

Die Aufwindgeschwindigkeit innerhalb einer Wolke wird in ECHAM nicht explizit bestimmt, aber als Indikator w (m/s) dafür kann angenommen werden:

$$w = \sum_{i=\text{cloud bottom}}^{\text{cloud top}} \frac{mf_i h_i}{\rho_i d} \quad (4.3)$$

mit der Wolkendicke d (m)

$$d = \sum_{i=\text{cloud bottom}}^{\text{cloud top}} h_i \quad (4.4)$$

sowie dem konvektiven Massenfluss mf_i (kg/m²/s), der Massendichte ρ_i (kg/m³) und der Dicke h_i (m) der Wolkenschicht i .

Die Blitzparametrisierung nach Grewe et al. (2001) (im Folgenden mit dem Zusatz UPD, *engl.* updraft) ist somit allgemeingültig sowohl für kontinentale wie maritime Gewitter. Die simulierte Blitzrate innerhalb einer Modellgitterbox ergibt sich als

$$F(\text{UPD}) = 1,54 \times 10^{-5} \times (w \times d^{0,5})^{4,9} \quad (4.5)$$

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden beide Blitzparametrisierungen (F(CTH) sowie F(UPD)) auf eine jährliche globale Blitzrate von 43 Blitzen pro Sekunde skaliert. Dieser Wert wurde aus der LIS/OTD (*engl.* Lightning Imaging Sensor bzw. Optical Transient Detector) Satellitenklimatologie abgeleitet (siehe hierzu auch Kurz und Grewe, 2001). Die LIS/OTD-Daten wurden vom Global Hydrology Resource Center (GHRC) des Global Hydrology and Climate Center in Huntsville, Alabama, zur Verfügung gestellt.

4.2.3 Unterscheidung zwischen Wolke–Wolke– und Wolke–Boden–Blitzen

Sowohl die Blitzparametrisierung nach Price und Rind (1992) als auch die nach Grewe et al. (2001) berechnet jeweils die Gesamtzahl aller Blitze in einer Modellgitterbox. Sie unterscheiden zunächst nicht zwischen Blitzen innerhalb der Wolke (so genannte IC–Blitze, *engl.* inner cloud flashes) und Blitzen zwischen Wolke und dem Boden (so genannte CG–Blitze, *engl.* cloud to ground flashes). Bis heute ist nicht entschieden, ob sich beide Blitzarten bezüglich ihrer Stickoxidproduktion unterscheiden. Bisherige Studien deuten darauf hin, dass die Energie und damit verbunden die NO–Produktion eines IC–Blitzes um einen Faktor 10 niedriger liegt als die eines CG–Blitzes (Price et al., 1997a). Es ist somit wichtig, beide Blitzarten im Modell zu unterscheiden. Das Verhältnis von IC– zu CG–Blitzen (auch Z–Verhältnis genannt) wird gemäß Price und Rind (1993) anhand der so genannten „cold cloud thickness“ T_C parametrisiert. Dies ist die Schicht oberhalb der 0° –Isotherme bis zur Wolkenoberkante. Je dicker diese Schicht ist, desto größer ist die Potentialdifferenz in der Wolke und desto wahrscheinlicher wird das Auftreten von Entladungen innerhalb der Wolke. In ECHAM wird das von Price und Rind (1993) abgeleitete Polynom 4. Ordnung von T_C als Parametrisierung des Z–Verhältnisses verwendet:

$$Z = a \cdot T_C^4 + b \cdot T_C^3 + c \cdot T_C^2 + d \cdot T_C + e \quad (4.6)$$

mit den Koeffizienten $a=0,021$, $b=-0,648$, $c=7,493$, $d=-36,54$, $e=63,09$ sowie der „cold cloud thickness“ T_C in km.

4.2.4 Die NO–Produktion durch Blitze

Angaben über die Menge an Stickoxiden, die pro Blitz emittiert werden, sind auch gegenwärtig noch mit sehr großen Unsicherheiten verbunden. Der Unsicherheitsbereich hierbei beträgt etwa 2–40 kg(N) pro CG–Blitz (Price et al., 1997a). Dies liegt zum einen daran, dass direkte Messungen innerhalb eines einzelnen Blitzkanals nicht durchführbar sind. Andererseits liefern auch Labormessungen keine endgültigen Werte, da die Energie von künstlich erzeugten Blitzen um mehrere Größenordnungen niedriger ist als die von natürlichen Blitzen. Daher basieren aktuelle Angaben über die NO–Produktion eines

Blitzes zumeist auf entweder theoretischen Ableitungen oder der Extrapolation von Labormessungen. Hinzu kommt die Schwierigkeit, dass bislang nur sehr wenige Erkenntnisse über die unterschiedliche NO-Produktion von IC- im Verhältnis zu CG-Blitzen vorliegen. Bislang wird vorausgesetzt, dass IC-Blitze etwa 10 mal weniger Energie aufweisen als CG-Blitze (Price et al., 1997a). Entsprechend wird gegenwärtig davon ausgegangen, dass die Stickoxid-Produktion durch IC-Blitze nur ein Zehntel der Produktion von CG-Blitzen beträgt. In den letzten Jahren weisen aber einzelne Modellstudien darauf hin, dass beide Blitzarten möglicherweise gleiche Mengen an Stickoxiden emittieren könnten (Gallardo und Cooray, 1996; DeCaria et al., 2000).

All diese Schwierigkeiten führen dazu, dass die globale Gesamtemission von Stickoxiden durch Blitze nur mit dem in Abschnitt 4.1 vorgestellten Unsicherheitsbereich von 2–20 Tg(N)/Jahr angegeben werden kann. Selbst die niedrigen Abschätzungen hätten wichtige Auswirkungen auf die globale Chemie der Atmosphäre, da Blitzemissionen direkt in der oberen Troposphäre auftreten, wo ihre mittlere Lebensdauer deutlich höher ist als in tieferen Schichten, siehe dazu nächster Abschnitt.

Für die Simulationen im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die globale Gesamtemission von Stickoxiden aus Blitzen auf 5 Tg(N)/Jahr skaliert. Dieser Wert wurde im Rahmen eines Modellvergleichs im Projekt AEROCHEM-II (Isaksen, 2000) für alle an dem Projekt beteiligten globalen Modelle festgelegt. Entsprechend wurde die Gesamtemission von 5 Tg(N)/Jahr bereits für die Vorgängerversion ECHAM4/CHEM verwendet (Hein et al., 2001). Unter der Voraussetzung, dass die NO-Produktion $P(\text{NO})_{\text{CG}}$ von CG-Blitzen um eine Größenordnung höher ist als die von IC-Blitzen, ergibt sich die NO-Produktion eines Blitzes im Modell aus

$$5 \text{ Tg(N)} = A \cdot P(\text{NO})_{\text{CG}} + B \cdot (0,1 \cdot P(\text{NO})_{\text{CG}}) \quad (4.7)$$

mit der Anzahl A an CG- sowie der Anzahl B an IC-Blitzen. Gemäß der Skalierung auf eine globale jährliche Blitzrate von 43 Blitzen pro Sekunde und dem sich aus Abschnitt 4.2.3 ergebenden Z-Verhältnis ergibt sich hieraus bei der hier verwendeten Modellversion und einer horizontalen Auflösung von T63 eine NO-Produktion von etwa 16 kg(N) pro CG-Blitz. Dies entspricht auch dem von Price et al. (1997a) abgeleiteten Mittelwert.

4.2.5 Vertikale Verteilung der Blitz-NO-Emissionen

Die vertikale Verteilung der durch Blitze produzierten Stickoxide spielt eine wichtige Rolle für die Atmosphärenchemie, da die mittlere Lebensdauer von Stickoxiden stark höhenabhängig ist. In Bodennähe beträgt diese nur einige Stunden, in der Tropopausenregion hingegen mehrere Tage (z.B. Brasseur et al., 1996; Jaeglé et al., 1998). Gleichzeitig ist das Potential zur Bildung von Ozon aufgrund der niedrigen Umgebungstemperaturen um die Tropopause wesentlich größer als in geringeren Höhen, ebenso ist hier der Strahlungsantrieb des produzierten Ozons am größten (Wang und Sze, 1980; Lacis et al., 1990). Es ist somit unbedingt nötig, die emittierten Stickoxide im Modell realistisch vertikal zu

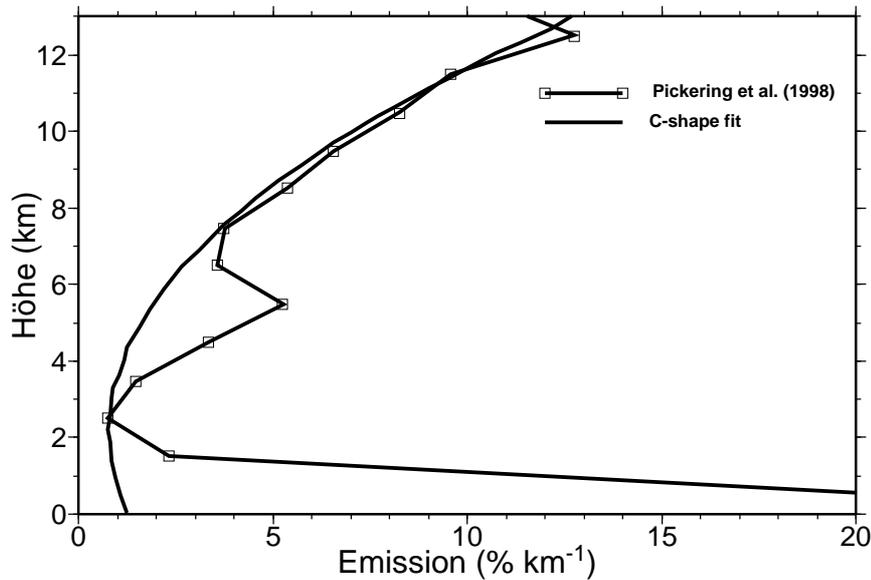


Abbildung 4.1: Vertikale Verteilung der durch Blitze emittierten Stickoxide nach Pickering et al. (1998), sowie die daran angepasste Verteilung „C-shape fit“, wie sie im Modell ECHAM5/MECCA verwendet wird.

verteilen. Speziell die durch Blitze emittierten Stickoxide können durch starke Aufwinde innerhalb einer Gewitterwolke bis in die Tropopausenregion transportiert werden. Dieser Transport wird implizit in ECHAM5/MECCA durch Vorgabe eines „effektiven Emissionsprofils“ berücksichtigt, welches die Umverteilung durch Auf- und Abwinde innerhalb der Wolke bereits enthält. Dieses Profil wurde aus Studien eines wolkenauflösenden Modells (Goddard Cumulus Ensemble, GCE), das Blitze als Funktion der simulierten maximalen Vertikalgeschwindigkeit parametrisiert, abgeleitet und durch Messungen validiert (Pickering et al., 1998). Aufgrund seiner Ähnlichkeit mit dem Buchstaben „C“ wird dieses Profil oft mit dem englischen Begriff „C-shaped“ (C-förmig) beschrieben, siehe Abbildung 4.1. Im Modell ECHAM5/MECCA wird nicht direkt das von Pickering et al. (1998) abgeleitete Profil verwendet, sondern ein daran angepasstes Polynom 2. Ordnung, da die vertikale Verteilungsfunktion zu jedem Zeitschritt in der jeweiligen Gitterbox bis zur aktuellen simulierten maximalen Oberkante der Konvektion skaliert werden soll. Außerdem wurde bewusst eine „geglättete“ Funktion gewählt, da das von Pickering et al. (1998) abgeleitete Profil aus einer begrenzten Anzahl an Messungen stammt und nicht gesichert ist, ob beispielsweise das lokale Maximum in etwa 5 km Höhe auch im globalen Mittel noch vorhanden ist. Ähnlich verhält es sich mit den sehr hohen effektiven Emissionen in Bodennähe, von denen nicht garantiert werden kann, dass sie durch Abwinde innerhalb der Wolke und nicht etwa durch Bodenemissionen zustande kommen. Die im Modell verwendete angepasste Verteilung ist ebenfalls in Abbildung 4.1 eingetragen. Diese Funktion kann als „konvektives Ausströmprofil“ (*engl.* convective outflow profile) bezeichnet werden.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit können die ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellergebnisse erstmals mit den während der TROCCINOX-Messkampagne abgeleiteten vertikalen Stickoxidverteilungen sowohl während subtropisch- als auch tropisch-geprägter Gewitter verglichen werden. Dadurch kann entschieden werden, ob das im Modell vorgeschriebene effektive Emissionsprofil für Blitz-NO zu einer realistischen vertikalen Verteilung der Gesamtstickoxide führt.

4.3 Vergleiche zwischen gemessenen und simulierten Stickoxid-Verteilungen

Durch Verwendung des NUDGE-Moduls ist es nun erstmals möglich, Simulationsergebnisse des ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystems direkt mit Flugzeug-Messungen während der TROCCINOX-Kampagne zu vergleichen. Zunächst werden die beiden in den Abschnitten 4.2.1 und 4.2.2 vorgestellten Blitzparametrisierungen gegeneinander getestet. Es kann direkt überprüft werden, ob die dadurch simulierten Stickoxidverteilungen in der oberen tropischen Troposphäre durch die Messwerte bestätigt werden können. Letztlich kann entschieden werden, ob eine der beiden Parametrisierungen zu einer signifikant besseren Übereinstimmung mit den Beobachtungen führt. In diesem und dem folgenden Abschnitt soll darauf geachtet werden, möglichst verschiedene synoptische Situationen (schwache, sub-tropisch geprägte Konvektion, starke tropische Konvektion, frische Blitz-NO-Emissionen sowie das mehrmalige Vermessen der gleichen Luftmassen an zwei aufeinander folgenden Tagen) zu diskutieren um die gesamte Bandbreite des TROCCINOX-Datensatzes zu erfassen.

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit ausgewerteten Falcon-Messungen (Schlager et al., 2004) besitzen eine zeitliche Auflösung von einer Sekunde. Die zeitliche und damit die räumliche Auflösung der Messdaten ist somit wesentlich höher als die entsprechenden Werte aus dem globalen Modell ECHAM5/NUDGE/MECCA. Aus diesem Grund wird in den folgenden Darstellungen zusätzlich ein gleitendes Mittel für die Messwerte über 20 Minuten eingefügt. Dies entspricht gerade einem Zeitschritt in der hier verwendeten Modellversion mit einer horizontalen Auflösung von T63. Die Modelldaten werden mittels bilinearer Interpolation zwischen benachbarten Gitterboxen auf die tatsächliche Flugroute abgebildet (Lawrence et al., 2003). Dabei wird linear zwischen zwei Modellzeitschritten interpoliert. Beim Vergleich der beiden Datensätze muss berücksichtigt werden dass hier versucht wird, vergleichsweise grob aufgelöste globale Modelldaten auf eine kleinskalige Flugstrecke abzubilden. Es darf somit nicht erwartet werden, einzelne kleinräumige Strukturen in der Messung übereinstimmend in den Modellsimulationen reproduzieren zu können. Es muss vielmehr die Gesamtstruktur der Flugroute bewertet werden. Eine Übersicht mit den Zielsetzungen der Messflüge sowie mit den mittleren gemessenen und simulierten NO-Mischungsverhältnissen ist in Tabelle 4.1 gegeben.

Tabelle 4.1: Übersicht aller diskutierter TROCCINOX-I Flüge. Mittlere Falcon-NO-Messungen sowie Verhältnisse der mittleren modellierten und gemessenen NO-Mischungsverhältnisse.

Flugtag	Zielsetzung des Fluges	Falcon-NO (nmol/mol)	NO(CTH) / Falcon-NO	NO(UPD) / Falcon-NO
14.02.2004	Vermessung von lokalen Gewittern innerhalb der Radar-Box	0,12	0,67	1,09
17.02.2004	Kontrast zwischen Luftmassen die von vorangegangener Konvektion beeinflusst/nicht beeinflusst sind	0,05	1,32	6,80 [§]
20.02.2004	wie am 17.02.2004	0,13	0,67	1,83
27.02.2004	Vertikalprofile innerhalb der Radarbox, Vergleich mit Ballon- und Bandeirante-Messungen [†]	0,03	0,63	0,82
03.03.2004 a	Vermessungen von Luftmassen, die von vorangegangener Konvektion beeinflusst sind	0,37	0,23	1,25
03.03.2004 b	Vermessung von starken tropischen Gewittern innerhalb der Radarbox	0,58	0,14	1,06
04.03.2004	„Lagrange-Experiment“: erneute Vermessung der am 03.03.2004 b untersuchten Luftmassen	0,26	0,54	1,99
05.03.2004	Vermessung von Luftmassen, die nicht von Konvektion beeinflusst sind	0,05	2,79	3,52 [§]
07.03.2004	ENVISAT Validierungsflug	0,26	0,33	1,33

[§] Die hohen Abweichungen werden in Abschnitt 4.3.1 untersucht.

[†] Bandeirante: brasilianisches Forschungsflugzeug für Höhen bis etwa 5 km.

Messflug 2 vom 14.02.2004.

Der hier untersuchte Messflug vom 14.02. (Abbildung 4.2) ist charakteristisch für den ersten Teil der Kampagne². Die Messregion war zu diesem Zeitpunkt von subtropischen Luftmassen geprägt. Die Stickoxidmessung zeigt allgemein niedrige NO-Mischungsverhältnisse von im Mittel 0,12 nmol/mol während des gesamten Fluges. In der Mitte der Flugstrecke sind einige Bereiche erkennbar, in denen während weniger Flugminuten erhöhte NO-Werte

²Dies wird im Folgenden anhand eines Übersichtsbildes weiterer Flüge ersichtlich.

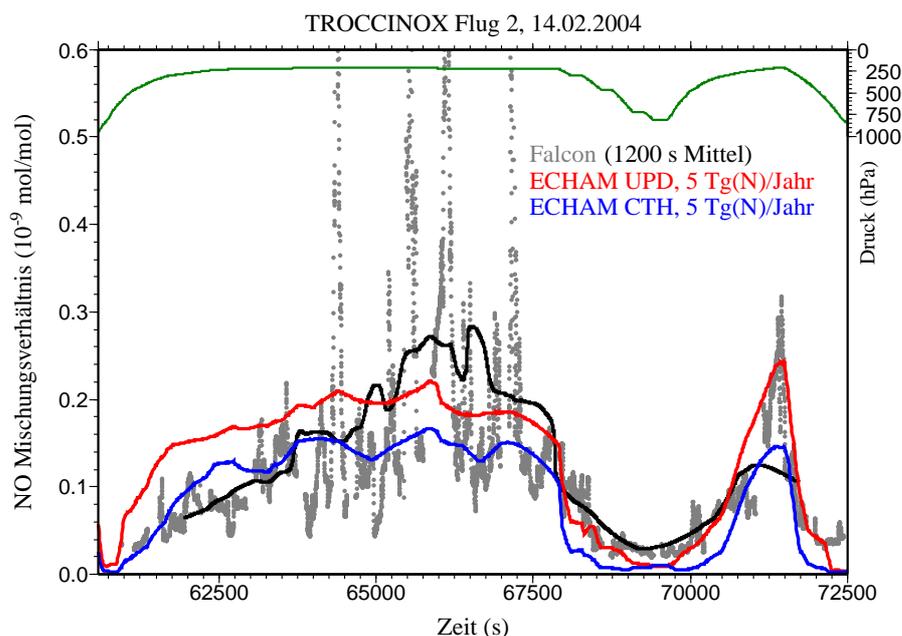


Abbildung 4.2: Gemessene und simulierte Verteilung des Stickoxid-Mischungsverhältnisses (in nmol/mol) während Flug 2 vom 14.02.2004. Im oberen Bereich der Abbildung ist zusätzlich die Flughöhe (in hPa) dargestellt.

von bis zu 0,8 nmol/mol registriert wurden, in dieser Region wurden Gewitter durchflogen. Im 20-minütigen Mittel bleiben diese aber niedriger als 0,3 nmol/mol. Der deutliche Abfall der Werte, gefolgt von einem erneuten Ansteigen gegen Ende des Fluges kommt durch die Änderung der Flughöhe zustande. Entsprechend der vergleichsweise groben horizontalen Modellauflösung stehen beide ECHAM-Simulationen in Übereinstimmung mit der Beobachtung. Speziell das CTH-Experiment zeigt sowohl bezüglich des kontinuierlichen Anstiegs der Werte zu Beginn des Fluges als auch des Absolutbetrages eine sehr gute Übereinstimmung mit der NO-Messung. Im Bereich maximaler Werte werden die Mischungsverhältnisse mit rund 0,15 nmol/mol allerdings etwas unterschätzt. Das Absenken der Flughöhe führt zu einer weiteren Unterschätzung. Der abschließende Anstieg wird wieder gut erfasst, die Spitzenwerte stimmen gut mit den 20-minütigen Mittelwerten überein. Im Mittel über den gesamten Flug werden die NO-Mischungsverhältnisse um rund ein Drittel unterschätzt.

Eine gute Übereinstimmung liefert auch die UPD-Parametrisierung. Zu Beginn des Fluges werden die NO-Mischungsverhältnisse etwas überschätzt. Im weiteren Verlauf liegen die simulierten Werte dafür mit etwa 0,2 nmol/mol näher an den Beobachtungen als im Fall des CTH-Laufs. Auch in der Region minimaler Werte finden sich höhere Absolutwerte als in der CTH-Simulation. Allerdings zeigen sich auch hier bei dem absoluten Minimum zu niedrig simulierte NO-Werte. Der abschließende Aufstieg führt zu einem starken Anstieg der simulierten Stickoxide auf bis zu 0,25 nmol/mol, die gut mit der Messung übereinstimmen. Die über den gesamten Flug gemittelten Messwerte werden von der Modellsimulation nur um etwa 10% überschätzt.

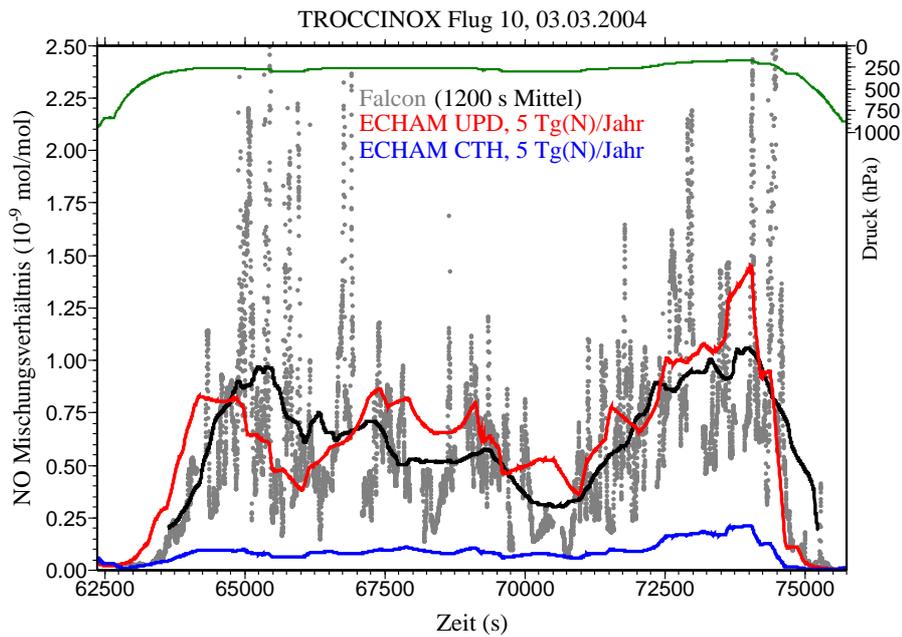


Abbildung 4.3: Wie Abbildung 4.2, jedoch während Flug 10 vom 03.03.2004. Zu beachten ist die geänderte Skalierung der NO-Mischungsverhältnisse.

Messflug 10 vom 03.03.2004.

Anfang März 2004 konnte ein starker Anstieg der konvektiven Aktivität in der Kampagnenregion registriert werden. Es wurde eine Vielzahl starker tropischer Gewitter beobachtet. Eine für diesen Zeitraum charakteristische Messung stellt Flug 10 vom 03.03. dar (Abbildung 4.3). Während des gesamten Fluges ist ein sehr hoher NO-Hintergrund von etwa 0,75 nmol/mol zu Beginn bis zu 1 nmol/mol (jeweils im 20-minütigen Mittel) gegen Ende des Fluges zu beobachten. Zusätzlich zeigt die Messung eine Vielzahl an Spitzen mit hohen bis sehr hohen NO-Mischungsverhältnissen. Während dieses Fluges wurden Spitzenwerte von bis zu 45 nmol/mol gemessen. Das über die gesamte Flugstrecke gemittelte Stickoxidmischungsverhältnis liegt mit etwa 0,58 nmol/mol rund fünfmal höher als während des oben diskutierten Fluges vom 14.02.

Die CTH-Simulation liefert hier eine interessante Erkenntnis. Über die gesamte Flugstrecke werden die modellierten NO-Mischungsverhältnisse um mehr als das Sechsfache unterschätzt. Die Simulationsergebnisse liegen fast ausnahmslos niedriger als 0,1 nmol/mol. Es ist sehr offensichtlich, dass hier die stark zugenommene Gewittertätigkeit von der CTH-Parametrisierung nicht reproduziert werden kann.

Ein gänzlich anderes Ergebnis zeigt die UPD-Simulation, obwohl hier die gleiche Quellstärke für Blitzemissionen (5 Tg(N)/Jahr) angenommen wurde wie im CTH-Fall. Im Modellsystem gelingt es, an diesen Tagen einen wesentlich stärkeren konvektiven Massenfluss in den Konvektionswolken innerhalb dieser Gitterboxen zu simulieren. Dadurch ist bei Verwendung der neuen UPD-Parametrisierung die Simulation einer deutlich höheren Blitzaktivität innerhalb der Messregion möglich. Die simulierten Blitzraten (hier nicht gezeigt) zeigen einen signifikanten Anstieg gegenüber den ersten Messtagen der TROCCINOX-

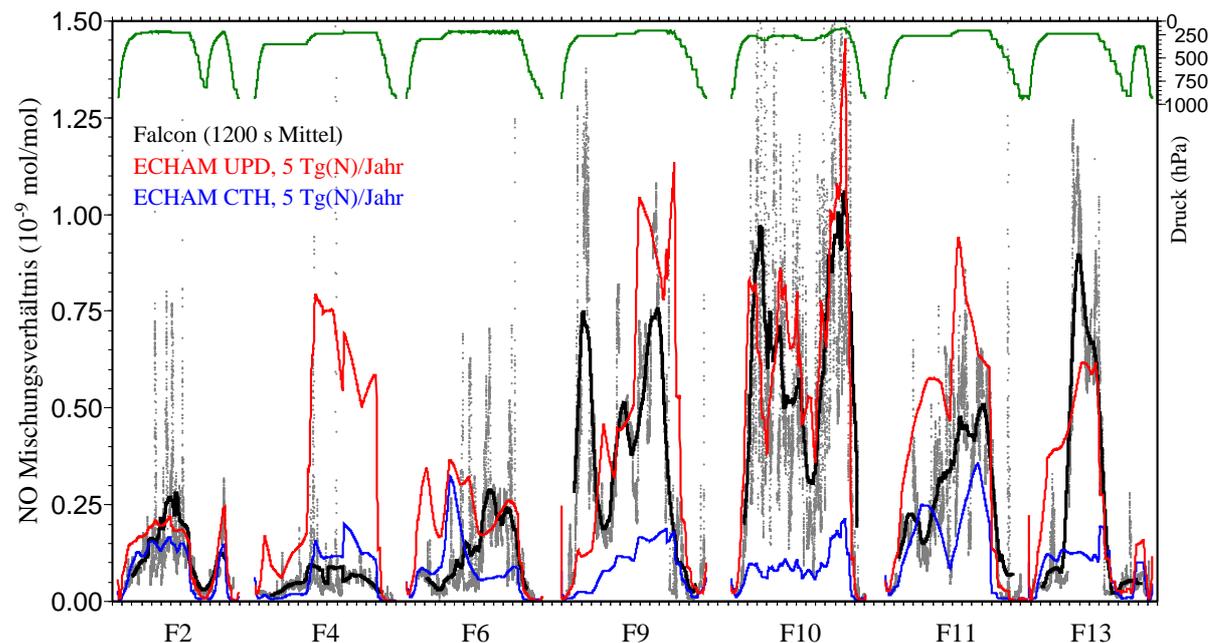


Abbildung 4.4: Wie Abbildung 4.2, jedoch während der Flüge F2 (14.02.), F4 (17.02.), F6 (20.02.), F9 und F10 (03.03.), F11 (04.03.) sowie F13 (07.03.2004).

Kampagne. Dieses Phänomen wurde auch von Beobachtern vor Ort bestätigt. Erst durch diese erhöhten Blitz-NO-Emissionen kann der durch die Messungen belegte hohe NO-Hintergrund im Modell erfasst werden. Entsprechend zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Messung und dem ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellergebnis der UPD-Blitzparametrisierung, siehe Abbildung 4.3. Sowohl die Struktur als auch der Absolutbetrag der simulierten Stickoxidmischungsverhältnisse stehen in sehr guter Übereinstimmung mit der Falcon-Messung. Die Mittelwerte werden im Modell nur um etwa 6% überschätzt.

Übersicht über weitere Messflüge.

Um belastbare Aussagen über die Leistungsfähigkeit der beiden Blitzparametrisierungen abgeben zu können, darf die Diskussion nicht auf zwei Messflüge beschränkt werden. Im Folgenden wird die Untersuchung daher auf weitere Messtage zwischen dem 14.02. und dem 07.03.2004 ausgedehnt (Abbildung 4.4). Wie anhand der vergleichsweise niedrigen, über alle Flüge im Februar gemittelten NO-Messwerte (vgl. Tabelle 4.1) von unter 0,1 nmol/mol abzulesen ist, war der erste Teil der Kampagne eher von subtropischen Luftmassen und moderater Gewitteraktivität dominiert. Prinzipiell ist zu erkennen, dass sowohl die CTH- als auch die UPD-Simulationen bei den Flügen 2 und 6 in der Lage sind, die Struktur und den Betrag der Messkurve zu reproduzieren. Im Detail ist aber beispielsweise zu erkennen, dass der Bereich maximaler NO-Messwerte bei Flug 6 von beiden Simulationen zu früh erfasst wird. Hier ist die horizontale Modellauflösung nicht ausreichend, um den beobachteten Kontrast zwischen den von Konvektion beein-

flussten bzw. nicht beeinflussten Luftmassen aufzulösen. Auch bei Flug 4 findet sich eine gute Übereinstimmung zwischen der Beobachtung und der CTH-Simulation. Das UPD-Modellergebnis stellt hier einen Ausreißer dar, der in Abschnitt 4.3.1 detailliert untersucht wird.

In der zweiten Hälfte der Kampagne (hier die Flüge 9, 10, 11 und 13) konnte eine deutlich zunehmende Gewitteraktivität im Beobachtungsgebiet registriert werden. Die Falcon-Messungen zeigen signifikant höhere NO-Mischungsverhältnisse, siehe Abbildung 4.4. Der NO-Mittelwert aller im März durchgeführten Messflüge liegt mit über 0,3 nmol/mol mehr als dreimal so hoch wie im Februar. Die einzelnen Flüge sollen hier nicht im Detail vorgestellt werden. Es ist deutlich erkennbar, dass die CTH-Parametrisierung an keinem der tropisch geprägten Tage in der Lage ist, die hohen NO-Werte der Messung entsprechend zu simulieren. Lediglich bei Flug 11 ist ansatzweise ein Signal aus erhöhter Gewittertätigkeit zu erkennen. An den restlichen Tagen werden die NO-Mischungsverhältnisse in der CTH-Simulation um ein Vielfaches unterschätzt. Durch diese Zusammenstellung wird auch sehr deutlich, dass dies kein Problem einer fehlerhaften Skalierung des Gesamt-Blitz-NO darstellt. Würden die simulierten CTH-Werte so skaliert, dass sie den Beobachtungen entsprechen, würden die Werte bei den subtropischen Flügen um eben diesen Faktor überschätzt.

Dieses Übersichtsbild macht aber auch deutlich, dass durch Verwendung der UPD-Blitzparametrisierung eine signifikante Verbesserung der Simulationsergebnisse bei tropisch geprägten Tagen erreicht werden konnte. Der deutliche Anstieg der NO-Mischungsverhältnisse wird gut von der neuen Parametrisierung erfasst.

Es soll hier betont werden, dass in den bisher vorgestellten Referenz-Modellsimulationen kein „Tuning“ durchgeführt wurde, um eine möglichst gute Übereinstimmung zwischen Beobachtung und Modellergebnis zu erreichen. Es wurde lediglich, wie bereits in Abschnitt 4.2.2 beschrieben, für beide Parametrisierungen die global gemittelte jährliche Blitzrate vorgegeben. Die Annahme einer globalen jährlichen Stickoxidgesamtemission aus Blitzen von 5 Tg(N)/Jahr wurde bereits in der Vorgängerversion ECHAM4/CHEM (Hein et al., 2001), in der ebenfalls die Cloud-Top-Height Blitzparametrisierung eingesetzt wurde, verwendet.

Es konnte somit gezeigt werden, dass die in der Modellierung weitverbreitete CTH-Blitzparametrisierung offenbar nicht in der Lage ist, die starke Variabilität der gemessenen Stickoxidmischungsverhältnisse in der oberen tropischen Troposphäre zu reproduzieren. Dies ist ein entscheidendes Ergebnis der vorliegenden Arbeit. Mit der UPD-Parametrisierung kann jedoch in dieser Arbeit eine Alternative präsentiert werden, die die beobachtete Variabilität zu einem großen Teil erfasst und während der gesamten Messperiode realistische, durch Messungen belegte NO-Verteilungen simulieren kann. Dieses Ergebnis konnte erst durch Verwendung des NUDGE-Moduls in Verbindung mit dem Mo-

Tabelle 4.2: Simulierte maximale Wolkenhöhen (CTH, in km) und mittlere Aufwindgeschwindigkeiten (UPD, in m/s) entlang der Flugrouten. Zusätzlich angegeben sind die Mittelwerte (\bar{y}) über alle Flüge sowie die Standardabweichungen (σ). Während des Vormittagsfluges am 27.02. wurde entlang der Flugstrecke keine hochreichende Konvektion simuliert.

Tag	14.02.	17.02.	20.02.	27.02.	03.03.a	03.03.b	04.03.	05.03.	07.03.	\bar{y}	σ
CTH	11,4	7,3	13,3	–	9,4	12,7	12,8	11,3	7,5	10,7	2,4
UPD	0,09	0,10	0,16	–	0,18	0,27	0,14	0,16	0,07	0,15	0,06

dellssystem ECHAM5/MECCA erzielt werden, da hiermit erstmals ein direkter Vergleich der verschiedenen Parametrisierungen mit Messungen möglich wurde. Ebenso ist dieses Ergebnis erst durch die Bereitstellung des TROCCINOX-Datensatzes möglich geworden, der erstmals vollständige Informationen über Stickoxidmessungen sowohl in subtropischen wie tropischen Gewittern enthält. Ein wichtiges Ergebnis der vorliegenden Arbeit ist daher die Aussage, dass ein entscheidendes Ziel des TROCCINOX-Projektes, die Reduzierung der Unsicherheiten der globalen Blitz-NO-Emissionen, mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit erst durch Verwendung der UPD-Blitzparametrisierung erreicht werden kann.

Der Grund, warum die beobachtete Variabilität der Blitzraten mit der UPD-Parametrisierung signifikant besser erfasst werden kann als mit dem CTH-Ansatz, liegt in der in ECHAM verwendeten Konvektionsparametrisierung (Tiedtke, 1989). Das Tiedtke-Schema ist ein so genannter „bulk“ Ansatz, der ein ganzes Ensemble von konvektiven Wolken innerhalb einer Modellgitterbox repräsentiert. Dies ist eine in vielen globalen Modellen eingesetzte Vereinfachung gegenüber so genannten „plume ensemble“ Parametrisierungen³. Die Konvektion in einem bulk-Ansatz wird implizit durch eine Reihe von Plumes mit unterschiedlichen Massenflüssen und verschiedenen Höhenbereichen, in denen ein Ausströmen aus dem Plume stattfindet, dargestellt. Die maximale Höhe des am höchsten reichenden Plumes wird durch die thermodynamischen Bedingungen in der Gitterbox bestimmt: für ein Luftpaket, in das beim Aufsteigen keine oder nur wenig Umgebungsluft eingemischt wird und das aus der Grenzschicht gehoben wird, ist dies etwa das Level mit neutralem Auftrieb (*engl.* level of neutral buoyancy, LNB). Für Temperaturprofile mit typischen Werten der konvektiven verfügbaren potentiellen Energie (*engl.* convective available potential energy, CAPE) von mehr als einigen hundert J/kg reicht dieses Level üblicherweise bis nah an die Tropopause. Bei hohem CAPE findet ein sehr hoher Massenfluss durch diesen hochreichenden Plume statt. Aber auch bei niedrigem CAPE ist dieser Plume, entsprechend mit einem schwächeren Massenfluss, vorhanden. Die CTH Parametrisierung koppelt die Blitzrate jedoch nur an die Höhe des am höchsten reichenden Plu-

³Diese betrachten mehrere konvektive Wolken bzw. „Aufwindschläuche“ (*engl.* plume) mit jeweils unterschiedlichen Höhen in einer Gitterbox, siehe z.B. Lawrence und Rasch (2005).

mes. Es werden weder der Massenfluss in diesem Plume berücksichtigt, noch die Vorgänge in allen weiteren Plumes des Ensembles, die jeder für sich auch große Höhen erreichen können. Das bedeutet konkret, dass sobald Konvektion in einem bulk-Schema für eine kontinentale (sub-) tropische Modellgitterbox (CAPE typischerweise einige tausend J/kg) ausgelöst wird, die Wolkenoberkanten in der Regel bis nah an die Tropopause reichen. Die CTH Parametrisierung liefert daher einen relativ konstanten Wert für die Blitzraten. Die Standardabweichung entspricht nur etwa 22% der über alle Flüge gemittelten maximalen Wolkenhöhe von rund 10,7 km (Tabelle 4.2). Die räumliche Variabilität, die z.B. in Abbildung 4.4 für die CTH-Simulation gezeigt wurde, beruht somit im Wesentlichen auf der Häufigkeit des Auftretens von konvektiven Ereignissen und weniger auf deren Stärke, auch wenn beide Größen natürlich gekoppelt sind. In der UPD-Parametrisierung wird hingegen gerade die Stärke der Konvektion berücksichtigt, und nicht nur die Häufigkeit. Die Standardabweichung entspricht hier etwa 40% der mittleren Aufwindgeschwindigkeiten (etwa 0,15 m/s), siehe Tabelle 4.2. Daher kann in einer bestimmten Region durch Verwendung des UPD-Ansatzes eine wesentlich größere Variabilität der Blitzraten simuliert werden, und damit ein großer Teil der beobachteten Variabilität reproduziert werden.

4.3.1 Abweichungen zwischen Modellergebnis und Messung – zwei Fallstudien

Es ist nicht zu erwarten, dass während einer Messkampagne alle Flüge bezüglich ihrer gemessenen Spurengasverteilung vollständig der Realität entsprechend simuliert werden können. Bereits in Abbildung 4.4 war zu erkennen, dass trotz weiter Übereinstimmung zwischen Messung und Simulationsergebnis einzelne Tage deutliche Abweichungen zeigen. Zwei solche Tage werden im Folgenden exemplarisch analysiert. Ein wichtiges Ergebnis des vorigen Abschnitts war die Erkenntnis, dass sich die UPD-Blitzparametrisierung als gut geeignet erwiesen hat, die NO-Verteilungen während der TROCCINOX-Kampagne zu simulieren. Die folgende Diskussion beschränkt sich daher auf Modellergebnisse, denen diese neue Parametrisierung zugrunde liegen.

Flug 4 vom 17.02.2004. Dieser Termin fiel bereits in Abbildung 4.4 durch die deutlich zu hoch simulierten NO-Werte auf. Die Falcon-Messungen sind geprägt von sehr niedrigen NO-Mischungsverhältnissen kleiner als 0,1 nmol/mol. Lediglich in der Mitte der Flugstrecke sind vereinzelte, kleinräumige Spitzen mit erhöhten Werten erkennbar. Die Modellsimulation weist, besonders ab dem zweiten Drittel, deutlich höhere Werte von über 0,6 nmol/mol auf. Zur Analyse wird auf das entsprechende Satellitenbild der Bewölkung zurückgegriffen (Abbildung 4.5). Praktisch das gesamte Beobachtungsgebiet ist geprägt von vielen konvektiven Zellen. Es ist jedoch zu erkennen, dass die eigentliche Flugroute in einem nahezu ungestörten Bereich liegt. In unmittelbarer Umgebung der Flugstrecke liegen einzelne Gewitterzellen. Die niedrigen NO-Messungen belegen aber, dass der Flug

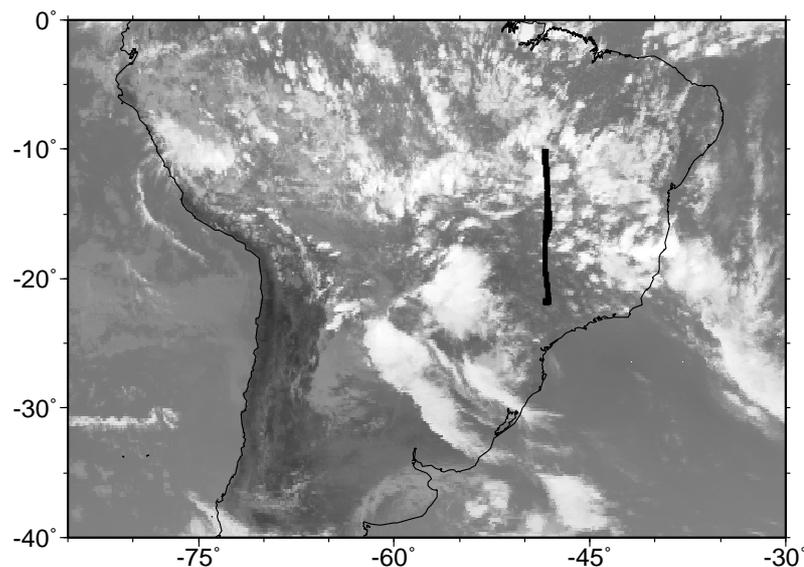


Abbildung 4.5: GOES Satellitenbild, 17.02.2004, 18UTC, mit Falcon-Flugroute. Rohdaten bereitgestellt vom National Environmental Satellite, Data, and Information Service (NESDIS).

nicht im Einflussbereich dieser Zellen lag. Lediglich im Bereich um den nördlichen Wendepunkt des Fluges ist deren Einfluss erkennbar. Dies zeigen die einzelnen Spitzen von über 1 nmol/mol in der NO-Messung. (Süd-)östlich des Kampagnen-Standortes sind weitere ausgedehnte Zellen sichtbar.

Anders als es das simulierte NO-Feld andeutet, ist die Konvektion für diesen Tag sehr gut vom Modell ECHAM5/NUDGE erfasst worden. Das Gebiet ist nahezu vollständig von konvektiven Zellen geprägt, wie anhand der simulierten konvektiven Massenflüsse (in 550 hPa) für sechs aufeinander folgende Modellzeitschritte während der Flugzeit ersichtlich wird (Abbildung 4.6). Ein herausragendes Detail stellt die Lage der Flugroute dar. Die Modellgitterboxen, in denen die Flugroute liegt, sind frei von konvektiver Aktivität und zwar während aller gezeigter Zeitschritte. Dies steht in sehr guter Übereinstimmung mit den sehr niedrigen NO-Messungen während des Fluges. In den die Flugroute umgebenden Gitterboxen ist zum Teil starke Konvektion zu erkennen, so wie es auch die Satellitenbeobachtung zeigt. Im Detail betrachtet stimmen Modellsimulation und Beobachtung also sehr gut überein. Die deutlich sichtbare Überschätzung der simulierten NO-Mischungsverhältnisse (siehe Abbildung 4.4) kommt durch Interpolation zustande. In Abschnitt 4.3 wurde beschrieben, dass zur Ableitung der Spurengaskonzentrationen entlang der Flugroute die benachbarten Modellgitterboxen herangezogen werden müssen. Da diese im vorliegenden Fall aber (realistischerweise) sehr hohe Werte aufweisen, ist auch die simulierte Flugroute von (zu) hohen NO-Mischungsverhältnissen gekennzeichnet. Dieses Problem ist somit auf eine für die Flugrouteninterpolation noch nicht ausreichende Modellauflösung zurückzuführen.

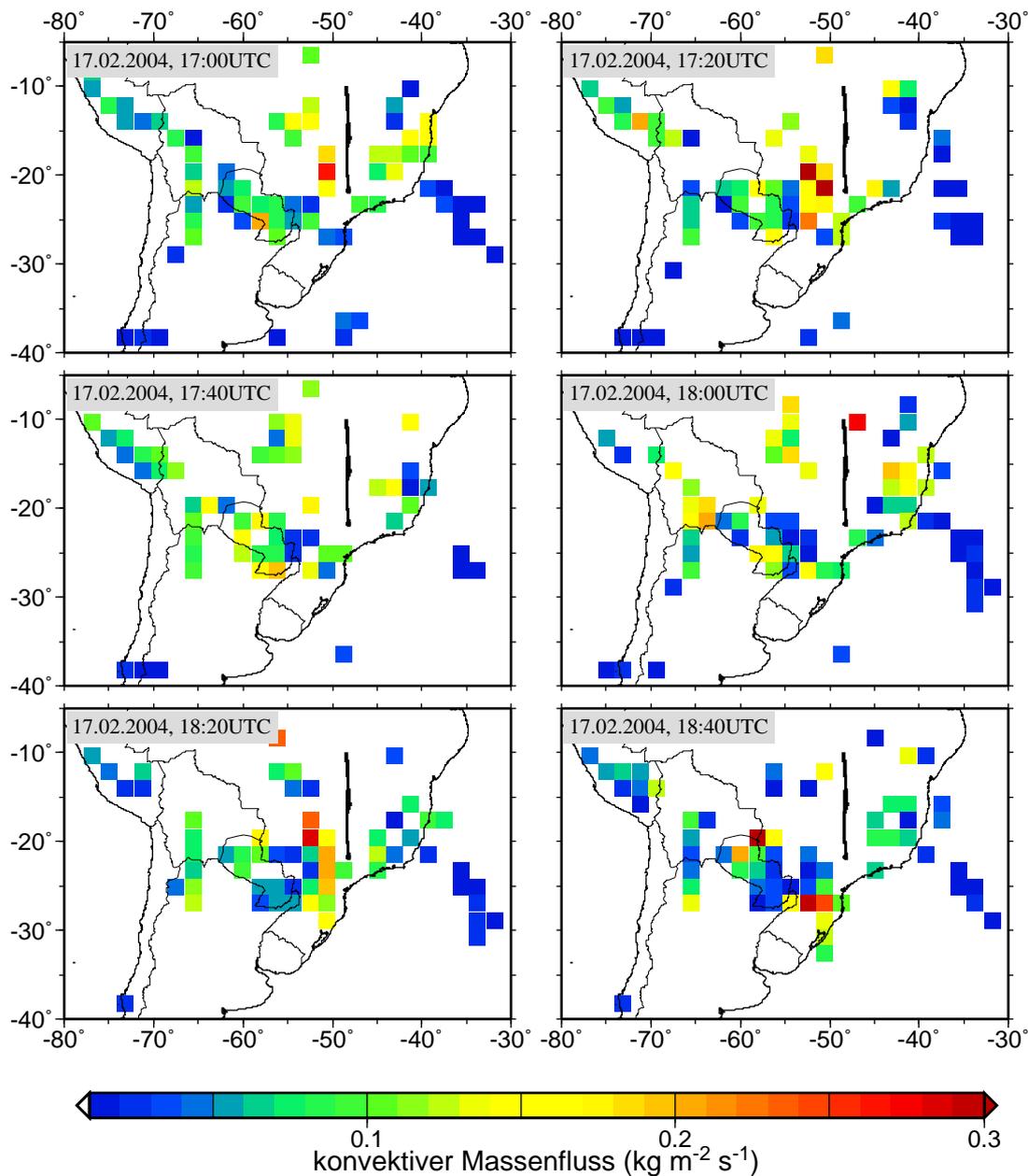


Abbildung 4.6: ECHAM5/NUDGE Modellergebnis des konvektiven Massenflusses (in $\text{kg/m}^2/\text{s}$) in 550 hPa für den 17.02.2004. Zusätzlich ist die Flugroute an diesem Tag eingezeichnet.

Flug 12 vom 05.03.2004. Während dieses Fluges weist die Falcon-Messung nur sehr geringe NO-Mischungsverhältnisse von im Mittel etwa $0,05 \text{ nmol/mol}$ auf (Abbildung 4.7). Die ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation zeigt dagegen deutlich höhere Werte, in Spitzen werden die Messungen um einen Faktor 10 überschätzt. Um diese Abweichung erklären zu können, wird wieder das Satellitenbild der Bewölkung für diesen Zeitpunkt betrachtet (linke Hälfte von Abbildung 4.8). Deutlich erkennbar ist ein Band mit starker Konvektion, das sich von Nordwesten nach Südosten über den südamerikanischen Konti-

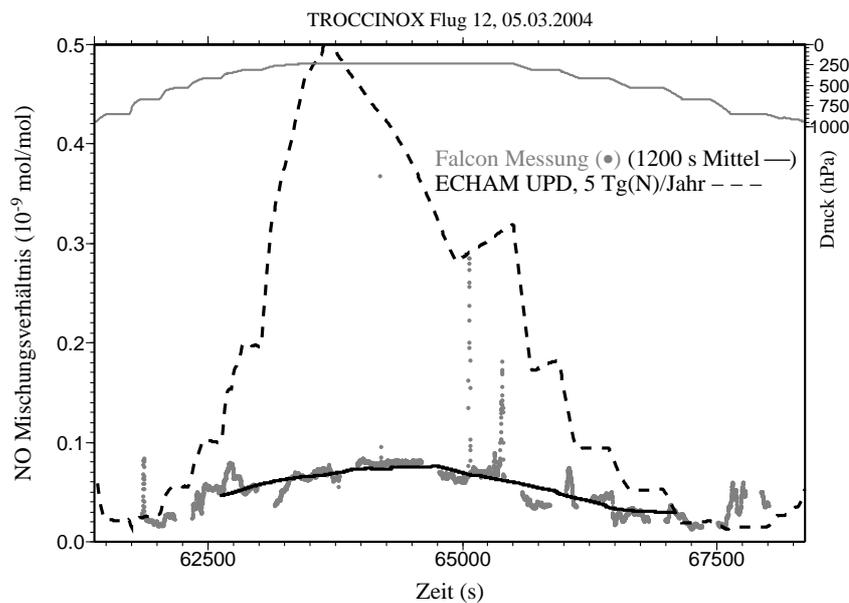


Abbildung 4.7: Gemessene (Punkte bzw. durchgezogene Linie) und simulierte (gestrichelte Linie) Verteilung des Stickoxid-Mischungsverhältnisses (in nmol/mol) während Flug 12 vom 05.03.2004.

ment erstreckt. In Zentralbrasilien (etwa in der Mitte, oberes Drittel von Abbildung 4.8, linkes Teilbild) ist zusätzlich ein ausgedehnter Gewitterkomplex zu sehen. Die Flugstrecke liegt in einem nahezu konvektionsfreien Gebiet. Das Wolkenband liegt nur wenig nördlich und östlich davon.

Erwartungsgemäß ist dieser Messflug nicht von frischen Blitz-NO-Emissionen geprägt, was durch die sehr niedrigen NO-Messungen bestätigt ist. In den Modellergebnissen findet sich jedoch eine leicht unterschiedliche Struktur. Die von ECHAM5/NUDGE simulierten konvektiven Massenflüsse (in 550 hPa) für diesen Zeitpunkt (Abbildung 4.8, rechte Hälfte) lassen ebenfalls ein „Wolkenband“ erkennen, das sich von nordwestlicher in südöstlicher Richtung erstreckt. Ebenso ist ein ausgedehnter Komplex mit sehr starker konvektiver Aktivität in Zentralbrasilien sichtbar. Allerdings liegt das Konvektionsband in der Modellsimulation um ein bis zwei Gitterboxen weiter westlich. Damit liegt die simulierte Flugroute gerade im Bereich (lokal) maximaler Konvektion, verbunden mit hoher Blitzaktivität. Hierdurch sind die sehr hohen NO-Werte in der Simulation zu erklären.

Die im Vergleich zur Messung deutlich zu hohen NO-Mischungsverhältnisse im Modell während dieses Fluges können also durch eine zeitliche Verschiebung der konvektiven Aktivität erklärt werden. In Abschnitt 2.3.2 wurde gesagt, dass das Feuchtefeld in ECHAM5/NUDGE nicht relaxiert wird. Allerdings beruht die Konvektionsparametrisierung in ECHAM auf dem Massenflussschema von Tiedtke (1989). Dieses koppelt das Auslösen von (hochreichender) Konvektion an die großräumige Feuchtekonvergenz. Die Konvergenz (bzw. Divergenz) wird aber angetrieben durch die ECMWF-Modellanalysen.

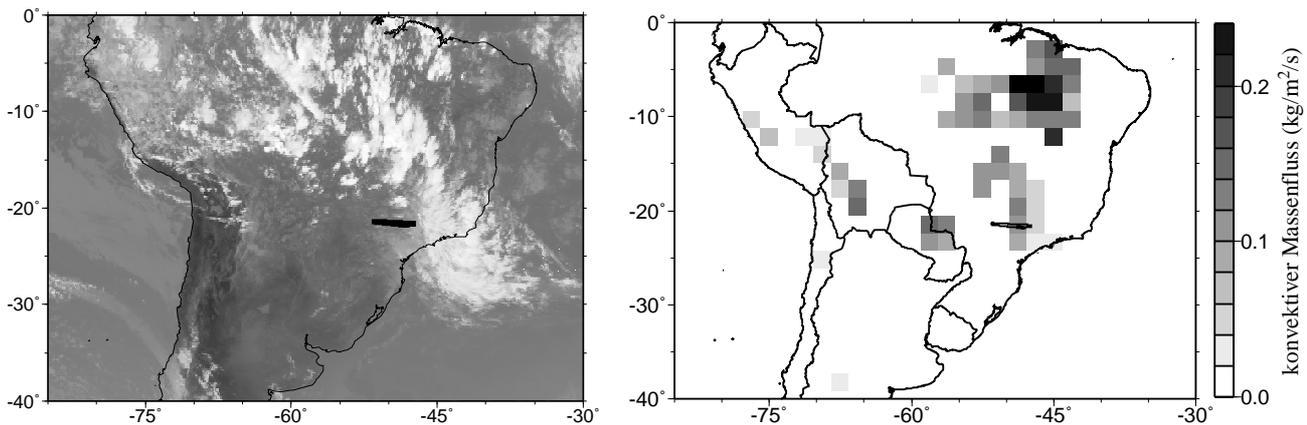


Abbildung 4.8: **Links:** wie Abbildung 4.5, jedoch für den 05.03.2004, 18UTC. **Rechts:** ECHAM5/NUDGE Modellergebnis des konvektiven Massenflusses (in $\text{kg}/\text{m}^2/\text{s}$) in 550 hPa für den entsprechenden Termin.

Es gibt Hinweise, dass gerade das divergente Windfeld in den Tropen in den ECMWF-Modellanalysen mit Unsicherheiten behaftet ist, und so die lokalen Werte der Feuchtekonvergenz ein deutlich höheres Rauschen aufweisen als deren großskalige Werte (siehe etwa Tibaldi et al., 1990). Diese Unsicherheiten können zu der beobachteten Verschiebung der Region maximaler Konvektion um etwa eine Modellgitterbox führen. Für den hier diskutierten Flug vom 05.03.2004 hat dies zur Folge, dass die ECHAM-Modellergebnisse von einer weiteren Auswertung ausgeschlossen werden müssen.

Diese beiden Fallbeispiele machen deutlich, dass Abweichungen zwischen dem simulierten und dem beobachteten NO-Feld nicht notwendigerweise auf die Blitzparametrisierung zurückzuführen sind. Es konnte gezeigt werden, dass die deutliche Diskrepanz während der Messflüge 4 und 12 auf der verwendeten Modellauflösung beziehungsweise auf Unsicherheiten in den verwendeten ECMWF-Modellanalysen basiert. Insbesondere stellen beide Fälle keine spezifische Schwäche der eingesetzten UPD-Parametrisierung dar.

Untersuchungen zum Tagesgang der Konvektion in ECHAM5/NUDGE

Es stellt sich die Frage, ob die relaxierten ECHAM-Modellergebnisse eine systematische Verschiebung des Tagesgangs der Konvektion aufweisen, wie oben exemplarisch für den 05.03. gezeigt wurde. Es soll daher kurz überprüft werden, inwieweit die zeitliche Entwicklung der in ECHAM5/NUDGE simulierten Konvektion über der Messregion in Übereinstimmung mit Beobachtungen steht. Dazu wird der Tagesgang der Blitzraten untersucht. Da gegenwärtig noch kein geostationäres Satelliteninstrument zur Blitzbeobachtung im Einsatz ist, wird auf die in Abschnitt 4.2.2 genannten, auf Messungen von polarumlaufenden Satelliten basierenden OTD/LIS Messungen zurückgegriffen. Die

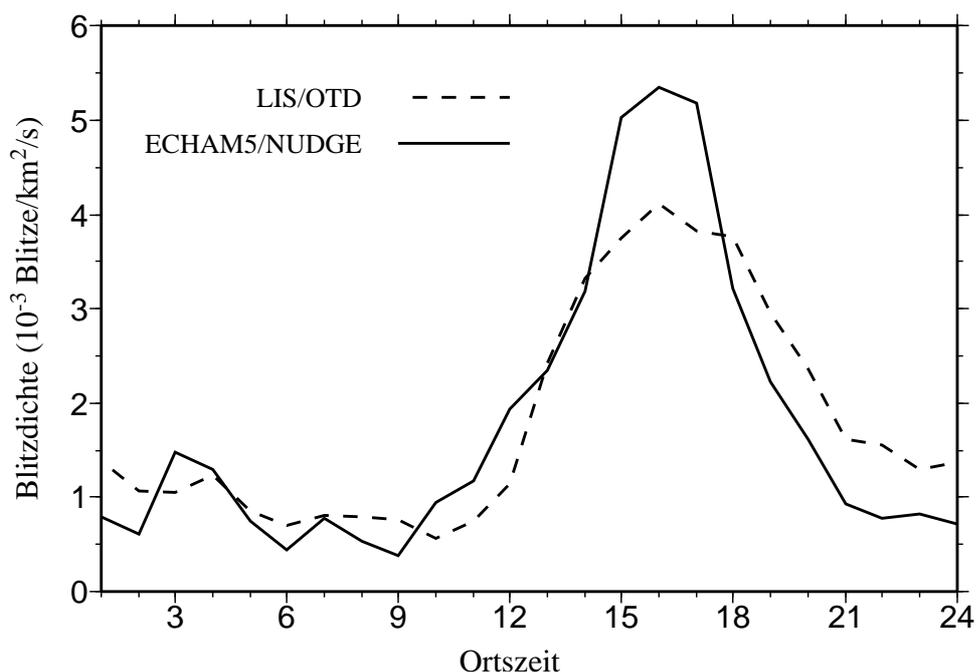


Abbildung 4.9: Tagesgang der Blitzdichten über Südamerika. LIS/OTD Satellitenklimatologie (saisonales Mittel Dezember/Januar/Februar, 1995–2000) sowie ECHAM5/NUDGE (01. Januar bis 12. März 2004).

räumliche Überdeckung der Beobachtungen ist jedoch nicht hoch genug, um während der TROCCINOX-Messkampagne einen repräsentativen Tagesgang der Blitzraten anzugeben. Es wird daher ein klimatologisches Mittel für die entsprechende Jahreszeit verwendet. Dieses zeigt einen starken Anstieg der Blitzaktivität ab den Mittagsstunden, mit einem deutlichen Maximum um 16 Uhr Lokalzeit (Abbildung 4.9). Auch in der Modellsimulation treten die maximalen Blitzraten genau zu dieser Zeit auf. Der Rückgang auf sehr niedrige Werte während der Nacht scheint zwar stärker ausgeprägt als in der Beobachtung, es kann jedoch nicht von einer signifikanten Verschiebung des Tagesgangs gesprochen werden. Qualitativ kann somit festgestellt werden, dass während der im vorliegenden Kapitel untersuchten Episode keine systematische Verschiebung der zeitlichen Entwicklung der Konvektion nachzuweisen ist.

4.3.2 Vertikale NO-Verteilungen

Neben der Gesamtemission spielt, wie in Abschnitt 4.2.5 erläutert, insbesondere die vertikale Verteilung der durch Blitze produzierten Stickoxide eine entscheidende Rolle. Durch Verwendung des TROCCINOX-Datensatzes kann nun erstmals die Vertikalverteilung der Stickoxide im Modell ECHAM5/MECCA direkt mit Messungen sowohl subtropischer wie auch tropischer Konvektion verglichen werden.

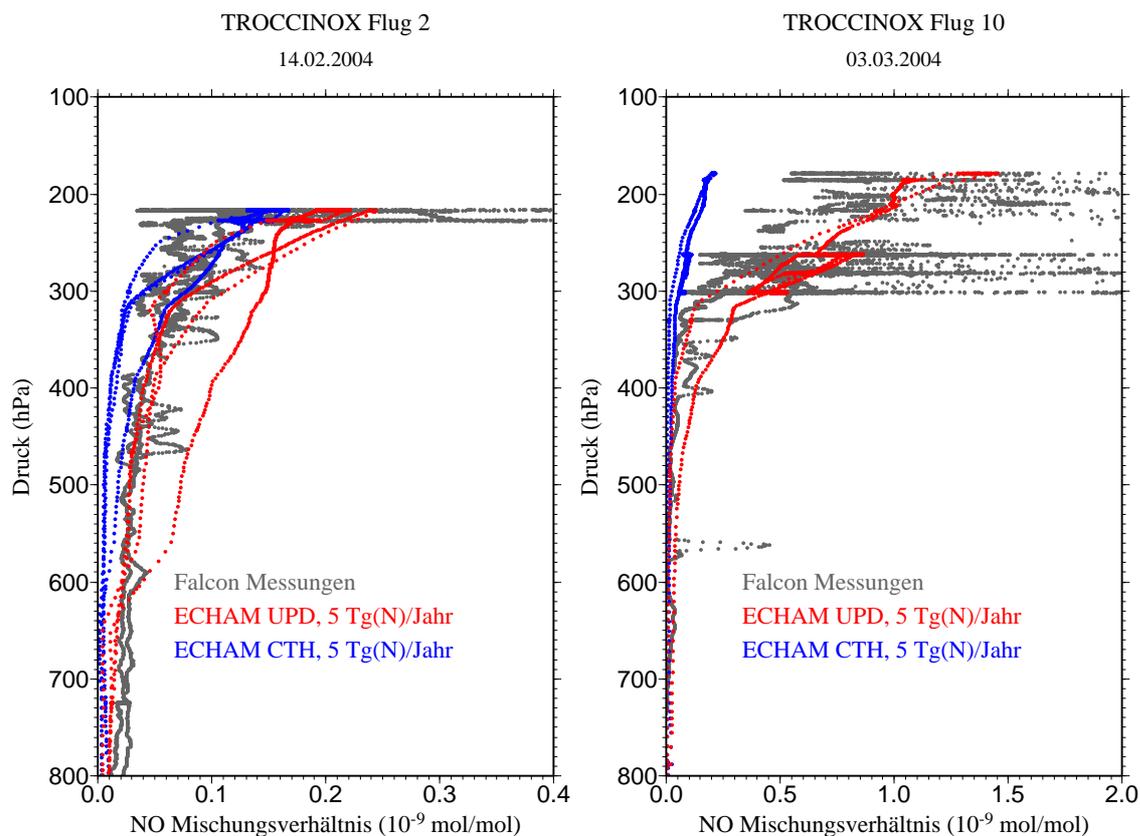


Abbildung 4.10: Gemessene und simulierte vertikale Verteilung des Stickoxid-Mischungsverhältnisses (in nmol/mol) während der Flüge 2 (14.02.) und 10 (03.03.2004). Zu beachten ist die unterschiedliche Skalierung der NO-Mischungsverhältnisse.

Die vertikalen Verteilungen der gemessenen NO-Mischungsverhältnisse weisen ein ausgeprägtes „konvektives Ausström-Profil“ auf, mit maximalen Werten in der oberen Troposphäre (Abbildung 4.10). Während des Fluges vom 14.02. wurden in der unteren Troposphäre allgemein nur sehr niedrige NO-Werte um etwa 0,02 nmol/mol gemessen (siehe linke Hälfte von Abbildung 4.10). Bis in einen Höhenbereich von etwa 500 hPa ist kaum eine Zunahme mit der Höhe zu erkennen. Oberhalb davon konnte ein deutlicher Anstieg registriert werden. Oberhalb von etwa 230 hPa wurde ein sprunghafter Anstieg der NO-Mischungsverhältnisse auf bis zu 0,3 nmol/mol (im 20-minütigen Mittel) gemessen. Die CTH-Simulation weist in der gesamten unteren Troposphäre deutlich zu niedrige Werte auf. Dies wurde bereits in Abbildung 4.2 angedeutet: gerade im Bereich einer abgesenkten Flughöhe wurde auf eine signifikante Unterschätzung der NO-Werte hingewiesen. Auch in größeren Höhen bis etwa 300 hPa liegen die simulierten Mischungsverhältnisse niedriger als die Messwerte. Lediglich der erste Abschnitt des Fluges weist in der gesamten oberen Troposphäre den Messungen entsprechende Absolutwerte auf. Oberhalb von etwa 300 hPa steigen die simulierten NO-Werte stark an, dies ist durch die Messungen bestätigt.

Die UPD-Simulation weist im gesamten Höhenbereich eine signifikant bessere Übereinstimmung mit der Messung auf als die Werte, die aus dem CTH-Lauf abgeleitet wurden. Speziell oberhalb von etwa 600 hPa stehen die von der UPD-Parametrisierung simulierten NO-Mischungsverhältnisse in sehr guter Übereinstimmung mit der Falcon-Messung. Das im Modell vorgegebene C-förmige Vertikalprofil kann in dem hier untersuchten Höhenbereich die Messwerte reproduzieren.

Auch die NO-Messungen vom 03.03.2004 (Abbildung 4.10, rechte Hälfte) zeigen das ausgeprägte Ausström-Profil. Die Absolutwerte sind jedoch, wie bereits in den vorigen Abschnitten diskutiert, deutlich höher als die entsprechenden Werte vom 14.02.2004. Zunächst fällt auf, dass die CTH-Simulation nicht in der Lage ist, das gemessene NO-Profil in der oberen Troposphäre zu reproduzieren. Dies ist leicht zu erklären. Es wurde bereits mehrfach gezeigt, dass die CTH-Parametrisierung bei tropischer Konvektion signifikant zu niedrige NO-Blitzemissionen produziert. Somit steht in einer vertikalen Modellsäule nicht genügend NO zur Verfügung, um ein derart stark ausgeprägtes Profil zu ermöglichen. Die Verteilung erfolgt zwar auch hier C-förmig, allerdings mit notwendigerweise deutlich niedrigeren Absolutwerten in der oberen Troposphäre.

Im Gegensatz dazu kann die vertikale NO-Verteilung von der UPD-Simulation realistisch reproduziert werden. In einer Modellsäule werden signifikant höhere NO-Mischungsverhältnisse als im CTH-Experiment erreicht. Erst dadurch kann das durch die Falcon-Messungen belegte, stark ausgeprägte konvektive Ausström-Profil nachvollzogen werden.

4.4 Die Ozon- und CO-Verteilung während ausgewählter TROCCINOX Flüge

Die TROCCINOX-Messkampagne lieferte nicht nur Informationen über die Stickoxidverteilung in der oberen tropischen Troposphäre, sondern auch über weitere wichtige Spurengase wie Ozon oder CO. Mit Hilfe des NUDGE-Moduls kann nun untersucht werden, ob neben den Stickoxiden als entscheidende Quelle für Ozon auch die sich hieraus ergebende Ozonverteilungen durch Messungen belegt werden können. Wie bereits in Abschnitt 4.1 angesprochen wurde, ist eine realistische Behandlung der Stickoxide im globalen Modell eine grundlegende Voraussetzung für die korrekte Simulation der Ozonverteilung. Im vorigen Abschnitt konnte gezeigt werden, dass speziell im Fall starker tropischer Konvektion allein schon die neue UPD-Blitzparametrisierung zu einer deutlich verbesserten Übereinstimmung der simulierten und der gemessenen Stickoxidmischungsverhältnisse führt. Die CTH-Parametrisierung ergab hier generell signifikant zu niedrige NO-Mischungsverhältnisse. Erwartungsgemäß können die simulierten Ozonverteilungen des CTH-Modelllaufes an keinem der tropischen Tage die Messungen nachvollziehen. Die zu niedrige photochemische Ozonproduktion in diesen Situationen führt zu einer signifikanten Unterschätzung des Ozonmischungsverhältnisses. Diese Ergebnisse werden daher

hier nicht weiter dargestellt und behandelt.

Desweiteren wird untersucht, ob auch die CO-Verteilung realistisch vom Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA wiedergegeben werden kann. Da die CO-Mischungsverhältnisse stark von Bodenquellen dominiert sind kann beurteilt werden, ob auch durch Verwendung eines klimatologischen Emissionsdatensatzes eine Übereinstimmung zwischen modellierten und gemessenen CO-Werten während bestimmter Messkampagnen erzielt werden kann. Insbesondere können hier in Fortführung der in Kapitel 3 vorgeführten Studien die Transporteigenschaften des neuen Modellsystems analysiert werden. Zur objektiven Bewertung der simulierten CO- und Ozon-Verteilungen werden „Relative Root Mean Square Differenzen“ (RMS) abgeleitet. Diese beschreiben die relativen Abweichungen der Modellergebnisse und der Messungen von den jeweiligen Mittelwerten und sind definiert als

$$\text{RMS} = \frac{1}{\bar{x}} \sqrt{\frac{\sum_i [(x_i - \bar{x}) - (y_i - \bar{y})]^2}{N}} \quad (4.8)$$

mit der Summe über i von 1 bis N (Anzahl der Beobachtungen), x_i und y_i den gemessenen bzw. modellierten Mischungsverhältnissen für jeden Punkt i entlang der Flugstrecke sowie \bar{x} und \bar{y} dem Mittelwert der Messung bzw. des Modellergebnisses. Dieses Verfahren ist jedoch nicht für räumlich und zeitlich stark variable Felder wie NO geeignet und wird daher nicht auf die im vorigen Abschnitt diskutierten Stickoxid-Verteilungen angewendet. Eine Übersicht der RMS-Werte sowie die Verhältnisse der modellierten und gemessenen CO- und Ozonmischungsverhältnisse für alle diskutierten Flüge ist in Tabelle 4.3 angegeben.

Flug 7 vom 27.02.2004 (Abbildung 4.11). Ein wissenschaftliches Ziel dieses Fluges war die Vermessung der vertikalen Verteilung verschiedener Spurenstoffe innerhalb der Messregion. Es fällt zunächst auf dass zu Beginn des Fluges, also in niedrigen Höhen, die simulierten Ozonwerte mit etwa 20 nmol/mol deutlich niedriger ausfallen als die Messwerte (um 37 nmol/mol). Nach Erreichen des Flugniveaus von rund 10 km zeigt die Messung zunächst einen Bereich lokal stark erhöhter Werte. Dieser starke Gradient wird vom Modell nicht erfasst, somit fallen die simulierten Werte hier zu niedrig aus. Im weiteren Verlauf zeigt sich aber, dass der Betrag des von ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierten Ozonmischungsverhältnisses von rund 45 nmol/mol in diesem Höhenbereich gut durch die Messung bestätigt werden kann. Mit Beginn des Absenkens der Flughöhe zeigen sich jedoch deutliche Abweichungen zwischen Messung und Modellergebnis. Die gemessenen Ozonwerte auf diesem unteren Flugniveau (rund 1500 Meter) betragen etwa 40 nmol/mol. In der Modellsimulation fallen die Werte mit etwa 25 nmol/mol signifikant niedriger aus. Gegen Ende dieses Fluges wurde ein erneuter Aufstieg durchgeführt. In diesem Höhenbereich zeigen die Modelldaten wieder eine deutlich bessere Übereinstimmung mit der Messung. Beim abschließenden Abstieg kommt es jedoch wieder zu der angesprochenen Unterschätzung der ECHAM-Werte in den unteren Schichten. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die simulierten Ozonmischungsverhältnisse in der oberen Troposphäre gut vom Modellsystem

Tabelle 4.3: Statistik der CO- und O₃-Verteilungen während der diskutierten Flüge.

Datum	CO		O ₃	
	RMS [§] (%)	\bar{y}/\bar{x} [†]	RMS (%)	\bar{y}/\bar{x}
14.02.	15,6	1,12	23,1	1,74
17.02.	16,2	1,47	32,1	1,67
20.02.	17,6	1,12	23,0	0,79
27.02.	11,2	0,92	23,9	0,83
03.03.a	18,3	1,06	21,5	0,93
03.03.b	9,3	1,11	17,3	1,14
04.03.	17,6	1,03	18,9	1,14
05.03.	21,7	0,81	24,0	1,21
07.03.	47,9	0,65	22,7	0,95

[§] Zur Definition der Relativen Root Mean Square Differenzen siehe Gleichung 4.8.

[†] Verhältnis der modellierten (\bar{y}) und gemessenen (\bar{x}) mittleren Mischungsverhältnisse.

ECHAM5/NUDGE/MECCA reproduziert werden können, in der unteren Troposphäre allerdings signifikant unterschätzt werden. Die über den gesamten Flug gemittelten O₃-Werte werden im Modell um rund 15% unterschätzt. Eine mögliche Ursache ist eine zu niedrige Stickoxidkonzentration in den untersten Modellschichten, die eine zu niedrige photochemische Ozonproduktion zur Folge hat. In der Tat weisen die simulierten NO-Werte an diesem Tag in den unteren Schichten zu niedrige Absolutwerte im Vergleich zur Messung auf (siehe Abbildung 4.11, unten). Somit liegt die Vermutung nahe, dass die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Stickoxid-Bodenemissionen zu niedrig ausfallen.

Zusätzlich besteht die Möglichkeit, dass die zu niedrigen Ozonwerte in den unteren Modellschichten teilweise durch zu hohe Isoprenkonzentrationen verursacht werden. Zu hohe Isoprenwerte führen über eine erhöhte Ozonolyse durch Isopren zu einem signifikanten Ozonverlust. Über den tropischen Kontinenten treten zu dieser Jahreszeit sehr hohe biogene Isoprenemissionen auf. Der im Rahmen dieser Arbeit verwendete EDGAR Emissionsdatensatz (Olivier und Berdowski, 2001) enthält für die Messregion Werte im Bereich um $5 \cdot 10^{15}$ molec/m²/s. Da die Emissionen innerhalb des MECCA-Chemiemoduls als Emissionsfluss am Boden vorgeschrieben werden, erfolgt der Eintrag ins Modell faktisch in der untersten Modellschicht. Beim Fehlen von starken konvektiven Ereignissen, welche das Isopren aus der bodennahen Grenzschicht in die freie Troposphäre transportieren, kann es zu einer zu starken Akkumulation von Isopren in Bodennähe kommen. Dies hätte

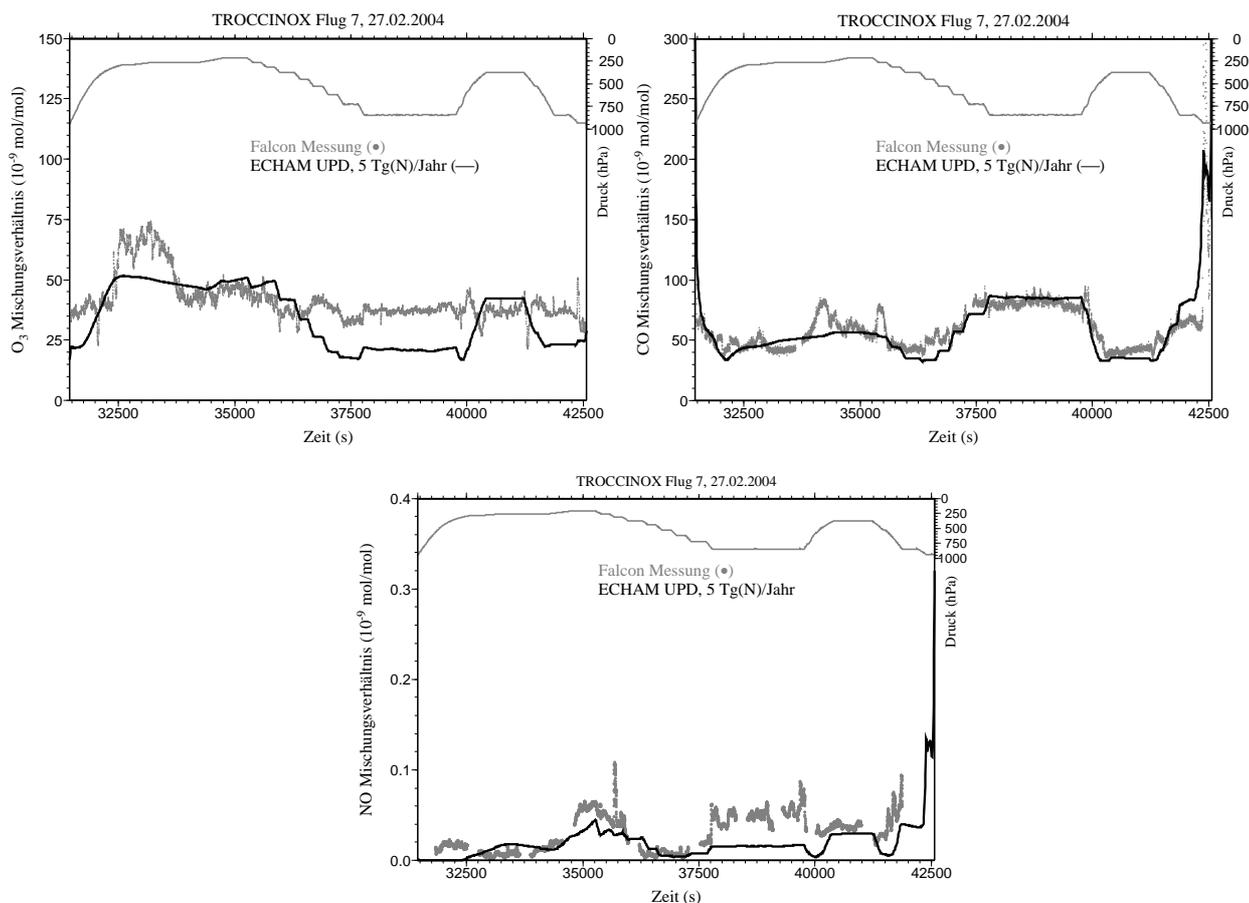


Abbildung 4.11: Gemessenes und simuliertes Ozon-, CO- und NO-Mischungsverhältnis (jeweils in nmol/mol) für Flug 7 vom 27.02.2004.

einen zu starken Ozonabbau zur Folge. Möglicherweise zu hohe Absolutwerte innerhalb des Emissionsdatensatzes in dieser Region würden diesen Effekt weiter verstärken.

Im Gegensatz zu dem im vorigen Absatz untersuchten Ozon zeigt sich für das von ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierte CO während des gesamten Fluges und somit in allen Höhengniveaus eine gute Übereinstimmung mit der Falcon-Messung (siehe Abbildung 4.11, rechts oben). Dies wird durch die niedrigen RMS-Werte von nur etwa 11% belegt. Auch in dem Flugabschnitt mit niedriger Flughöhe (etwa 1500 Meter) können die Modellergebnisse sehr gut durch die Messungen belegt werden. Die Simulationsergebnisse liegen nur wenige nmol/mol über den gemessenen CO-Mischungsverhältnissen von etwa 80 nmol/mol. Die CO-Werte während dieses Fluges werden im Modell im Mittel um weniger als 10% unterschätzt. Dadurch kann auch insbesondere bestätigt werden, dass die oben gefundene Unterschätzung der Ozonwerte in diesem Höhenbereich nicht aufgrund eines fehlerhaften Transportverhaltens des Modellsystems ECHAM5/NUDGE verursacht wurde.

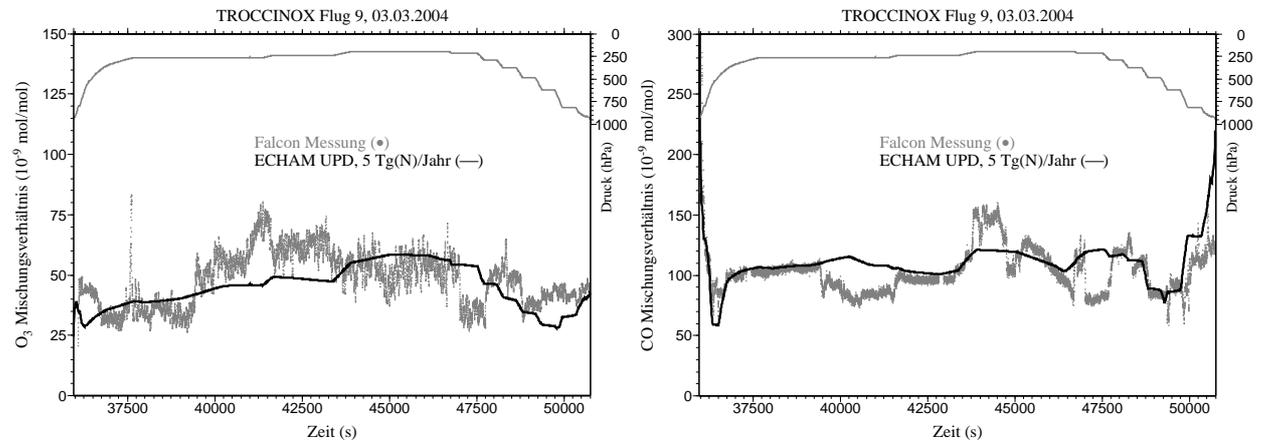


Abbildung 4.12: Gemessenes und simuliertes Ozon- und CO-Mischungsverhältnis (jeweils in nmol/mol) für Flug 9 vom 03.03.2004.

Flug 9 vom 03.03.2004. Dieser Vormittagsflug wurde in einem Sektor nordwestlich des Kampagnenstandortes durchgeführt. Ziel war die Vermessung von Luftmassen, die zuvor von tropischen Gewittern beeinflusst waren. Es zeigt sich, dass sowohl die simulierten Ozon- als auch die CO-Mischungsverhältnisse in Übereinstimmung mit der Messung stehen (Abbildung 4.12). Die zu Beginn des Fluges gemessenen Ozon-Werte um etwa 35 nmol/mol fallen in der ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation mit etwa 40 nmol/mol leicht höher aus. Der starke Anstieg des gemessenen Ozons auf Werte um 60 nmol/mol wird im Modell um etwa 10 nmol/mol unterschätzt. Speziell der während der zweiten Flughälfte vermessene ebenfalls hohe Ozonhintergrund um 50 nmol/mol wird jedoch vom Modellsystem reproduziert. Über den gesamten Flug gemittelt werden die gemessenen Mischungsverhältnisse nur geringfügig (rund 7%) unterschätzt.

Auch die simulierten CO-Mischungsverhältnisse können durch die Messungen weitestgehend belegt werden (siehe Abbildung 4.12, rechts). Der gemessene CO-Hintergrund von etwa 100 nmol/mol zu Beginn des Fluges wird auf wenige nmol/mol vom ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modell reproduziert. Eine Besonderheit stellt hierbei der Anstieg der CO-Messwerte zur Mitte der Flugstrecke, gefolgt von einem Rückgang, dar. Diese Struktur wird im Modell nicht vollständig erfasst. Die simulierten CO-Spitzenwerte fallen mit etwa 115 nmol/mol deutlich niedriger aus als die Messwerte von bis zu 150 nmol/mol. In diesem Flugabschnitt konnte ein hohes Ozonmischungsverhältnis registriert werden (Abbildung 4.12, linke Hälfte). Zusätzlich weist die Messung hier eine Erhöhung der NO-Werte auf (siehe dazu Abbildung 4.4). Dies deutet an, dass es sich hier um gealterte Luftmassen aus einem Ausströmgebiet eines konvektiven Systems handeln kann. Offenbar standen diese Luftmassen zuvor unter dem Einfluss von konvektiver Aktivität, so wie es bei der Planung der Flugroute angenommen wurde. Dieses konvektive Ereignis im Ursprungsgebiet der Luftmassen konnte in diesem Fall offenbar nicht von der ECHAM-Simulation rekonstruiert werden.

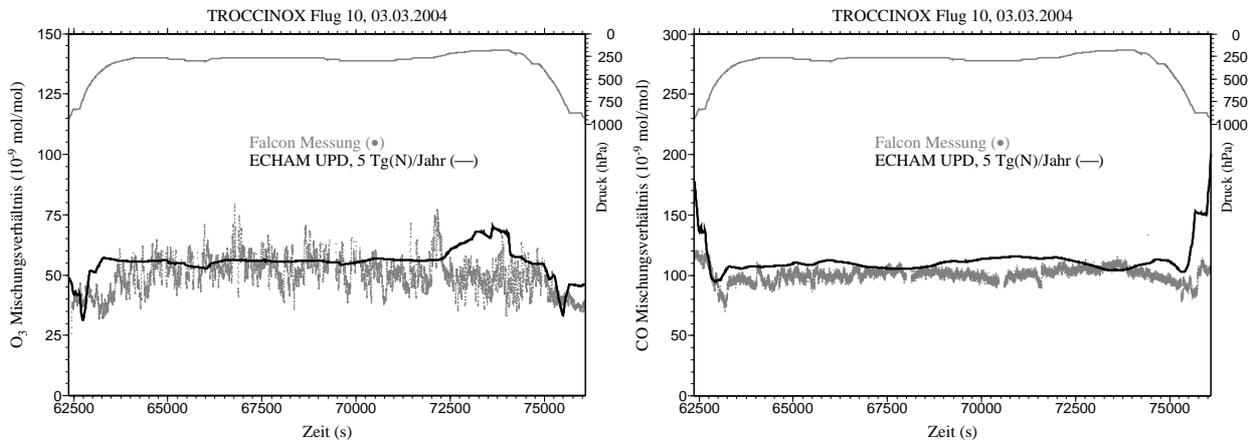


Abbildung 4.13: Wie Abbildung 4.12, jedoch für Flug 10 vom 03.03.2004.

Flug 10 vom 03.03.2004 (Abbildung 4.13). Dieser Nachmittagsflug wurde in der Umgebung des Kampagnenstandortes durchgeführt. An diesem Tag mit lokal starker Gewittertätigkeit zeigt sich allgemein eine gute Übereinstimmung zwischen den simulierten und den gemessenen Ozonwerten. Die Messung wird im Mittel um weniger als 15% überschätzt. Die auf dem Flugniveau von rund 10 km simulierten Mischungsverhältnisse weisen keine ausgeprägte Variation auf und stimmen mit Absolutwerten um 55 nmol/mol gut mit der Falcon-Messung überein. Gegen Ende des Fluges zeigt sich in den Simulationsergebnissen eine Spitze mit zu hohen Ozonwerten. Anhand der Ergebnisse in Abbildung 4.3 konnte gezeigt werden, dass hier eine etwas zu hohe Blitz-NO-Quelle im Modell simuliert wurde. Zu hohe Stickoxidkonzentrationen können aufgrund zu hoher photochemischer Ozonproduktion die etwas zu hohen Ozonwerte erklären.

Die gemessene CO-Verteilung an diesem Tag weist keine ausgeprägte Struktur auf (Abbildung 4.13, rechte Hälfte). Die starke konvektive Aktivität dürfte zu einer starken Durchmischung der troposphärischen Luftmassen geführt haben, wie die sehr einheitliche Messkurve andeutet. Dies kann sehr gut vom Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA reproduziert werden, was anhand der sehr niedrigen RMS-Werte von weniger als 10% belegt wird. Auch der Absolutbetrag des simulierten CO-Mischungsverhältnisses steht mit etwa 110 nmol/mol in Übereinstimmung mit der Falcon-Messung (Werte um 100 nmol/mol).

Flug 11 vom 04.03.2004 (Abbildung 4.14). Dieser Flug fand einen Tag nach den sehr starken tropischen Gewittern vom 03.03.2004 statt. Der Messflug wurde in einem Sektor durchgeführt, der nordöstlich der Messregion lag. Das Ziel war eine erneute Vermessung der Luftmassen, die bereits am Vortag durchflogen wurden. Es ist zu erwarten, dass die sehr starken Blitz-NO-Emissionen vom Vortag zu einer deutlichen photochemischen Ozonproduktion innerhalb dieser Luftmassen geführt haben. In der Tat weist die Messung am 04.03. einen um fast 50% erhöhten Ozonhintergrund in der oberen Troposphäre auf als am Vortag. Dieses Phänomen kann vom Modellsystem ECHAM5/NUD-

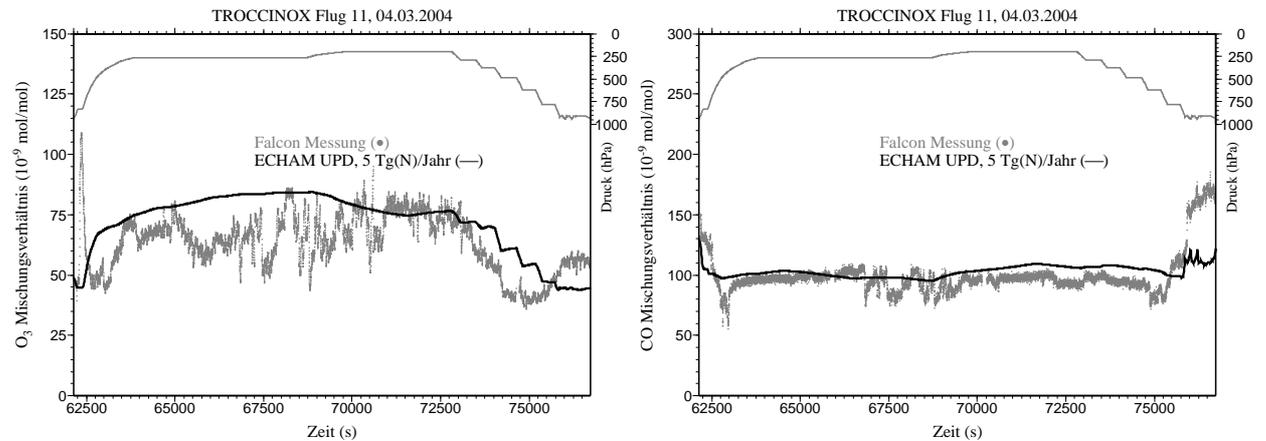


Abbildung 4.14: Wie Abbildung 4.12, jedoch für Flug 11 vom 04.03.2004.

GE/MECCA reproduziert werden. Die simulierten Absolutwerte fallen allerdings gerade zu Beginn des Fluges um rund 15 nmol/mol höher aus als die beobachteten Werte von im Mittel etwa 60 nmol/mol. Es wurde bereits gezeigt, dass die simulierten NO-Mischungsverhältnisse am Vortag mit den gemessenen Mischungsverhältnissen entlang der Flugstrecke übereinstimmen (Abbildung 4.3). Es ist aber möglich, dass in einzelnen Modellgitterboxen höhere NO-Werte auftreten als in der Realität. Die damit verbundene zu hohe Ozonproduktion kann die im Mittel um etwa 15% zu hohen Ozonwerte in der Simulation am Folgetag (04.03.2004) erklären.

Die modellierten CO-Mischungsverhältnisse (Abbildung 4.14, rechts) für diesen Messflug sollen nicht im Detail diskutiert werden. Wie im vorigen Absatz erwähnt, kann durch die starke Konvektion am Vortag eine Durchmischung der troposphärischen Luftmassen angenommen werden. Dies wird durch den gegenüber dem Vortag nicht signifikant geänderten CO-Hintergrund um 100 nmol/mol belegt. Wie bereits anhand der Vergleiche vom 03.03.2004 aufgezeigt, weist die ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation für diesen Messflug mit CO-Werten von maximal 110 nmol/mol auch eine gute Übereinstimmung mit der Falcon-Messung auf. Die mittleren Modellergebnisse fallen nur etwa 3% höher aus als die Beobachtung.

Flug 12 vom 05.03.2004. An diesem Tag sollten Luftmassen in der näheren Umgebung des Kampagnenstandortes untersucht werden, die nicht von Konvektion beeinflusst sind. Es wurde bereits anhand der sehr niedrigen gemessenen NO-Mischungsverhältnisse belegt, dass die Flugroute an diesem Tag nicht oder nur kurzzeitig von Gewittern beeinflusst war (Abbildung 4.7). In Abschnitt 4.3.1 konnte aber detailliert gezeigt werden, dass die simulierte Flugroute im Modell aufgrund einer zeitlichen Verschiebung der maximalen konvektiven Aktivität an diesem Tag gerade in einem Bereich lokaler maximaler Gewittertätigkeit lag. Die simulierten NO-Werte fielen folglich deutlich zu hoch aus. Dies wirkt sich auf die Ozonmischungsverhältnisse aus. Die um etwa 20% zu hoch simulierten

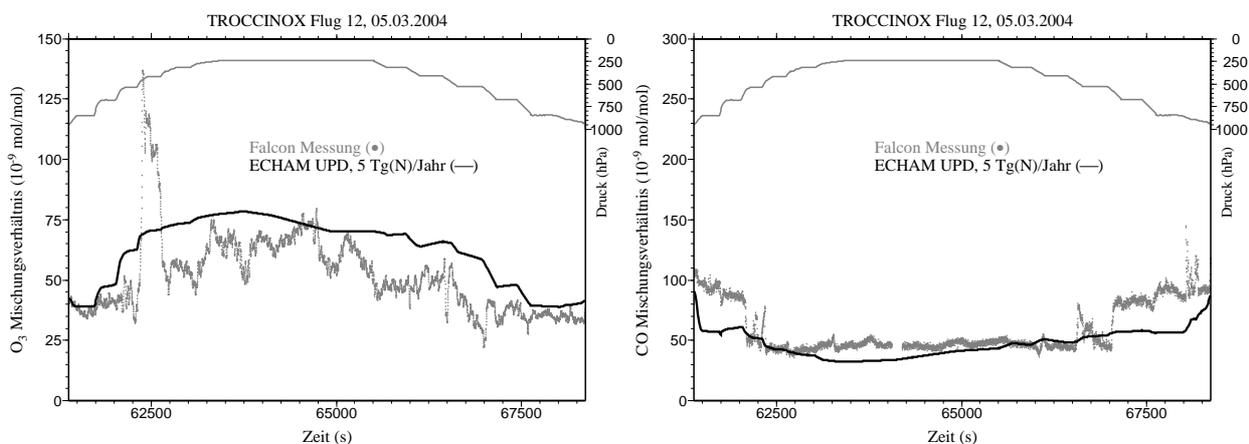


Abbildung 4.15: Wie Abbildung 4.12, jedoch für Flug 12 vom 05.03.2004.

ECHAM5/NUDGE/MECCA-Ergebnisse (vgl. Abbildung 4.15) sind somit kein Effekt einer fehlerhaften Ozonchemie, sondern können durch die deutlich zu hohen Blitz-NO-Quellen an diesem Tag erklärt werden.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass neben der Stickoxidverteilung auch die sich aus der UPD-Parametrisierung ergebende Ozonverteilung durch die TROCCINOX-Messungen bestätigt werden kann. Dies ist ein wichtiger Schritt zur vollständigen Validierung des Gesamtsystems ECHAM5/NUDGE/MECCA. Speziell in der oberen Troposphäre stehen die Simulationsergebnisse in Übereinstimmung mit der Falcon-Messung. Eine im vorigen Abschnitt diskutierte zu hohe Stickoxidkonzentration während einiger Flüge resultiert in etwas zu hohen Ozonmischungsverhältnissen im Vergleich zu den beobachteten Werten an diesen Tagen.

Auch die vom Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierten CO-Werte weisen nur relativ geringe Abweichungen von der Messung auf. Dies wird durch die abgeleiteten Relativen Root Mean Square Differenzen belegt, die zwischen rund 10 und 22% liegen (Tabelle 4.3). Dies sind Werte wie sie auch von dem MATCH-MPIC Chemietransportmodell bei der begleitenden Modellierung von Messkampagnen etwa im Rahmen von MINOS (Mediterranean Intensive Oxidant Study, RMS zwischen etwa 9 und 27%), CONTRACE (Convective Transport of Trace Gases into the Middle and Upper Troposphere over Europe: Budget and Impact on Chemistry, RMS 13 bis 25%) oder INDOEX (Indian Ocean Experiment, RMS 12 bis 22%) erzielt wurden (Lawrence et al., 2003). Zusätzlich zeigt sich, dass auch die simulierten Mittelwerte in der Regel nur um wenige Prozent von den gemittelten Messwerten abweichen. Ausnahmen bilden hierbei lediglich die beiden Flüge vom 17.02. und 05.03., die Gründe dafür wurden in Abschnitt 4.3.1 diskutiert. Die verbleibenden Abweichungen können teilweise auf eine nicht ausreichende horizontale Modellauflösung hindeuten, wenn beispielsweise Ausströmgebiete konvektiver Zellen nicht vollständig erfasst werden (siehe Flug 9 vom 03.03.2004).

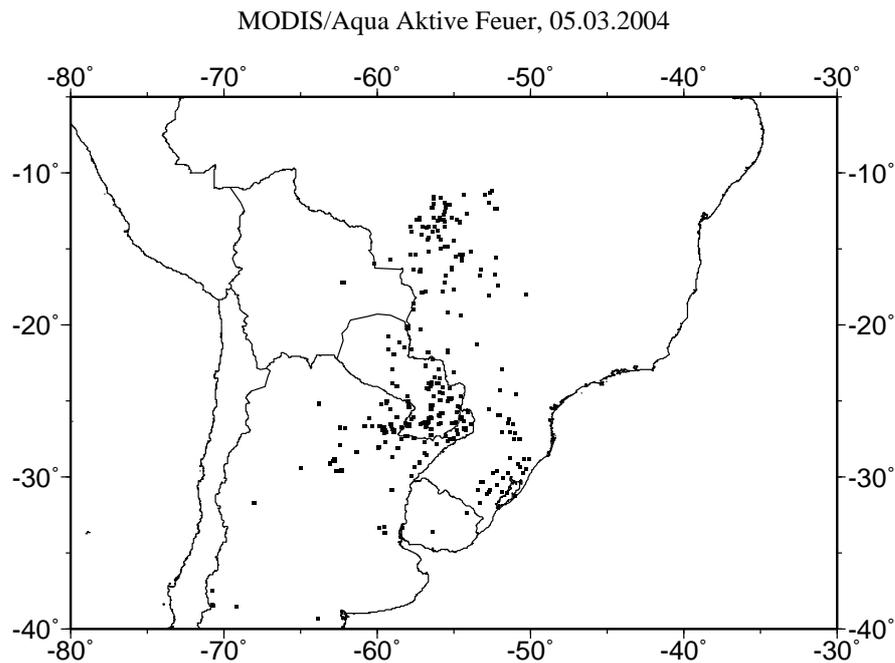


Abbildung 4.16: MODIS/Aqua Beobachtungen aktiver Feuer am 05.03.2004.

4.4.1 Möglicher Einfluss von Emissionen aus Biomassenverbrennung

Abschließend kann die Frage gestellt werden, ob die verbleibenden Unsicherheiten, beispielsweise in der modellierten CO-Verteilung, auf die im Modell verwendeten klimatologischen Emissionsdatensätze zurückgeführt werden können. Es wäre vorstellbar, dass bei einigen Messflügen Luftmassen durchflogen wurden, die hohe CO-Mischungsverhältnisse beispielsweise aus Biomassenverbrennung aufweisen. Dazu wurde auf Beobachtungen aktiver Feuer des MODIS-Instrumentes (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) an Bord des Erdbeobachtungssatelliten Aqua zurückgegriffen⁴. In der Tat zeigen die Beobachtungen eine Reihe von Feuern, Anfang März beispielsweise besonders konzentriert im Südosten Paraguays (Abbildung 4.16). Gerade die Stärke dieser Feuer muss aber kritisch betrachtet werden. Die räumliche Auflösung der für Abbildung 4.16 verwendeten MODIS-Daten beträgt etwa 1 km² pro Bildpunkt. Die einzelnen Bildpunkte mit detektierten Feuern sind in dieser Abbildung somit stark vergrößert eingezeichnet, was zu einer Überbewertung der Feueraktivität führen kann. In der Tat scheinen die hier untersuchten Feuer nicht mit einer außergewöhnlich hohen CO-Emission verbunden zu sein: für die vorliegende Arbeit wurde ein experimenteller Datensatz (Freitas et al., 2005) zur Verfügung gestellt, der tageweise abgeleitete Emissionen aus Biomassenverbrennung in Südamerika enthält (Karla Longo, Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos, Brasilien,

⁴Die bereits in Abschnitt 3.2.1 verwendeten Daten der ATSR „hot spot map“ sind nur bis Dezember 2003 verfügbar.

persönliche Mitteilung). Zur Erstellung dieses Emissionsdatensatzes fließen neben Satellitenbeobachtungen zur Lokalisierung aktiver Feuer unter anderem auch Informationen über die Bodenbeschaffenheit ein, wodurch Aussagen über die wahrscheinliche Stärke der Emissionen gemacht werden können. Der Datensatz zeigt an den hier diskutierten Tagen (Anfang März) in der Region um Paraguay Emissionen aus Biomassenverbrennung, deren Absolutwerte sich zwischen $0,2$ und $1,2 \times 10^{16}$ molec/m²/s bewegen. Emissionen dieser Größenordnung (zwischen $0,5$ und $1,5 \times 10^{16}$ molec/m²/s) sind jedoch bereits in der ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation durch Verwendung des klimatologischen Emissionsdatensatzes von Galanter et al. (2000) enthalten. Entsprechend zeigen sich keine signifikanten Unterschiede zwischen der bislang diskutierten Referenzsimulation im Vergleich zu einer zusätzlich durchgeführten Sensitivitätsstudie, bei der die experimentellen täglichen CO-Emissionen eingebunden wurden. Zumindest für die dabei untersuchten Flüge im März 2004 scheint sich somit zu bestätigen, dass CO-Emissionen aus Biomassenverbrennung keinen entscheidenden Beitrag zur den gemessenen CO-Verteilungen geliefert haben bzw. dass dieser Beitrag gut mit klimatologischen Emissionsdatensätzen beschrieben werden kann.

4.5 Variation der Gesamt-Blitz-NO-Emissionen

In den vorigen Abschnitten konnte gezeigt werden, dass das neue Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA durch Verwendung der UPD-Blitzparametrisierung sehr gut in der Lage ist, die Vielfalt der im Rahmen von TROCCINOX gewonnenen Messungen zu reproduzieren. Dies war Grundvoraussetzung, um Sensitivitätsstudien mit geänderter Blitz-NO-Quellstärke überhaupt erst durchführen zu können. Weitere Modellstudien mit der CTH-Parametrisierung erscheinen nicht hilfreich, da diese offensichtlich den starken Anstieg der Gewitteraktivität in der zweiten Hälfte der TROCCINOX-Messkampagne nicht erfasst.

Um bewerten zu können mit welcher angenommenen Gesamtemission von Stickoxiden aus Gewittern die Messungen am besten reproduziert werden können, wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit 3 weitere ECHAM5/NUDGE/MECCA-Simulationen durchgeführt. Hierbei wurde lediglich die Blitz-NO-Quellstärke variiert. Zusammen mit der in den vorigen Abschnitten diskutierten UPD-Referenzsimulation liegt nun ein Ensemble von 4 Modellläufen vor, bei denen die NO-Produktion eines CG-Blitzes zwischen $6,5$ und 32 kg(N) variiert wurde. Dies resultiert in einer globalen Gesamtemission von Stickoxiden aus Gewittern von 2 , 5 , $7,5$ bzw. 10 Tg(N)/Jahr (Abbildung 4.17). Im Rahmen des TROCCINOX-Projektes soll eine „Norm“ als objektive Maßzahl zur Bewertung der Abweichungen zwischen der jeweiligen Modellsimulation und der Messung definiert werden. Es zeigt sich jedoch bereits jetzt sehr anschaulich, dass sowohl bei subtropischer wie auch starker tropischer Gewittertätigkeit eine Gesamt-NO-Emission von 10 Tg(N)/Jahr aus Blitzen im Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA zu einer Stickoxidverteilung in der oberen tropischen Troposphäre führt, die in keiner Weise durch Messungen belegt werden

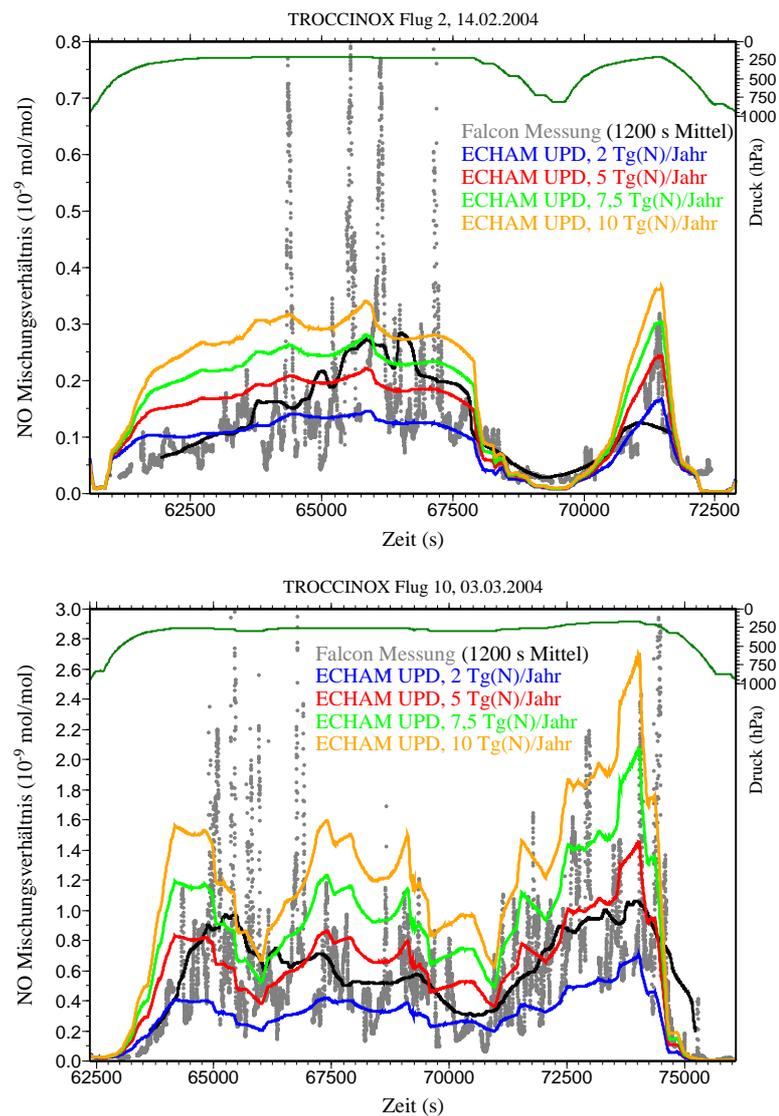


Abbildung 4.17: Sensitivitätsstudien mit variabler Gesamt-Blitz-NO-Emission (2, 5, 7,5 und 10 Tg(N)/Jahr), exemplarisch für die Flüge 2 und 10.

kann. Auch der Modelllauf mit 7,5 Tg(N)/Jahr Blitz-NO-Emission führt zu Absolutwerten, die fast ausnahmslos höher als die gemessenen NO-Mischungsverhältnisse ausfallen. Von den im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Modellstudien kann diese (7,5 Tg(N)/Jahr) Simulation als Obergrenze möglicher Gesamt-NO-Emissionen aus Blitzen festgelegt werden.

Die Diskussion der Referenzsimulation (5 Tg(N)/Jahr) in den vorigen Abschnitten machte bereits deutlich, dass die Annahme einer Gesamtemission von 5 Tg(N)/Jahr aus Blitzen zu einer sehr guten Übereinstimmung zwischen Modellergebnis und Messung führt. Weiterhin wird ersichtlich, dass eine Gesamtemission von 2 Tg(N)/Jahr aus Blitzen als untere Abschätzung sehr gut geeignet ist.

Dies ist ein wichtiges Ergebnis der vorliegenden Arbeit. Die im Rahmen dieses Kapitels angefertigten ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulationen weisen darauf hin, dass der Unsicherheitsbereich der globalen jährlichen Gesamtemission von Stickoxiden aus Gewittern von bisher 2–20 Tg(N)/Jahr signifikant auf (gegenwärtig etwa) 2–7,5 Tg(N)/Jahr reduziert werden kann. Die während der TROCCINOX-Kampagne gewonnenen Messungen können am besten im Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA mit der neuen UPD-Blitzparametrisierung unter der Annahme einer globalen Gesamt-Blitz-NO-Emission von 5 Tg(N)/Jahr erklärt werden.

4.6 Anmerkung zur Lösung des chemischen Gleichungssystems

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnten wichtige Erfahrungen zur numerischen Integration des troposphärischen Chemie-Mechanismus erlangt werden. Ohne an dieser Stelle auf die mathematischen Details einzugehen, soll die Vorgehensweise zur Lösung des chemischen Gleichungssystems kurz erläutert werden.

Im Rahmen des Chemiemoduls MECCA besteht die Möglichkeit, sehr flexibel zwischen verschiedenen Integrationsmechanismen zu wählen (Sander et al., 2005; Sandu et al., 1997). Vereinfacht ausgedrückt besteht die Wahl zwischen numerisch sehr effizienten (hier: Rosenbrock2 mit fest vorgegebenen Zeitschritten, Verwer et al., 1999) und mathematisch sehr robusten, aber rechenzeitintensiven Verfahren (hier: Rosenbrock3 mit automatischer Zeitschrittsteuerung). Der Hintergrund hierbei ist, dass die in der Atmosphärenchemie auftretenden Gleichungssysteme mathematisch unterschiedlich „steif“ sind, dies bedeutet das möglicherweise gleichzeitige Vorhandensein von sehr schnellen und sehr langsamen Reaktionsprozessen. Langsam ablaufende Reaktionen können numerisch sehr effizient mit vergleichsweise großen Zeitschritten gelöst werden. Schnelle Reaktionen benötigen hingegen wesentlich kürzere Zeitschritte, führen aber auch schnell zu einer stabilen Lösung. Mathematisch sehr „steife“ Gleichungssysteme mit sowohl schnell als auch langsam ablaufenden Reaktionsraten setzen somit sowohl kurze Zeitschritte als auch ein langes Integrieren voraus, was zu einem starken Anstieg der notwendigen Rechenzeit führt (siehe auch Buchholz, 2005). Zunächst wurde eine Reihe an Simulationen mit dem Rosenbrock2 Verfahren (hier: 5 logarithmische Zeitschritte pro ECHAM-Zeitschritt) durchgeführt. Speziell im Fall eines vereinfachten Chemiemechanismus (NO_x - HO_x - CH_4 - O_3 Hintergrundchemie) führte dies zu stabilen, durch die Messungen bestätigten Ergebnissen. Auch bei der Simulation der TROCCINOX-Messflüge mit voller NMHC-Troposphärenchemie unter Verwendung der CTH-Blitzparametrisierung zeigten sich keine außergewöhnlichen Extremwerte in den Modellergebnissen.

Wurde jedoch die UPD-Parametrisierung verwendet, zeigten sich schon nach wenigen Simulationstagen starke numerische Instabilitäten. Die UPD-Parametrisierung führt zur Simulation einiger Gitterboxen mit (durch Messungen belegten) sehr hohen NO-Mischungs-

verhältnissen. In Verbindung mit dem Vorhandensein von Isopren führen diese in einzelnen Gitterboxen zu einem Versagen des Rosenbrock2 Integrationsmechanismus bei fester Zeitschrittwahl. Insbesondere konnte in einzelnen Gitterboxen mit hohen Blitz-NO-Emissionen ein vollständiger „Abbau“ von Isopren auf 0 mol/mol beobachtet werden. Gleichzeitig erhält das Ozonmischungsverhältnis in diesen Gitterboxen einen unrealistisch hohen Absolutwert. Diese Gitterboxen stellen eine hohe, unnatürliche Quelle für Ozon in der oberen tropischen Troposphäre dar. Entsprechend wiesen die ECHAM5/NUDGE/MECCA-Simulationen zu Beginn teilweise um ein Drittel zu hohe Ozonmischungsverhältnisse im Vergleich zur Messung auf.

Um somit im Rahmen der vorliegenden Arbeit stabile Ergebnisse garantieren zu können, wurden alle hier präsentierten Simulationen mit dem Rosenbrock3 Verfahren mit automatischer Zeitschrittsteuerung durchgeführt. Dies führt zu einem drastischen Anstieg der Rechenzeit, näherungsweise vervielfacht sich der Aufwand für eine Simulation bis um den Faktor 6.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der Rosenbrock2 Integrationsmechanismus mit vorgeschriebener Zeitschrittwahl durchaus verwendet werden kann, wenn beispielsweise im Rahmen von Ausbreitungsrechnungen mit vereinfachter Hintergrundchemie kurzfristig Simulationsergebnisse vorliegen müssen. Sollen jedoch, wie in der vorliegenden Arbeit, die Modellsimulationen helfen, Ergebnisse von Messkampagnen zu bewerten, muss zwingend der rechenzeitintensive Rosenbrock3 Algorithmus mit automatischer Zeitschrittsteuerung verwendet werden.

Kapitel 5

Simulationen zur Dynamik und Chemie der polaren Stratosphäre

Nachdem in den vorigen Kapiteln Studien über troposphärische Prozesse durchgeführt wurden, sollen nun insbesondere dynamische und chemische Prozesse mittels des ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modells untersucht werden, die zur Ausbildung des „Ozonlochs“ in der südpolaren Stratosphäre führen. Hierzu wurde als Episode der Südwinter und Frühling 2002 ausgewählt, der sich durch ein bislang einzigartiges dynamisches Verhalten auszeichnete: es wurde erstmals eine große Stratosphärenenerwärmung in dieser Jahreszeit beobachtet. Diese Episode bietet sich aus zweierlei Gründen zur Untersuchung an. Zum Einen existiert bereits eine Reihe an Studien mit Chemietransportmodellen zu diesem Phänomen, mit denen die ECHAM-Ergebnisse verglichen werden können. Zum Anderen liegen für diesen Zeitraum die ersten MIPAS/ENVISAT-Daten (Michelson Interferometer for Passiv e Atmospheric Sounding) vor, die zur Modellevaluierung verwendet werden können. MIPAS-Daten haben gegenüber den bislang verfügbaren Okkultationsmessungen den Vorteil, dass sie nicht auf Sonnenlicht angewiesen sind und so Beobachtungen aus dem Inneren des winterlichen Südpolarwirbels auch während der Polarnacht liefern können. Der Schwerpunkt des vorliegenden Kapitels liegt gerade in der Validierung der Verteilungen von (passiven und chemisch reaktiven) Spurenstoffen im ECHAM5-Modellsystem mit Hilfe dieser MIPAS/ENVISAT-Messungen.

Die durchgeführten Modellsimulationen wurden für den 01.05.2002 initialisiert. Die Anfangsverteilung der chemischen Spurenstoffe wurde dabei von dem Chemietransportmodell REPROBUS (Levèvre et al., 1994) bereitgestellt, in das MIPAS/ENVISAT Beobachtungen assimiliert wurden.

5.1 Einführung – der antarktische Polarwirbel im Winter und Frühling 2002

Die allgemeine Dynamik des südhemisphärischen „Polarwirbels“ kann etwa wie folgt beschrieben werden (siehe z.B. Lahoz et al., 1996). Während des Septembers ist die südhemisphärische stratosphärische Strömung durch eine starke, ostwärts rotierende Zyklone, dem so genannten Polarwirbel, über der Antarktis gekennzeichnet. Um diese bilden sich transiente Antizyklonen die ostwärts wandern und sich dabei abschwächen. Während des Oktobers schwächt sich diese Ostwärtsbewegung ab und es entwickelt sich eine quasistationäre Antizyklone (typischerweise in dem Sektor 90° – 180° Ost). Die Antizyklone ersetzt allmählich den Polarwirbel, der schließlich Ende Oktober von oben her aufbricht. Als „Wirbelrand“ wird dabei allgemein die Region mit dem stärksten meridionalen Gradienten der Potentiellen Vorticity (PV) bezeichnet. Alternativ kann der Wirbelrand auch über die maximalen Zonalwindgeschwindigkeiten beschrieben werden. Im August befindet sich der Wirbelrand (in einer Höhe um 20 km) in der Regel bei etwa 60° S und wandert bis Ende Oktober polwärts bis etwa 70° S (jeweils etwa $\pm 5^{\circ}$) (Waugh und Randel, 1999). Die großräumige meridionale Strömung wird hierbei durch die so genannte Brewer–Dobson Zirkulation beschrieben (z.B. Haynes et al., 1991). Hierbei handelt es sich um eine langsame meridionale residuale Zirkulation die gekennzeichnet ist durch diabatisches Aufsteigen in den Tropen und Absinken von stratosphärischen Luftmassen und Spurengasen in polaren Regionen.

Im Vergleich zum arktischen Wirbel stellt der Südpolarwirbel in der Regel eine sehr stabile Zyklone dar. Da beispielsweise die Land–Meer–Kontraste sowie die Orographie auf der südlichen Halbkugel deutlich geringer ausgeprägt sind als auf der nördlichen Hemisphäre, werden weniger planetare und auch Schwerewellen in der Troposphäre angeregt, deren vertikale Ausbreitung in die Stratosphäre und Wechselwirkung mit dem Grundstrom (Matsuno, 1971) regelmäßig zu einem instabilen Verhalten und Aufbrechen des Nordpolarwirbels führen. Die geringere Wellenaktivität im Südwinter führt auch zu einem schwächeren diabatischen Absinken in mittleren und hohen Breiten und damit zu einer stärkeren Abkühlung der Stratosphäre, da die Temperaturen näher am Strahlungsgleichgewicht liegen. Dies führt zu einer Verstärkung des Polarwirbels (siehe z.B. Newman et al., 2001). Im Gegensatz dazu führt eine starke Wellenaktivität zu so genannten „Stratosphärenenerwärmungen“. Die in der Troposphäre angeregten planetaren Wellen breiten sich vertikal nach oben aus, wobei ihre Amplituden mit zunehmender Höhe aufgrund der abnehmenden Luftdichte anwachsen. Die sich ausbreitenden Wellen besitzen eine westliche Geschwindigkeit relativ zum Grundstrom und tragen einen westwärts gerichteten Drehimpuls. Der durch die Dissipation dieser Wellen ausgeübte westwärts gerichtete Antrieb führt zu einer Abschwächung der zonalen Winde und zu einem Anstieg der polaren Temperaturen (Matsuno, 1971). Es wird dabei unterschieden zwischen „großen“ und „kleinen Stratosphärenenerwärmungen“¹. Eine Erwärmung wird „Major Warming“ genannt, wenn

¹Im Folgenden mit den englischen Begriffen „Major“ und „Minor Warming“ bezeichnet.

sich in 10 hPa die Temperaturdifferenz zwischen dem zonal gemittelten Wert bei 60° und der Poltemperatur umkehrt und der zonal gemittelte Zonalwind bei 60° auf östliche Richtungen wechselt. Bei einem „Minor Warming“ kehrt sich ebenfalls die Temperaturdifferenz um, die Winde bleiben jedoch westlich. In der nordpolaren Stratosphäre treten Major Warmings regelmäßig, im Schnitt alle 2 Jahre auf (Labitzke, 1982). Im Südpolarwinter wurde ein solches Ereignis hingegen seit Beginn der Beobachtungen 1956 bis zum Jahr 2002 noch nie beobachtet (Krüger et al., 2005). Bezüglich der allgemeinen Dynamik der südpolaren Stratosphäre stellt der Südwinter 2002 daher eine bislang einzigartige Ausnahme dar. Bereits im Mai konnten positive Abweichungen vom langjährigen Mittel zwischen der zonal gemittelten Temperatur in 60°S und dem Südpol registriert werden. Außerdem traten schon im Juli periodische Schwankungen des zonal gemittelten Zonalwindes bei 60°S auf (Krüger et al., 2005). Dies ist in ungestörten Wintern, wie etwa 2001, nicht der Fall (Baldwin et al., 2003). Im August und September 2002 wurden 3 Minor Warmings beobachtet (Manney et al., 2005; Allen et al., 2003), gefolgt von dem ersten Major Warming in der südpolaren Stratosphäre Ende September seit Beginn der Aufzeichnungen. Der Polarwirbel, der zu diesem Zeitpunkt aufgrund der Störungen bereits deutlich von der Polachse entfernt war, wurde dadurch in zwei Fragmente aufgespalten. Ein solches Verhalten konnte bis dahin noch nie beobachtet werden (siehe z.B. Simmons et al., 2005). Die hier beschriebene dynamische Entwicklung des Polarwirbels seit dem 15. September ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Der Polarwirbel ist darin an den betragsmäßig hohen Werten der Potentiellen Vorticity erkennbar. Es ist beispielsweise deutlich sichtbar, wie der Wirbel am 25. September in zwei Fragmente aufgespalten wurde.

5.2 Transport „passiver“ Spurenstoffe im ECHAM5–Modellsystem

Die horizontale wie vertikale Verteilung von Spurengasen ist sowohl durch chemische als auch durch dynamische Prozesse bestimmt. Dies gilt insbesondere für das für den Strahlungshaushalt wichtige Spurengas Ozon, vor allem im Bereich des winterlichen Polarwirbels. Wie im vorigen Abschnitt beschrieben, findet im Polarwirbel ein Abwärtstransport statt, durch den z.B. Luftmassen mit hohen Mischungsverhältnissen an Chlorverbindungen aus der mittleren Stratosphäre nach unten transportiert werden. Diese Chlorverbindungen können an der Oberfläche von polaren Stratosphärenwolken in Folge heterogener Reaktionen in für den Ozonabbau wichtige reaktive Vorläufersubstanzen (HOCl, Cl₂) umgewandelt werden. Durch die aufgehende Frühjahrssonne werden die Vorläufersubstanzen in aktives Chlor aufgespalten, welches zu einem katalytischen Abbau von Ozon führt. Die hier skizzierten Reaktionsabläufe werden in Abschnitt 5.3.3 detaillierter vorgestellt. Neben dem Vertikal- spielt auch der Horizontaltransport eine wichtige Rolle. Der beobachtete starke Ozonverlust im antarktischen Polarwirbel würde deutlich geringer ausfallen, wenn beispielsweise ozonreiche Luftmassen aus niederen Breiten in den Wirbel eingemischt

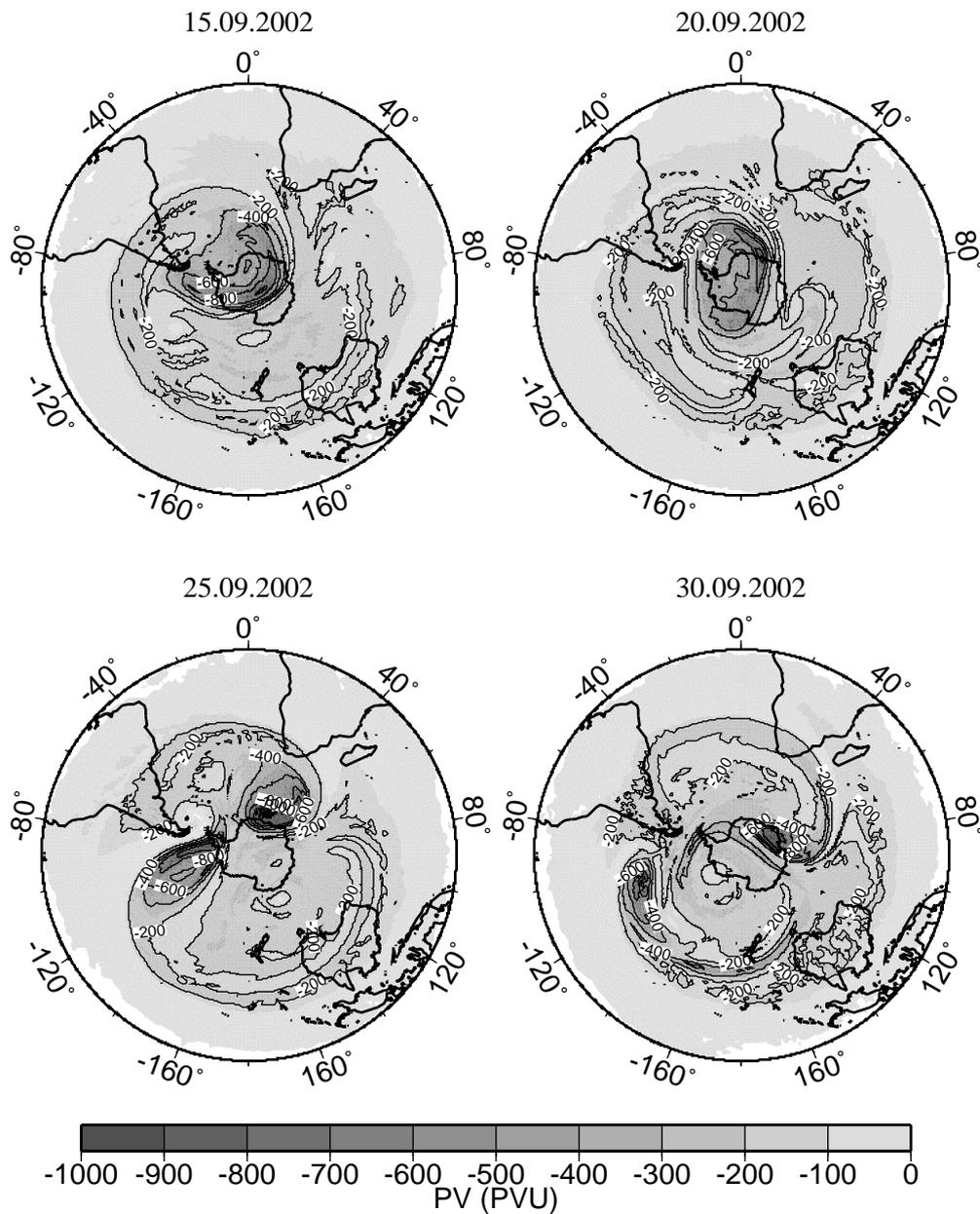


Abbildung 5.1: Potentielle Vorticity (in PVU, $1 \text{ PVU} = 10^{-6} \text{ K m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ kg}^{-1}$) in 10 hPa für den 15., 20., 25. und 30. September 2002, aus operationellen ECMWF-Analysen. Kontourlinien-Intervall: 200 PVU.

würden und so zu einem „Auffüllen“ des Ozonlochs führen würden. Beobachtungen zeigen jedoch, dass der antarktische Polarwirbel in der unteren Stratosphäre eine stabile atmosphärische Erscheinung ist, bei der kein oder nur geringes Einmischen von extrapolarer Luftmassen stattfindet (z.B. Manney et al., 2005).

Um die Transporteigenschaften des Modells ECHAM5 in der Stratosphäre überprüfen zu können, werden zunächst die „passiven“ Spurengase Methan (CH_4) und Distickstoffoxid (N_2O) betrachtet. Beide Spurenstoffe weisen eine geringe chemische Reaktivität auf. So

beträgt die mittlere Lebensdauer von Methan in der Stratosphäre unterhalb von rund 10 hPa etwa ein Jahr (z.B. Brasseur und Solomon, 1986). Auf den in diesem Kapitel untersuchten kürzeren Zeitskalen sind die CH_4 - und N_2O -Verteilungen somit maßgeblich durch Transporte bestimmt. CH_4 und N_2O weisen ähnliche vertikale Profile auf. Die Mischungsverhältnisse erreichen maximale Werte aufgrund von Bodenemissionen in Bodennähe und nehmen mit zunehmender Höhe ab. Das Methanmischungsverhältnis sinkt mit zunehmender Höhe aufgrund von Reaktionen mit Hydroxylradikalen (OH) in der Troposphäre bzw. mit OH, O^1D und Cl in der Stratosphäre. Die wichtigste Senke für N_2O in der oberen Atmosphäre stellt die Photolyse dar.

5.2.1 Die Verteilungen passiver Spurenstoffe in ECHAM5

Die in diesem Kapitel vorgestellten Vergleiche der ECHAM5/NUDGE/MECCA-Ergebnisse mit MIPAS/ENVISAT Beobachtungen wurden in allen Höhenbereichen durchgeführt, in denen die Satellitendaten vorliegen (etwa 15 bis 30 km Höhe). Im Folgenden werden die horizontalen Spurenstoffverteilungen in 21 km Höhe präsentiert. Dieser Höhenbereich ist insbesondere deshalb interessant, weil hier in der Regel ein maximaler Ozonverlust in der polaren Stratosphäre beobachtet wird. In den Abbildungen sind über die Modellergebnisse die Messungen von MIPAS/ENVISAT, im Folgenden vereinfacht MIPAS, an den entsprechenden Tagen gelegt, und zwar mit identischer Farbkodierung. Zu beachten ist hierbei, dass es sich bei diesen und allen folgenden MIPAS-Beobachtungen um nicht-synoptische Daten handelt. Das heißt, dass die Positionen der jeweiligen Messpunkte der geographischen Position und der Uhrzeit der Messung entsprechen, während die Modellergebnisse genau den 12 UTC Termin darstellen. Einzelne MIPAS-Messungen können somit zeitlich um maximal 12 Stunden von der synoptischen Situation abweichen, die durch das ECHAM-Modellergebnis abgebildet ist. Dies ist insbesondere zu beachten, wenn kleinräumige Strukturen im Modellergebnis mit den Messungen verglichen werden. Der erste untersuchte Zeitpunkt ist der 24.07.2002, für diesen Tag liegen erstmals MIPAS-Daten dieser Episode vor. Das MIPAS-Instrument befand sich während der hier untersuchten Episode noch in der Test- bzw. Kalibrierungsphase. Die nächsten Messdaten liegen erst für den 18. und 20. September, also gerade den Tagen vor dem Aufbrechen des Polarwirbels, vor, gefolgt vom 25.09., dem Termin des endgültigen Aufbrechens.

Bereits zu einem sehr frühen Zeitpunkt (24.07.), etwa 3 Monate nach der Initialisierung des Modelllaufes, zeigen sich deutliche Abweichungen in der von der 19-Schichtenversion (horizontale Modellauflösung T42) von ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierten CH_4 -Verteilung von den Beobachtungen (Abbildung 5.2). In den niederen Breiten zeigen die MIPAS-Daten hohe CH_4 -Mischungsverhältnisse zwischen etwa 1,2 und 1,7 $\mu\text{mol/mol}$. Der Polarwirbel ist an den niedrigen Methanwerten zwischen etwa 0,5 und 0,8 $\mu\text{mol/mol}$ zu erkennen, die durch den Abwärtstransport von methanarmen Luftmassen aus der oberen/mittleren Stratosphäre erklärt werden können. Gerade die Mischungsverhältnisse innerhalb des Polarwirbels fallen in der ECHAM-Simulation mit Werten zwischen etwa 1,1

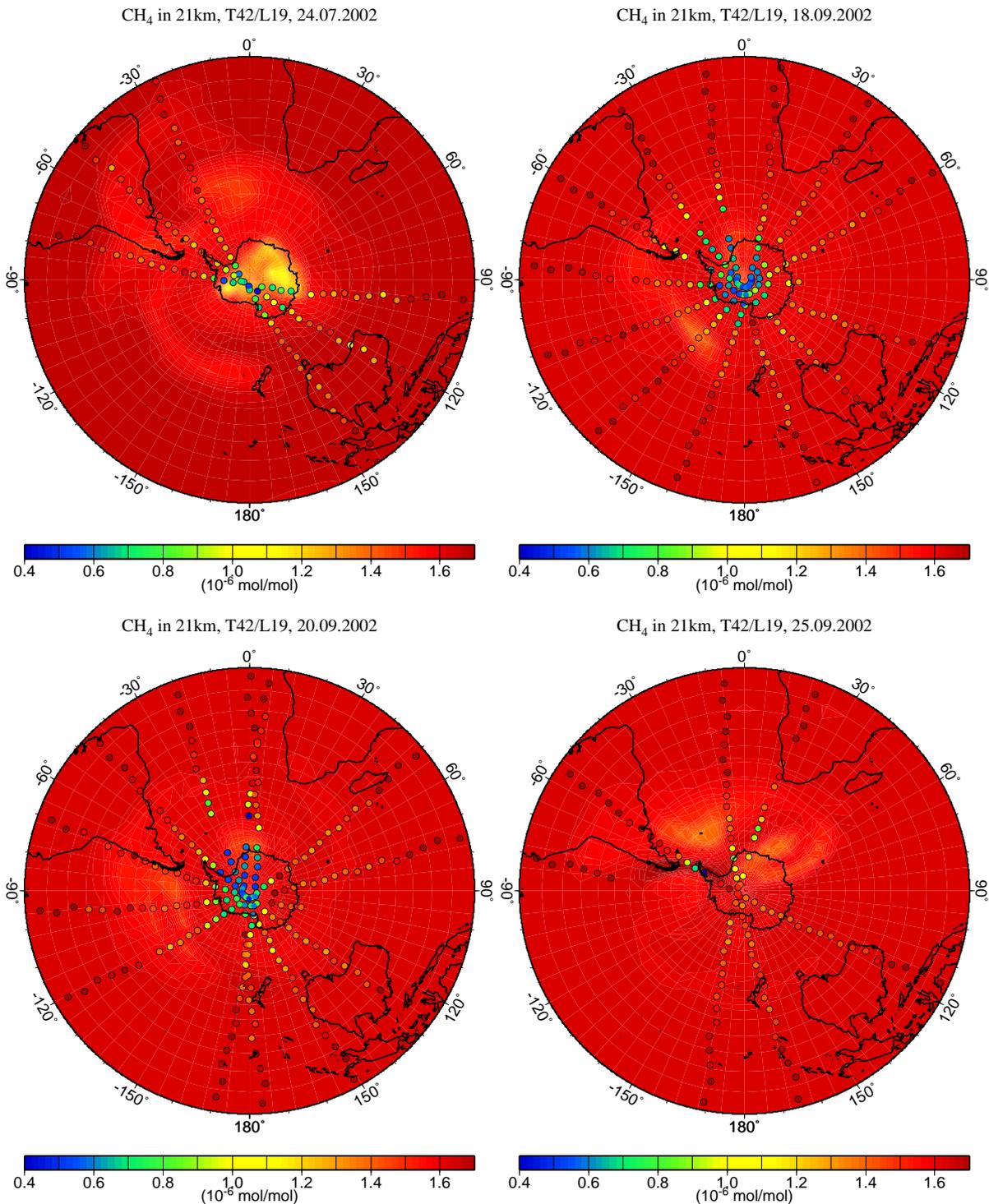


Abbildung 5.2: CH₄-Mischungsverhältnis (in $\mu\text{mol/mol}$) in 21 km Höhe, ECHAM5/NUDGE/-MECCA-Modellsimulation T42/L19. Dargestellt ist der 12 UTC Termin. Als farbige Kreise sind die nicht-synoptischen MIPAS/ENVISAT-Messungen eingezeichnet.

bis $1,4 \mu\text{mol/mol}$ signifikant zu hoch aus. Dieser Effekt verstärkt sich im weiteren Verlauf der Simulation sogar noch. Am 18. und 20.09. treten in den ECHAM-Ergebnissen, im Vergleich zum vorigen Termin, im Polarwirbel noch höhere Werte zwischen $1,4$ und $1,6 \mu\text{mol/mol}$ auf. In der Realität führt der Abwärtstransport jedoch zu einem weiteren Absinken der CH_4 -Mischungsverhältnisse, was durch die großräumig niedrigen Beobachtungswerte zwischen etwa $0,5$ und $0,8 \mu\text{mol/mol}$ erkennbar ist. Am 25.09. ist der Polarwirbel in 2 Teile geteilt, die deutlich von der Polachse entfernt liegen. Diese beiden, bereits in Abbildung 5.1 gezeigten Fragmente, sind anhand der MIPAS-Daten andeutungsweise zu erkennen. Die ECHAM-Modellsimulation zeigt diese Struktur nicht. Das Aufbrechen des Wirbels führt zu einem Einmischen methanreicher Luftmassen aus niederen Breiten in die Polarregion, was durch die sehr hohen MIPAS-Werte zwischen etwa $1,4$ und $1,6 \mu\text{mol/mol}$ belegt ist. Auch hier weist das Modellergebnis höhere Werte auf. Es scheint sich bereits hier anzudeuten, dass die ECHAM5-Simulation in der Modellversion mit 19 Schichten und in einer horizontalen Auflösung von T42 die Dynamik des antarktischen Polarwirbels nicht reproduzieren kann. Im Folgenden wird daher untersucht, inwieweit sich eine Erhöhung der Anzahl an vertikalen Modellschichten auf die Simulationsergebnisse auswirkt.

Bereits am 24.07. kann eine signifikante Verbesserung der mit der neuen 41-Schichtenversion (horizontale Modellauflösung wiederum T42) errechneten Modellergebnisse beobachtet werden (Abbildung 5.3). Die Fläche mit niedrigen CH_4 -Werten ist bereits deutlich größer als in der L19-Version, und auch die Absolutwerte innerhalb des Wirbels stimmen mit etwa $0,5$ bis $0,9 \mu\text{mol/mol}$ besser mit der Beobachtung überein. Am Rand des Polarwirbels fallen einige Punkte auf, die im Modell extrapolare (höhere) Mischungsverhältnisse aufweisen, während die Beobachtung diese Punkte aufgrund der sehr niedrigen Werte als Punkte innerhalb des Wirbels ausweist. Dies kann zum Einen in der vergleichsweise groben Horizontalauflösung begründet liegen, zum Anderen in dem zeitlichen Versatz der Messung relativ zu dem Modellergebnis. Anhand der simulierten Methanmischungsverhältnisse vom 18. und 20.09. kann ein deutlich verbessertes Transportverhalten der neuen ECHAM-Modellversion mit einer erhöhten Anzahl an vertikalen Schichten beobachtet werden. Innerhalb des Polarwirbels treten in der Simulation Werte um $0,8 \mu\text{mol/mol}$ auf, während in der L19-Version Werte um $1,5 \mu\text{mol/mol}$ simuliert wurden. Ein Vergleich mit der Beobachtung zeigt jedoch, dass auch die mit der L41-Version errechneten Methanwerte noch höher ausfallen als die MIPAS-Messungen mit etwa $0,6 \mu\text{mol/mol}$. Am 25.09. sind in den Modellergebnissen die beiden Wirbelfragmente anhand der niedrigen Mischungsverhältnisse erkennbar. Über dem Pol, also in der Region in die bereits extrapolare Luftmassen eingemischt wurden, fallen die ECHAM-Simulationsergebnisse etwas zu niedrig aus.

Das gleiche qualitative Verhalten kann auch für den weiteren passiven Spurenstoff N_2O beobachtet werden. Diese Ergebnisse werden daher hier nicht weiter vorgestellt.

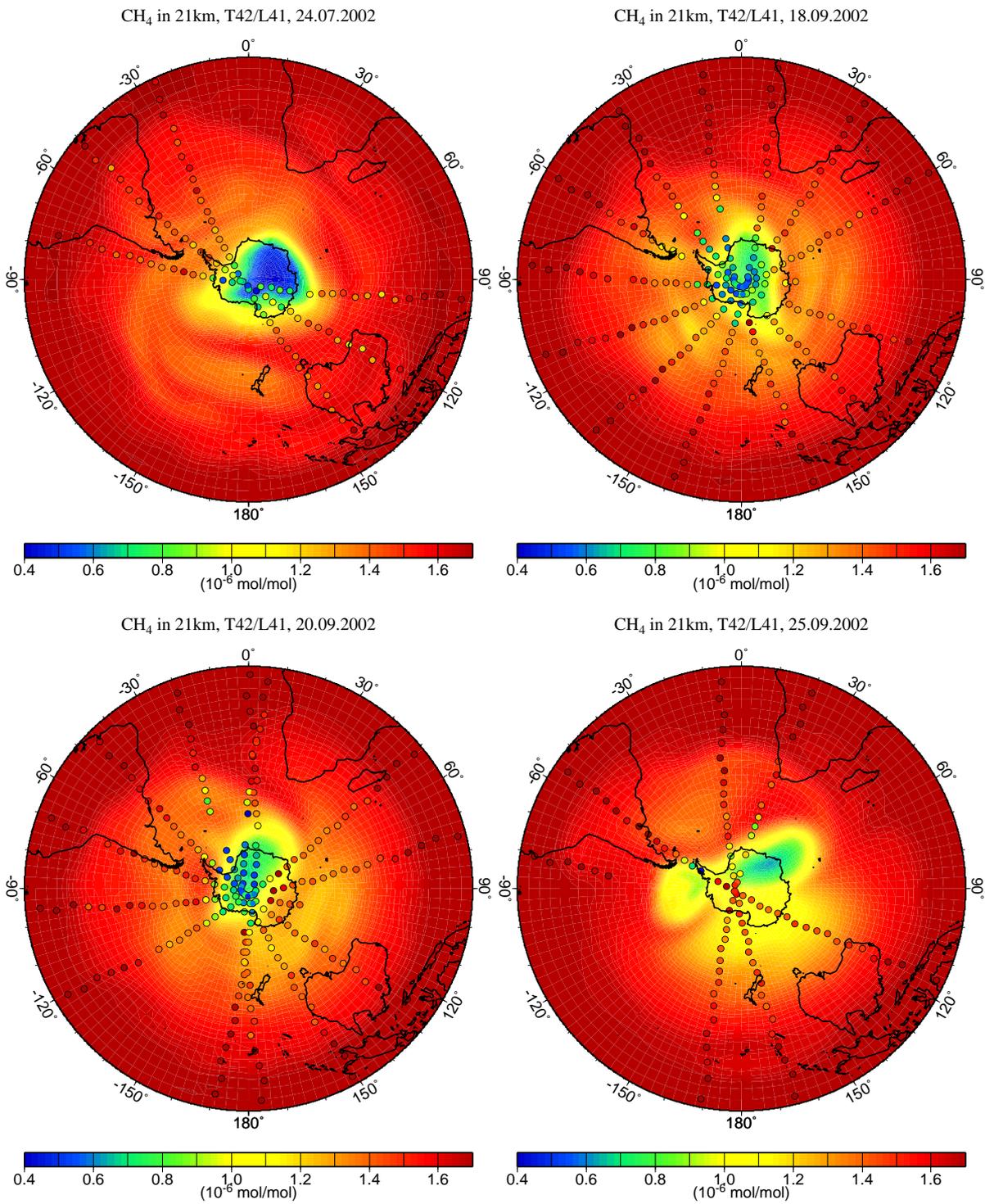


Abbildung 5.3: Wie Abbildung 5.2, jedoch in der Modellauflösung T42/L41.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass das Transportverhalten des ECHAM5-Modells im antarktischen Polarwirbel durch eine Erhöhung der Anzahl an vertikalen Schichten deutlich verbessert werden konnte. Dennoch erscheint auch die Kombination der 41-Schichtenversion und einer horizontalen Modellauflösung von T42 nicht ausreichend, um die Dynamik vollständig reproduzieren zu können.

Die oben diskutierten Ergebnisse für Methan können in Form einer Korrelation der MIPAS-Beobachtungen mit den Modellergebnissen der L19-Version bzw. der 41-Schichtenversion zusammengefasst werden (Abbildung 5.4). Bereits am 24.07. fallen die simulierten CH_4 -Mischungsverhältnisse in den polaren Breiten in dem L19-Modellauf deutlich höher aus als die Messung. Im weiteren Verlauf wird das ungenügende Transportverhalten dieser Modellversion innerhalb des Polarwirbels besonders deutlich, die gemessenen Methanmischungsverhältnisse werden um bis zu einen Faktor 3 überschätzt. Desweiteren fällt die hohe Steigung („unendlich“) einer hypothetischen Regressionsgeraden durch die Punktwolke auf. In dem hier dargestellten Höhengniveau von 21 km weist praktisch die gesamte südliche Hemisphäre ein einheitliches Methanmischungsverhältnis von etwa $1,5 \mu\text{mol/mol}$ auf. Wie anhand der in Abbildung 5.4 eingezeichneten 1:1-Geraden sofort ersichtlich ist, steht dies im klaren Widerspruch zur Beobachtung.

Die Modellergebnisse der 41-Schichtenversion sind bei allen geographischen Breiten deutlich besser mit den MIPAS-Messungen korreliert als die Werte der L19-Version. Im Verlauf der Simulation zeigt sich aber auch in der L41-Modellversion gerade in den südpolaren Breiten ein noch nicht vollständig zufriedenstellendes Transportverhalten, da die simulierten CH_4 -Mischungsverhältnisse im Vergleich zur Beobachtung noch zu hoch ausfallen.

Es ist vorstellbar, dass die Tropopausen-Transportbarriere aufgrund einer zu hohen Tropopause in der 19-Schichtenversion zu stark ausfällt, was zu einem deutlich zu schwach ausgeprägten Vertikalgradienten (hier: des CH_4 -Mischungsverhältnisses) führen würde. Wie beispielsweise auch die Modellstudien von Roeckner et al. (2004) zeigen, wird die Modelltropopause durch eine Erhöhung der Anzahl an vertikalen Schichten abgesenkt. Es ist somit zu erwarten, dass die Ergebnisse der L41-Simulation einen deutlich stärkeren vertikalen Gradienten aufweisen und in besserer Übereinstimmung mit Beobachtungen stehen als die simulierten Methanmischungsverhältnisse der 19-Schichtenversion. Deshalb sollen abschließend einige Methan-Vertikalprofile diskutiert werden. Die dazu bereitgestellten MIPAS-Daten liegen in einer vertikalen Auflösung von 1 km vor². Der Schwerpunkt des vorliegenden Kapitels liegt auf der Untersuchung im Bereich der Südpolarregion. Dennoch

²Dies ist geringer als die Änderung der Tangentenhöhe zweier benachbarter MIPAS-Messungen von etwa 3 km. Dennoch ist die Tangentenhöhe selber nicht als Vertikalkoordinate geeignet, da sie räumlich und zeitlich variabel ist. Die Wahl des vergleichsweise feinen vertikalen Gitters von 1 km erleichtert die Ableitung der Spurengasmischungsverhältnisse aus den von MIPAS gemessenen Spektren. Die technischen Details dazu finden sich in Stiller et al. (2002) und von Clarmann et al. (2003).

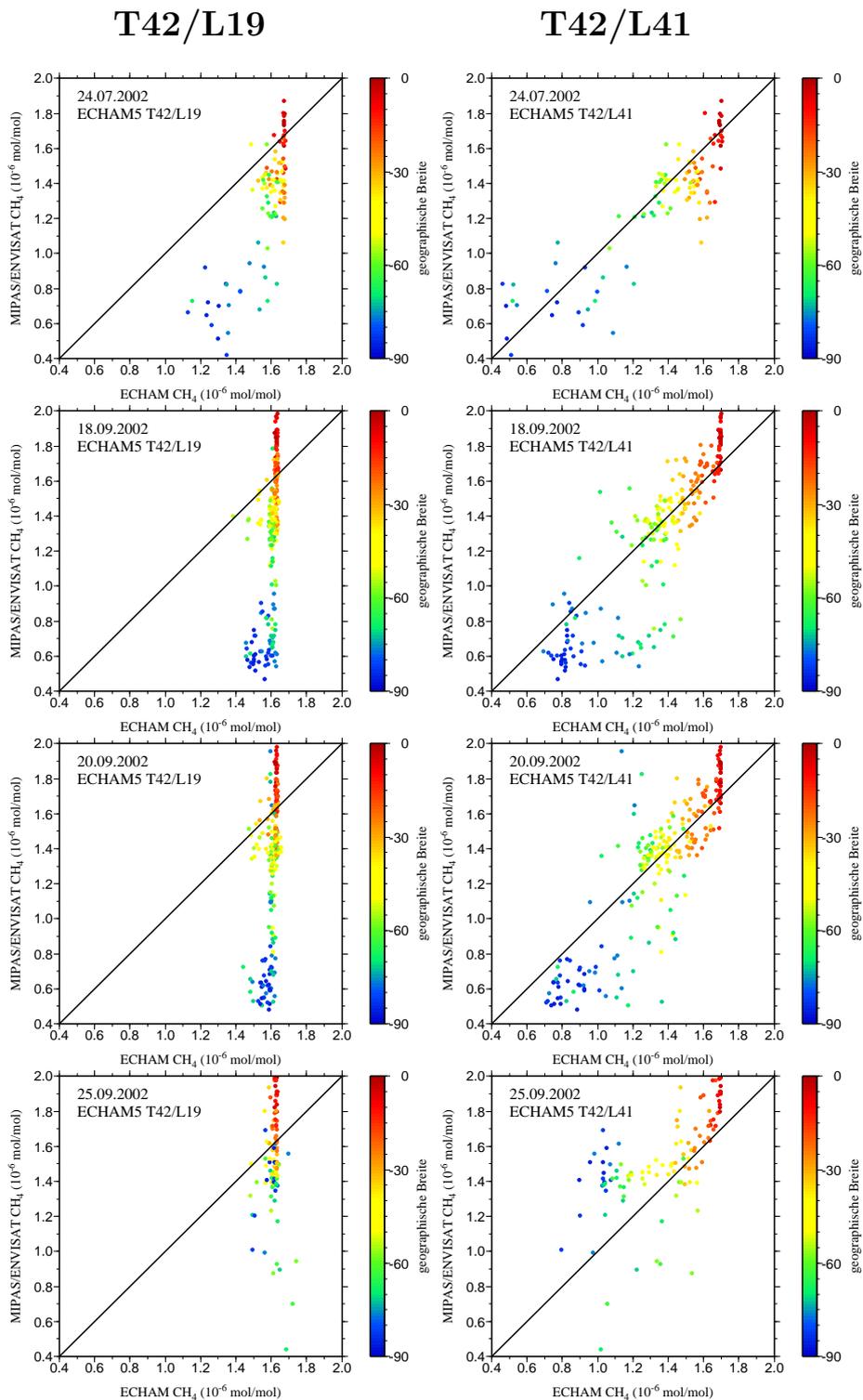


Abbildung 5.4: Regression der von MIPAS/ENVISAT gemessenen und der modellierten CH_4 -Mischungsverhältnisse (in $\mu\text{mol/mol}$) in 21 km Höhe für die Modellversion T42/L19 (linke Spalte) sowie T42/L41 (rechte Spalte). Farbkodiert ist die geographische Breite der Messung.

wird auch ein tropisches Profil präsentiert um deutlich zu machen, dass ein Großteil der Probleme des Transportverhaltens in ECHAM5 auf die polare Stratosphäre beschränkt ist.

Die MIPAS-Messungen in den Tropen vom 24.07. (Abbildung 5.5, obere Reihe, linke Hälfte) weisen nur eine geringe Änderung mit der Höhe auf. In 21 km werden Mischungsverhältnisse von rund $1,7 \mu\text{mol/mol}$ registriert, in 25 km gehen die Werte leicht auf etwa $1,6 \mu\text{mol/mol}$ zurück. Die L19-Version zeigt ein nahezu konstantes Vertikalprofil und unterschätzt somit den beobachteten leichten vertikalen Gradienten. Die 41-Schichtenversion weist hingegen, speziell oberhalb von etwa 24 km, einen erkennbaren Rückgang der Methanwerte auf.

Ein deutlich anderes Bild ergibt sich in der Nähe des Wirbelrandes bei 77°S (Abbildung 5.5, mittlere Reihe, linke Hälfte). Zunächst fällt die deutlich höhere Variabilität im Vergleich zu dem tropischen Profil auf. Auch Randall et al. (2005) fanden für diese Episode eine aufgrund von Wellenereignissen maximale Variabilität (hier: des zonal gemittelten Ozons) zwischen rund 50°S und 75°S . In einem dynamisch typischen Winter mit einem pol-zentrierten Wirbel entspricht dies dem Bereich des Wirbelrandes, wo eine erhöhte Variabilität erwartet wird. Speziell im Jahr 2002 war diese Variabilität jedoch mindestens doppelt so hoch wie z.B. 1999 (Randall et al., 2005). Allgemein ist bei allen MIPAS-Messwerten ein deutlicher Rückgang des CH_4 -Mischungsverhältnisses mit der Höhe zu beobachten. Die L19-Modellsimulation ist nicht in der Lage, dieses zu reproduzieren. Die Modellergebnisse zeigen auch bei diesen Breiten ein nur gering ausgeprägtes Vertikalprofil. In der L41-Version wird die starke Höhenabhängigkeit deutlich besser erfasst. Besonders in Höhen unterhalb von etwa 24 km werden sowohl die Variabilität als auch die Absolutwerte des Methanmischungsverhältnisses gut wiedergegeben.

Ein ähnlich ausgeprägtes Profil zeigt sich auch bei 85°S (Abbildung 5.5, untere Reihe, linke Hälfte). Hier, im Zentrum des Wirbels, weisen die MIPAS-Messungen eine deutlich geringere Variabilität auf. Die Modellergebnisse der L19-Version fallen in allen Höhengniveaus wesentlich höher aus als die Messungen. Die simulierten CH_4 -Werte aus der 41-Schichtenversion liefern eine signifikant bessere Übereinstimmung mit der Beobachtung als die Ergebnisse der L19-Version. Es sind jedoch bereits Abweichungen von den MIPAS-Beobachtungen erkennbar. Speziell im Höhenbereich um etwa 22 km können die Modellergebnisse durch die Beobachtungen bestätigt werden, in größeren und niedrigeren Höhen fallen die ECHAM-Werte allerdings zu hoch aus. Dennoch ist erkennbar, dass der beobachtete Vertikalgradient in der L41-Modellversion deutlich besser reproduziert werden kann als in der Standardversion.

Das tropische Profil vom 18.09. (Abbildung 5.5, obere Reihe, rechte Hälfte) ist gegenüber dem vom eben diskutierten Tag kaum verändert, lediglich die Mischungsverhältnisse in der untersten Stratosphäre sind im Mittel um etwa $0,2 \mu\text{mol/mol}$ höher. Am 18.09. liegen mehr Messungen vor, aber auch diese zeigen nur eine geringe Variabilität. Für die Bewertung der beiden ECHAM-Modellsimulationen gilt das für den 24.07. Beschriebe-

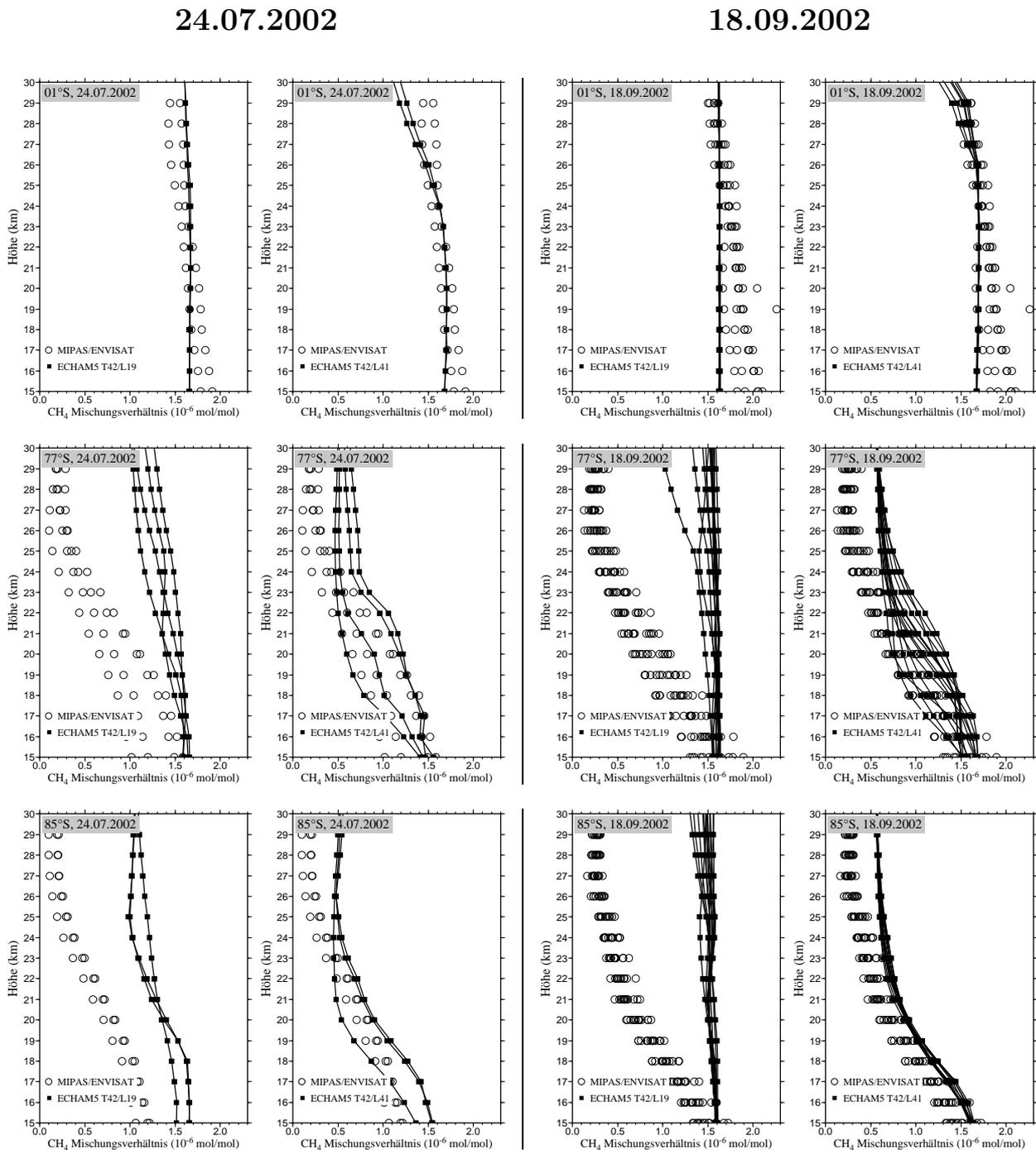


Abbildung 5.5: Vertikalprofile des CH₄-Mischungsverhältnisses (in $\mu\text{mol/mol}$) aus MIPAS/ENVISAT-Beobachtungen (offene Kreise) sowie ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellerggebnisse (durch Linien verbundene gefüllte Quadrate). Spalten 1 und 2: Simulationen T42/L19 bzw. T42/L41 für den 24.07.2002. Spalten 3 und 4 entsprechend, aber für den 18.09.2002.

ne. Ein anderes Bild ergibt sich im Bereich des Wirbelrandes (Abbildung 5.5, mittlere Reihe, rechte Hälfte). Hier zeigen die Messungen einen stark ausgeprägten Vertikalgradienten. Erneut ist die hohe Variabilität der gemessenen CH_4 -Mischungsverhältnisse zu erkennen. Die Ergebnisse der ECHAM5-L19-Version weisen erneut ein annähernd konstantes Vertikalprofil auf, die Absolutwerte betragen rund $1,6 \mu\text{mol/mol}$. Dies ist in allen Höhenniveaus oberhalb von rund 16 km deutlich zu hoch im Vergleich zur Messung. Die in der 41-Schichtenversion simulierten Mischungsverhältnisse stehen hingegen sowohl bezüglich des Betrags als auch der hohen Variabilität bis in Höhen um rund 22 km in guter Übereinstimmung mit den MIPAS-Messungen. Oberhalb davon fallen die modellierten Werte mit etwa $0,6 \mu\text{mol/mol}$ im Vergleich zur Beobachtung (im Mittel um $0,3 \mu\text{mol/mol}$) zu hoch aus.

Ähnliches gilt für das Profil bei 85°S (Abbildung 5.5, untere Reihe, rechte Hälfte). Wiederum gelingt es in der L19-Version nicht, den starken vertikalen Gradienten des CH_4 -Mischungsverhältnisses zu erfassen. Mit Hilfe der 41-Schichtenversion kann die Vertikalverteilung des Methans signifikant besser simuliert werden. Die Absolutbeträge werden leicht überschätzt, lediglich in größeren Höhen fallen die Modellergebnisse mit Werten um $0,6 \mu\text{mol/mol}$ deutlich höher aus als die Messungen von rund $0,3 \mu\text{mol/mol}$.

Zusammenfassend kann somit festgestellt werden, dass das vertikale Transportverhalten des ECHAM5-Modells im antarktischen Polarwirbel durch die Entwicklung der 41-Schichtenversion signifikant verbessert werden konnte. Dennoch sind die Absolutwerte der CH_4 - und N_2O -Mischungsverhältnisse auch in dieser neuen Modellversion höher als die von MIPAS gemessenen Werte. Im Folgenden wird deshalb untersucht, ob abgesehen von dem eben diskutierten vertikalen Transportverhalten möglicherweise der simulierte Polarwirbelrand bei der für beide Modellsimulationen verwendeten horizontalen Auflösung T42 eine zu schwache Transportbarriere zwischen polaren und extrapolaren Luftmassen darstellt. Dadurch könnten methan- oder N_2O -reiche Luftmassen horizontal in den Polarwirbel eingemischt werden. Dieser Effekt kann allgemein in numerischen Modellen beobachtet werden, in denen als vertikale Koordinate der Druck verwendet wird³. In einem Modell mit Druckkoordinaten findet der normale horizontale isentrope Transport in der Stratosphäre teilweise durch verschiedene Druckschichten statt. Dies kann künstliche (numerisch bedingte) Mischungsvorgänge zwischen den Schichten verursachen, besonders bei geringen Modellauflösungen (Chipperfield et al., 1997). Dieses vertikale Mischen kann auch Transporte durch den Wirbelrand bewirken, da der Wirbel, besonders während der in diesem Kapitel untersuchten Episode, mit der Höhe geneigt ist (z.B. Randall et al., 2005; Hoppel et al., 2005). Dies kann den Effekt der abnehmenden Mischungsverhältnisse dieser Spurengase aufgrund des Abwärtstransportes innerhalb des Wirbels reduzieren oder sogar umkehren.

³Im Gegensatz zu Isentropen-Modellen, bei denen die potentielle Temperatur als Vertikalkoordinate dient.

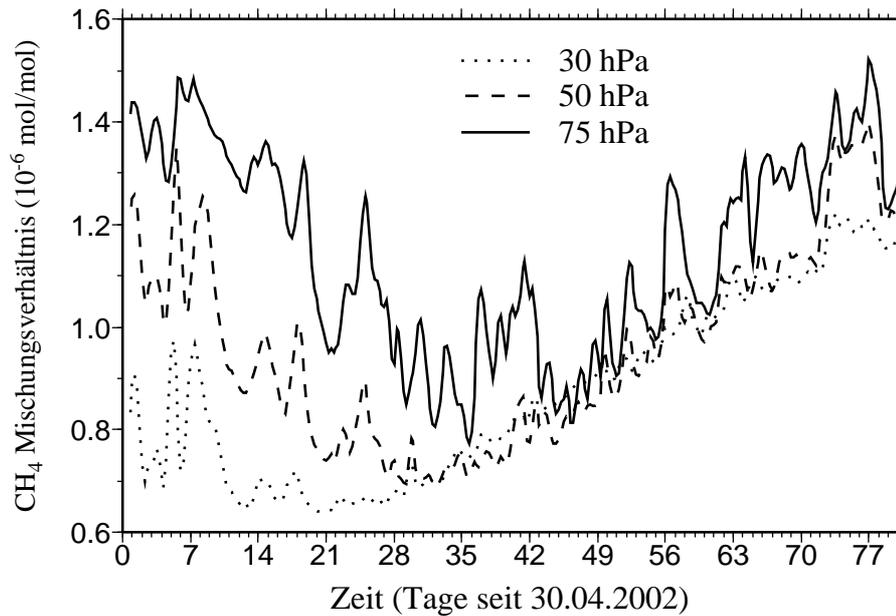


Abbildung 5.6: Zeitreihen des zonal gemittelten CH_4 -Mischungsverhältnisses (in $\mu\text{mol/mol}$) bei 85°S der ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation (T42/L41) in 30, 50 und 75 hPa. Dargestellt sind die ersten 80 simulierten Tage.

5.2.2 Horizontale Einmischvorgänge in den Polarwirbel

Allgemein zeigen Beobachtungen innerhalb des Südpolarwirbels (siehe z.B. die MIPAS-Messungen in Abbildung 5.2) eine Abnahme der Methankonzentrationen während des Südwinters und -frühlings, in der hier untersuchten Episode bis zum Aufbrechen des Wirbels um den 25. September. Zeitreihen des zonal gemittelten, vom ECHAM-Modellsystem simulierten CH_4 -Mischungsverhältnisses im Inneren des Wirbels in verschiedenen Höhenbereichen zeigen jedoch, dass die Mischungsverhältnisse nur im ersten Simulationsmonat abnehmen und danach wieder ansteigen (Abbildung 5.6). In größeren Höhen setzt dieser Effekt noch etwas früher ein. Während der gesamten Simulationsdauer findet sich eine Vielzahl an Spitzen, bei denen die zonal gemittelten Werte sprunghaft ansteigen. Diese starken Schwankungen deuten darauf hin, dass es sich hierbei um methanreiche extrapolare Luftmassen handelt, die von Außen in den Polarwirbel eingemischt werden.

Dies wird durch den zeitlichen Verlauf der simulierten horizontalen Methanverteilung belegt (Abbildung 5.7). Wie eben beschrieben kann im Verlauf dieser kurzen Episode ein starker Anstieg des zonal gemittelten CH_4 -Mischungsverhältnisses (hier: in 75 hPa) beobachtet werden (siehe Abbildung 5.6). Der Grund hierfür ist eine ausgeprägte „Zunge“ mit hohen Methanwerten zwischen etwa 40° und 160° geographischer Länge. Deren östliche Spitze dringt in den folgenden Tagen südwärts vor und führt bereits um den 05.06. zu einem starken Einmischen dieser Luftmassen in den Polarwirbel. Um den 06.06. ist beispielsweise erkennbar, dass die „Zunge“ praktisch vollständig in den Polarwirbel eingemischt wird. Dieses Phänomen kann regelmäßig während der gesamten Simulation

beobachtet werden⁴. Das ist ein Zeichen dafür, dass der Wirbelrand in der hier verwendeten Horizontalauflösung T42, in Verbindung mit dem Transportalgorithmus von Lin und Rood (1996), keine wirksame Barriere zwischen polaren und extrapolaren Luftmassen ist. Es kann vermutet werden, dass aufgrund der besonderen Dynamik des Südwinters und -frühlings 2002 die Zonalwinde deutlich abgeschwächt sind und damit ein Einmischen von Luftmassen in den Wirbel erleichtert wird. Im anschließenden Abschnitt (5.2.3) wird jedoch gezeigt, dass dieses Phänomen auch während dynamisch wenig gestörten Episoden beobachtet werden kann.

Die oben gefundenen Ergebnisse sind abschließend in Form eines Zonalschnittes der von ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierten CH_4 -Mischungsverhältnisse dargestellt (Abbildung 5.8), der noch einmal die Unsicherheiten insbesondere des horizontalen Transportverhaltens des Modellsystems in der polaren Stratosphäre erläutern soll. Es ist deutlich zu erkennen, dass bis etwa Ende Mai (ersten beiden Teilbilder in Abbildung 5.8) die Mischungsverhältnisse in den südpolaren Breiten kontinuierlich abnehmen. In der untersten Stratosphäre ist dieses Phänomen noch bis etwa Ende Juni bzw. Anfang Juli zu beobachten (hier exemplarisch dargestellt in dem mittleren Teilbild von Abbildung 5.8). In größeren Höhen ist jedoch bereits zu diesem Zeitpunkt erkennbar, dass die ECHAM5-Ergebnisse keinen ausgeprägten meridionalen Gradienten aufweisen, wie er beispielsweise in den MIPAS-Daten (siehe Abbildung 5.2) auftritt. Das bedeutet, dass die Transportbarriere zwischen extrapolaren und polaren Luftmassen im Modell zu gering ausgeprägt ist. Extrapolare Luftmassen mit hohen Methanmischungsverhältnissen können dadurch durch den Wirbelrand in den Polarwirbel eingemischt werden. Besonders deutlich wird dies Anfang August (untere beiden Teilbilder von Abbildung 5.8), hier kann bereits ein nahezu vollständiges „Auffüllen“ des Wirbels durch extrapolare Luftmassen (im zonalen Mittel) beobachtet werden. Die hier simulierten Einmischvorgänge sind in dieser starken Form nicht realistisch. Zwar konnten Randall et al. (2005) anhand von SAGE-III (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) Ozonmessungen zeigen, dass sich der Wirbelrand von Anfang August bis Ende September allmählich polwärts bewegt und bereits Anfang September ein starkes Einmischen von (hier: ozonreichen) Luftmassen aus niederen Breiten bis über den Pol zu beobachten war. Allerdings trat dieser Effekt in großen Höhen um 30 km und besonders stark um 38 km auf. In geringeren Höhen um 20 km wurde der Wirbel als intakt angesehen, hier wurde kein signifikantes Einmischen registriert. Dies steht auch in Übereinstimmung mit allgemeinen Beobachtungen: zwar ist für passive Spurenstoffe wie Methan der dominierende Transportweg in die Stratosphäre mittlerer und hoher Breiten ein erhöhter polwärts gerichteter Transport und Einmischen von extrapolaren Luftmassen in den Wirbel. Eine Ausnahme bildet hierbei jedoch der Wirbel in der unteren Stratosphäre, der weitgehend isoliert bleibt (z.B. Manney et al., 2005).

⁴Ein interessantes Detail findet sich in Abbildung 5.7 im Bereich zwischen etwa 0° und -40° Länge. Während der 3 dargestellten Tage ist dieser Bereich nicht von dem oben diskutierten Einmischen betroffen. In dieser Region nehmen die Methanmischungsverhältnisse sogar kontinuierlich ab.

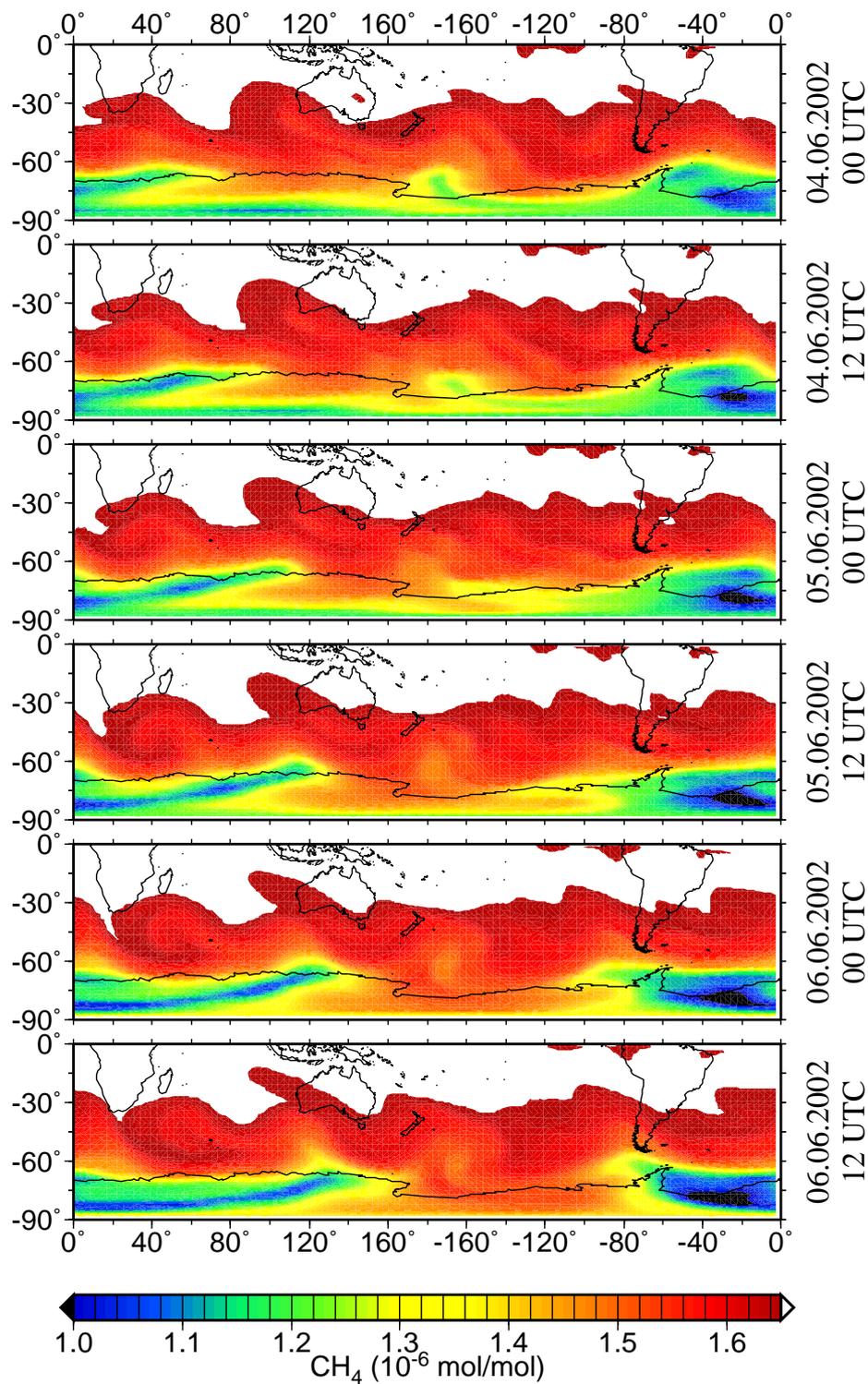


Abbildung 5.7: Zeitliche Entwicklung des CH₄-Mischungsverhältnisses (in $\mu\text{mol/mol}$) in 75 hPa in der ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation (T42/L41). Werte größer als $1,65 \mu\text{mol/mol}$ sind nicht dargestellt. Der erste Zeitpunkt entspricht dem 34. Modelltag in Abbildung 5.6.

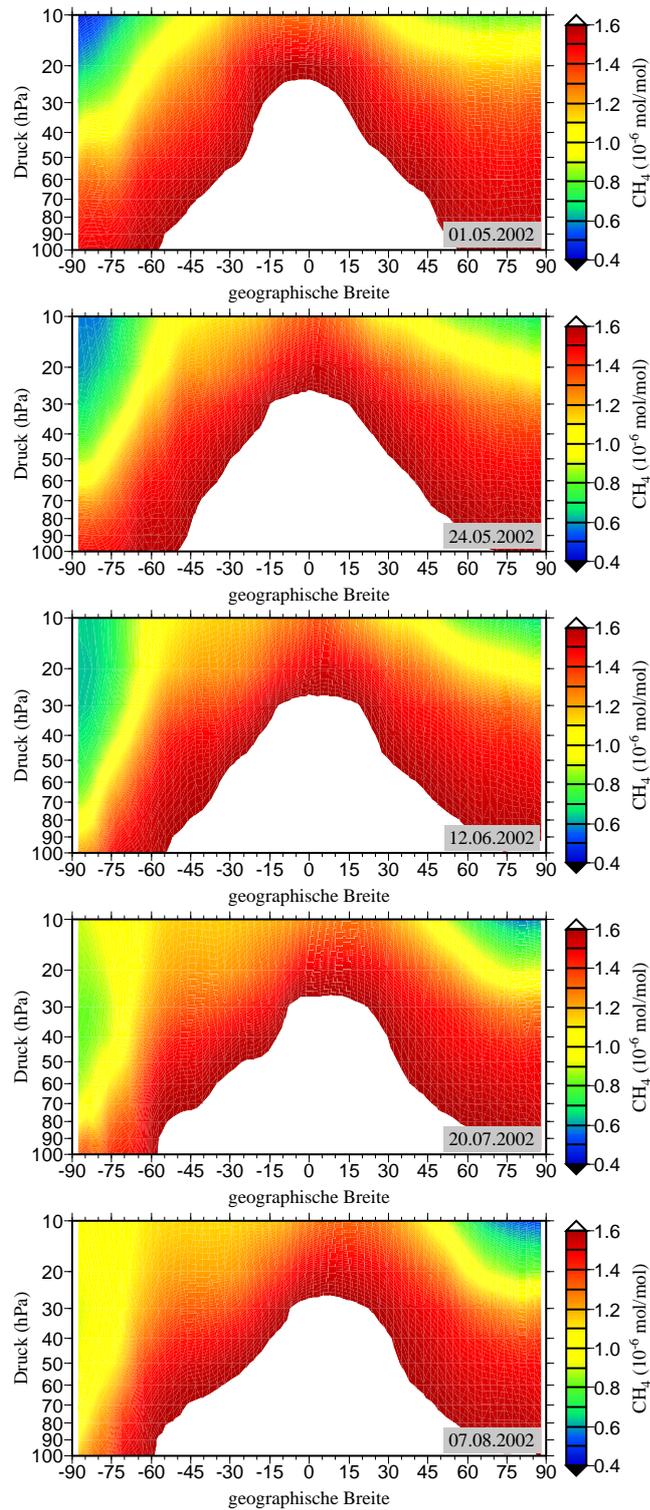


Abbildung 5.8: Zeitliche Entwicklung des zonal gemittelten CH_4 -Mischungsverhältnisses (in $\mu\text{mol/mol}$) in der ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation (T42/L41). Werte größer als $1,6 \mu\text{mol/mol}$ sind nicht dargestellt.

In dem vorliegenden Abschnitt konnte somit gezeigt werden, dass durch die Entwicklung der 41-Schichtenversion von ECHAM5 ein deutlich realistischerer Vertikaltransport im antarktischen Polarwirbel im Vergleich zur Standardmodellversion simuliert werden konnte. Dennoch wurde in beiden Simulationen ein zu starkes Einmischen von extrapolarer Luftmassen in den Wirbel beobachtet. Insbesondere fällt in der hier verwendeten horizontalen Modellauflösung T42 der beobachtete meridionale Gradient (hier: des CH_4 -Mischungsverhältnisses) zu niedrig aus. Somit ist die Transportbarriere, die das Einmischen von extrapolarer Luftmassen in den Wirbel unterdrückt, nicht stark genug ausgeprägt. Daher finden sich im Inneren des Wirbels trotz des wesentlich besseren vertikalen Transportverhaltens der neuen L41-Version noch etwas zu hohe Methanmischungsverhältnisse. Mögliche Gründe für die zu starken Einmischvorgänge werden im folgenden Abschnitt untersucht. Am Ende dieses Kapitels wird in Abschnitt 5.4 diskutiert, inwieweit zusätzlich zu der im Rahmen der vorliegenden Arbeit erreichten Verbesserung des vertikalen auch eine Verbesserung des horizontalen Transportverhaltens, durch Verwendung eines rein lagrangeschen Transportschemas, erreicht werden könnte.

5.2.3 Mögliche Gründe für zu starke Einmischvorgänge in den Polarwirbel

Es stellt sich die Frage, warum die in den vorigen Abschnitten vorgestellten Modellsimulationen zu dem beschriebenen zu starken Einmischen von extrapolarer Luftmassen in den Polarwirbel führen. Es wäre naheliegend zu vermuten, dass dies in der hier untersuchten Episode begründet liegt. Das letztendliche Aufbrechen des Wirbels um den 25.09. ist mit hoher Wahrscheinlichkeit das Ergebnis einer Reihe von früheren kleineren Störungen, denen der Wirbel unterlag. Bereits Mitte September war der stratosphärische Polarwirbel durch 3 schwache Stratosphärenenerwärmungen, verbunden mit einer erhöhten Wellenausbreitungsaktivität aus der Troposphäre, ungewöhnlich geschwächt (Nishii und Nakamura, 2004). Allen et al. (2003) und Manney et al. (2005) wiesen bereits ab Mai eine Serie von Minor Warmings nach. Die Zonalwinde waren also bereits zu einem früheren Zeitpunkt als dem 25.09. deutlich abgeschwächt, was als entscheidendes Vorkriterium zum eigentlichen Aufbrechen angesehen wird (Krüger et al., 2005). Das ist jedoch nicht der Grund für das zu starke Einmischen durch den Wirbelrand in der ECHAM-Simulation. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde eine Sensitivitätsstudie mit der freilaufenden Modellversion (ebenfalls T42/L41), also ohne externen Antrieb durch das NUDGE-Modul durchgeführt. Hierbei wurden Randbedingungen (also insbesondere Meeresoberflächentemperaturen und Meereisbedeckung) für das Jahr 2000 verwendet, da in diesem Jahr ein dynamisch „typischer“ antarktischer Polarwirbel beobachtet wurde (z.B. Feng et al., 2005). Dennoch lieferte auch diese Simulation die gleichen hohen CH_4 - und N_2O -Mischungsverhältnisse innerhalb des antarktischen Polarwirbels. Ebenso wurde testweise eine Simulation durchgeführt, wiederum unter Verwendung des NUDGE-Moduls, jedoch mit dem in der Vor-

gängerversion ECHAM4 standardmäßig verwendeten semi-lagrangischen Transportalgorithmus. Dies führte zu einer Verschlechterung der Ergebnisse, besonders innerhalb des Polarwirbels. Bereits Steil et al. (2003) konnten zeigen, dass bei Verwendung des semi-lagrangischen Transports in ECHAM4 sowohl der Gradient am Wirbelrand als auch der allgemeine Abwärtstransport im Wirbel zu schwach ausfallen. Dies macht deutlich, dass schon der Umstieg auf die neue Modellgeneration ECHAM5 aufgrund des implementierten verbesserten Transportschemas von Lin und Rood (1996) zu einer Verbesserung der Modellergebnisse führt.

Es deutet sehr viel darauf hin, dass neben den zu starken Einmischvorgängen in den Wirbel die Simulation eines „instabilen“ Polarwirbels (d.h. ein zu frühes Aufbrechen) ein generelles Problem in der im Rahmen der vorliegenden Arbeit verwendeten ECHAM-Version 5.2.02a ist. Dieses Problem ist auch nicht auf die Modellversion, deren oberste Schicht um 10 (bzw. 5) hPa zentriert ist, beschränkt, sondern tritt auch in der so genannten Mittelatmosphären-Version⁵ von ECHAM5 auf (C. Brühl, persönliche Mitteilung). Beispielsweise konnten van Aalst et al. (2005) durch einen Vergleich mit HALOE-Messungen (Halogen Occultation Experiment) zeigen, dass die CH₄-Mischungsverhältnisse innerhalb des Polarwirbels auch in der MA-ECHAM5-Version generell, besonders unterhalb etwa 30 hPa überschätzt werden. Die Tropopausen-Transportbarriere scheint im Modell zu stark ausgeprägt zu sein. Die Modelltropopause liegt höher als beobachtet und der vertikale CH₄-Gradient ist bis rund 40 hPa signifikant zu schwach. Auch in der Vorgängerversion MA-ECHAM4 zeigte ein Vergleich mit HALOE-Messungen signifikant zu hohe CH₄-Werte im (hier: arktischen) Polarwirbel, besonders in der mittleren Stratosphäre (van Aalst et al., 2004). Es wurde vermutet, dass auch hier ein starkes Einmischen extrapolarer Luftmassen in den Wirbel stattgefunden hat. Durch Verwendung der MA-ECHAM5-Version mit einer horizontalen Auflösung von T63 konnte Buchholz (2005) ein deutlich geringeres Einmischen durch den Wirbelrand simulieren als dies die T42-Studien im Rahmen der vorliegenden Arbeit ermöglichen. Unabhängig davon konnte aber auch hier Anfang Oktober ein instabiles Verhalten, d.h. erste Anzeichen für ein Aufbrechen, des simulierten Wirbels beobachtet werden. Die Studien von Buchholz (2005) legen den Schluss nahe, dass die in dem vorliegenden Kapitel diskutierten Schwierigkeiten teilweise durch Verwendung einer höheren horizontalen Modellauflösung von T63 reduziert werden können.

Allerdings deutet der im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführte Vergleich zwischen der L19- und L41-Modellversion mit MIPAS/ENVISAT-Daten stark darauf hin, dass unbedingt die Anzahl der Schichten im Modell erhöht werden muss. Wie wichtig eine genügend hohe Anzahl an vertikalen Modellschichten ist zeigt auch die Tatsache, dass auch die 39 Schichten der MA-ECHAM5-Version noch keinen ausreichend realistischen Vertikaltransport im antarktischen Polarwirbel garantieren (Buchholz, 2005; O. Kirner, persönliche Mitteilung). Dies wird durch eine Reihe an Modellstudien gestützt die zeigen,

⁵ „MA-ECHAM5“, die oberste der 39 Modellschichten ist hier um 0,01 hPa zentriert.

dass alleine durch eine Erhöhung der horizontalen Modellauflösung keine automatisch bessere Übereinstimmung der Spurengasverteilung mit Beobachtungen erreicht wird. Beispielsweise konnten Plumb et al. (2002) anhand von Modellsimulationen des MATCH Chemietransportmodells zeigen, dass auch eine Verdopplung der standardmäßig verwendeten Horizontalauflösung von $2,8^\circ$ keine signifikant besseren Ergebnisse der N_2O -Verteilung im unteren Polarwirbel brachte. Auch in dem Tracermodell TM5 führte eine Erhöhung der horizontalen Auflösung von $3^\circ \times 2^\circ$ auf $1^\circ \times 1^\circ$ zu keiner signifikanten Erhöhung der Korrelation zwischen Modellergebnis und HALOE-Beobachtung (van den Broek et al., 2003). Insbesondere konnte auch hier der durch die HALOE-Messungen belegte langsame Anstieg des vertikalen CH_4 -Gradienten mit der Zeit nicht erfasst werden.

Da alleine das Anpassen der Strahlungsbilanz, die die Entwicklung einer T63/L41-Modellversion erfordern würde, einen erheblichen Bedarf an Rechenzeit erfordert (siehe auch Abschnitt 2.2), kann eine solche Version im Rahmen dieser Arbeit nicht erstellt werden.

5.3 Chemie der polaren Stratosphäre in der ECHAM5/MECCA-Simulation

Eine wichtige Voraussetzung für die realistische Simulation von chemischen Reaktionsraten ist die Modellierung der richtigen Temperaturverhältnisse. Aus diesem Grund wird, wie in Abschnitt 2.3.1 beschrieben, die Temperatur in den hier durchgeführten Modellstudien gegen die entsprechenden ECMWF-Analysen relaxiert. Relaxation bedeutet aber insbesondere, dass die Temperaturen nicht fest vorgeschrieben werden und somit im Detail von den ECMWF-Daten abweichen können. Hinzu kommt die Tatsache, dass es sich bei den ECMWF-Temperaturen nicht direkt um Beobachtungen, sondern um Modellanalysen handelt, die ebenfalls im Detail von den realen Temperaturen abweichen können (z.B. Sohn, 1994; Dethof et al., 2004; Gobiet et al., 2005). Aus diesem Grund wird nun zunächst untersucht, inwieweit die vom ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystem simulierten Temperaturen in Übereinstimmung mit den von MIPAS gemessenen Temperaturen⁶ während der in diesem Kapitel untersuchten Episode stehen. Insbesondere muss in den polaren Breiten darauf geachtet werden, dass der Schwellwert von etwa 195K (bei stratosphärisch „typischen“ Wasserdampf- und HNO_3 -Mischungsverhältnissen), unterhalb dessen die Bildung der für die Ozonchemie entscheidenden polaren Stratosphärenwolken einsetzt, im Modell den Beobachtungen gemäß oft genug unterschritten wird.

5.3.1 Die Temperaturverteilung in der ECHAM5-Simulation

Die gute Übereinstimmung des modellierten Temperaturfeldes mit den MIPAS-Messungen (hier: in 21 km) ist sowohl qualitativ (Abbildung 5.9) als auch quantitativ (Abbildung 5.10)

⁶Der Gesamtfehler der MIPAS-Temperaturen, also inklusive Rauschen des Messgerätes und Fehler beim Retrieval, wird in 21 km Höhe mit 0,6K angegeben, siehe von Clarmann et al., 2003.

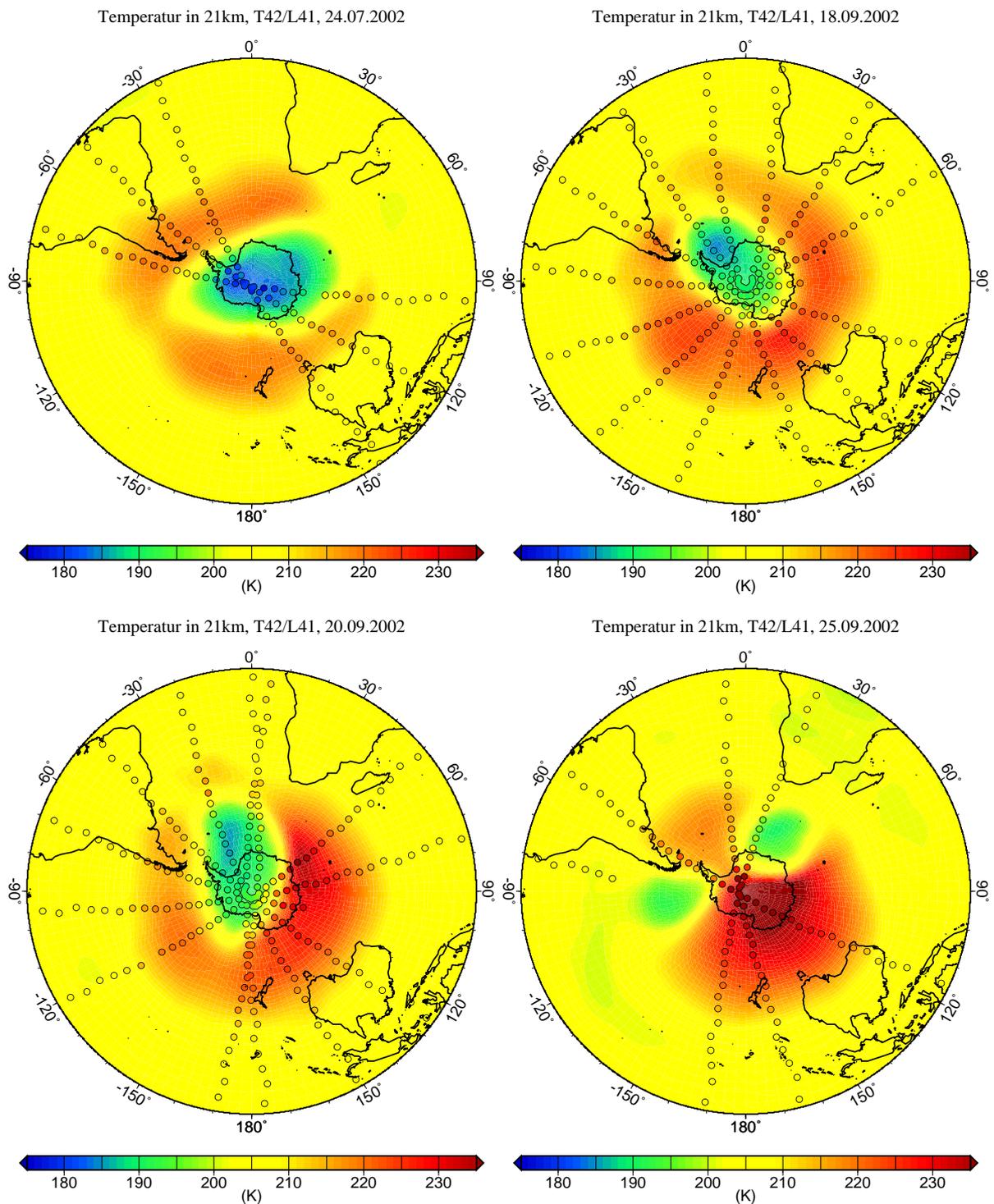


Abbildung 5.9: Temperatur (in K) in 21 km Höhe, ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation T42/L41. Dargestellt ist der 12 UTC Termin. Als farbige Kreise sind die nicht-synoptischen MIPAS/ENVISAT-Messungen eingezeichnet.

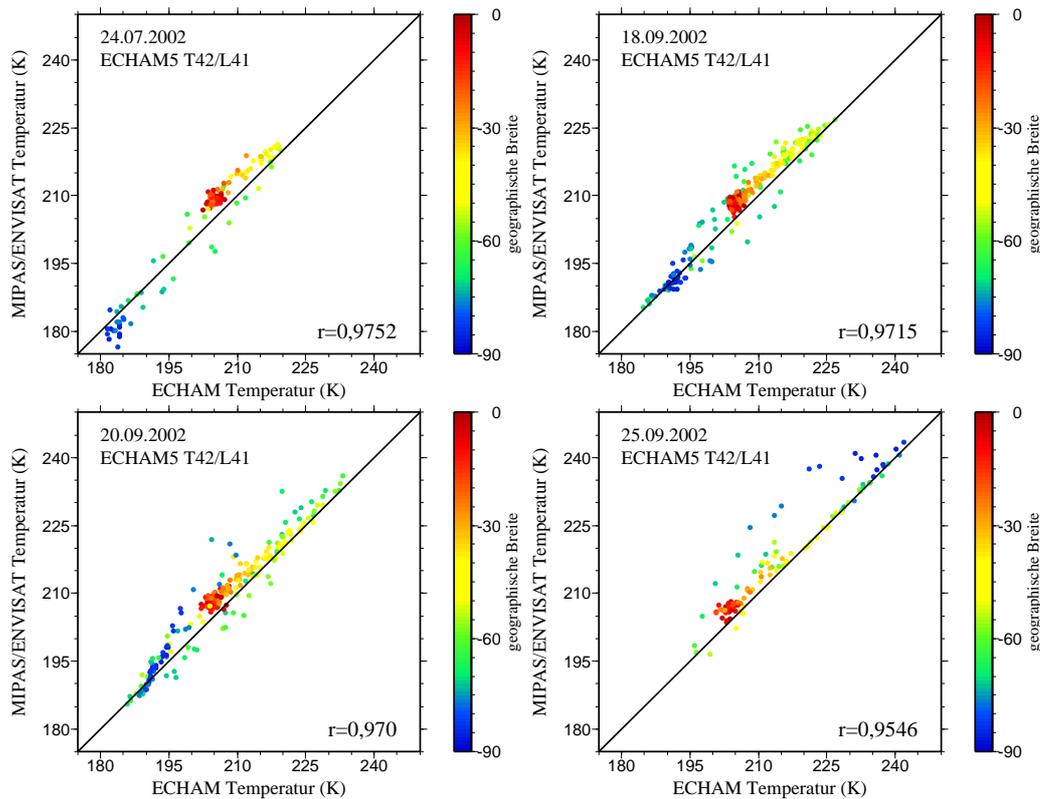


Abbildung 5.10: Regression der von MIPAS/ENVISAT gemessenen und der modellierten Temperatur (in K) für die Modellversion T42/L41 in 21 km Höhe. Zusätzlich sind die jeweiligen Werte des Korrelationskoeffizienten (r) angegeben. Farbkodiert ist die geographische Breite der Messung.

zu erkennen. Über die gesamte südliche Hemisphäre sind bis zum Aufbrechen des Wirbels um den 25.09. sehr hohe Werte des Korrelationskoeffizienten r um 0,97 zu erkennen. Die kontinuierliche Abkühlung der Luftmassen innerhalb des Polarwirbels kann sehr gut reproduziert werden. Hier liegen die Abweichungen zwischen Modellergebnis und Messung in der Regel betragsmäßig niedriger als 2K. Insbesondere sind die Temperaturen im Modell während der hier simulierten Episode bis etwa Mitte September niedrig genug, um die Bildung von polaren Stratosphärenwolken zu ermöglichen. Nach dem 16. September wird auch von MIPAS keine PSC-Aktivität mehr registriert (Feng et al., 2005). In den polaren Breiten sind vereinzelt Punkte zu sehen, bei denen die simulierten Temperaturen bis zu 8K niedriger ausfallen als die Beobachtung. Hierbei handelt es sich gerade um Punkte im Bereich des Wirbelrandes (vgl. Abbildung 5.9). Wie bereits angesprochen kann diese „Verschiebung“ des simulierten Wirbelrandes auf die vergleichsweise niedrige Horizontalaufösung zurückgeführt werden. Diese Abweichungen treten in einem Temperaturbereich um 205–210K auf (siehe Abbildung 5.10), der deutlich oberhalb des Schwellwertes für die PSC-Bildung liegt. Letztlich sind während der plötzlichen südpolaren Stratosphärenenerwärmung um den 25.09. einige wenige Punkte zu erkennen, an denen die Tem-

peraturen im Modellsystem um mehr als 8K zu niedrig ausfallen. Hier handelt es sich um Gebiete in direkter Umgebung der durch die Stratosphärenenerwärmung erwärmten Region (vgl. Abbildung 5.9). Dieser Effekt kann nun teilweise auf die nicht instantan wirkende Relaxation zurückgeführt werden, zum Anderen wieder auf die vergleichsweise niedrige horizontale Modellauflösung.

5.3.2 Die Ozonverteilung im Modell und den MIPAS-Daten

In den vorigen Abschnitten wurde erläutert, dass die Simulation eines realistischen Transportverhaltens eine wichtige Voraussetzung zur Simulation von chemischen Vorgängen ist. Es konnte deutlich gezeigt werden, dass ein realistischeres Transportverhalten in der polaren Stratosphäre im neuen ECHAM5-Modellsystem erst durch Entwicklung der vertikal höher aufgelösten 41-Schichtenversion erreicht wird. Aus diesem Grund werden im Folgenden hauptsächlich die Modellergebnisse der neuen L41-Version besprochen. Der Vergleich der modellierten und der gemessenen Mischungsverhältnisse der passiven Spurenstoffe CH_4 und N_2O hat aber gezeigt, dass auch die Verteilungen in der 41-Schichtenversion noch nicht vollständig mit den Beobachtungen übereinstimmen. Dies kann zu Unsicherheiten in der simulierten Ozonverteilung führen. Zum Einen können zu wenig Luftmassen mit für den Ozonabbau erforderlichen hohen Mischungsverhältnissen an Chlorverbindungen aus der mittleren Stratosphäre nach unten transportiert werden. Weiterhin könnten ozonreiche Luftmassen aus niederen Breiten in den Wirbel eingemischt werden und so den chemisch bedingten Ozonabbau überlagern.

Die simulierten Ozonwerte innerhalb des Wirbels sinken bis zu dessen Aufbrechen von etwa 4,1 auf rund 2,5 bis 3,5 $\mu\text{mol/mol}$ und stellenweise weniger ab (Abbildung 5.11). Allerdings zeigt der Vergleich mit den MIPAS-Messungen, dass auch diese Werte noch zu hoch ausfallen. Bis zum Aufbrechen des Wirbels werden sehr niedrige O_3 -Mischungsverhältnisse um 1 $\mu\text{mol/mol}$ gemessen⁷. Dies wird besonders in Form einer Regression der simulierten und gemessenen Werte deutlich (Abbildung 5.12). Wie bei den passiven Spurengasen CH_4 und N_2O findet sich auch beim Ozon durch Verwendung der 41-Schichtenversion (rechte Hälfte von Abbildung 5.12) eine gute bis sehr gute Korrelation in niederen und mittleren Breiten. Die Simulationsergebnisse der Standardmodellversion (linke Hälfte von Abbildung 5.12) werden hier nicht weiter diskutiert.

In den südpolaren Breiten sind die modellierten Ozonmischungsverhältnisse signifikant höher als die beobachteten Werte. Diese Aussage wird auch durch die aus den MIPAS-Daten abgeleiteten Vertikalprofile für niedrige, mittlere und hohe geographischen Breiten bestätigt (Abbildung 5.13). Ohne die einzelnen Profile im Detail zu beschreiben, stehen insbesondere die ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellergebnisse der neuen 41-Schichtenversion mit Ausnahme der Punkte innerhalb des Polarwirbels in allen Höhen in

⁷Der absolute Fehler dieser Messungen liegt hier zwischen 0,1 und 0,2 $\mu\text{mol/mol}$, G. Stiller, persönliche Mitteilung.

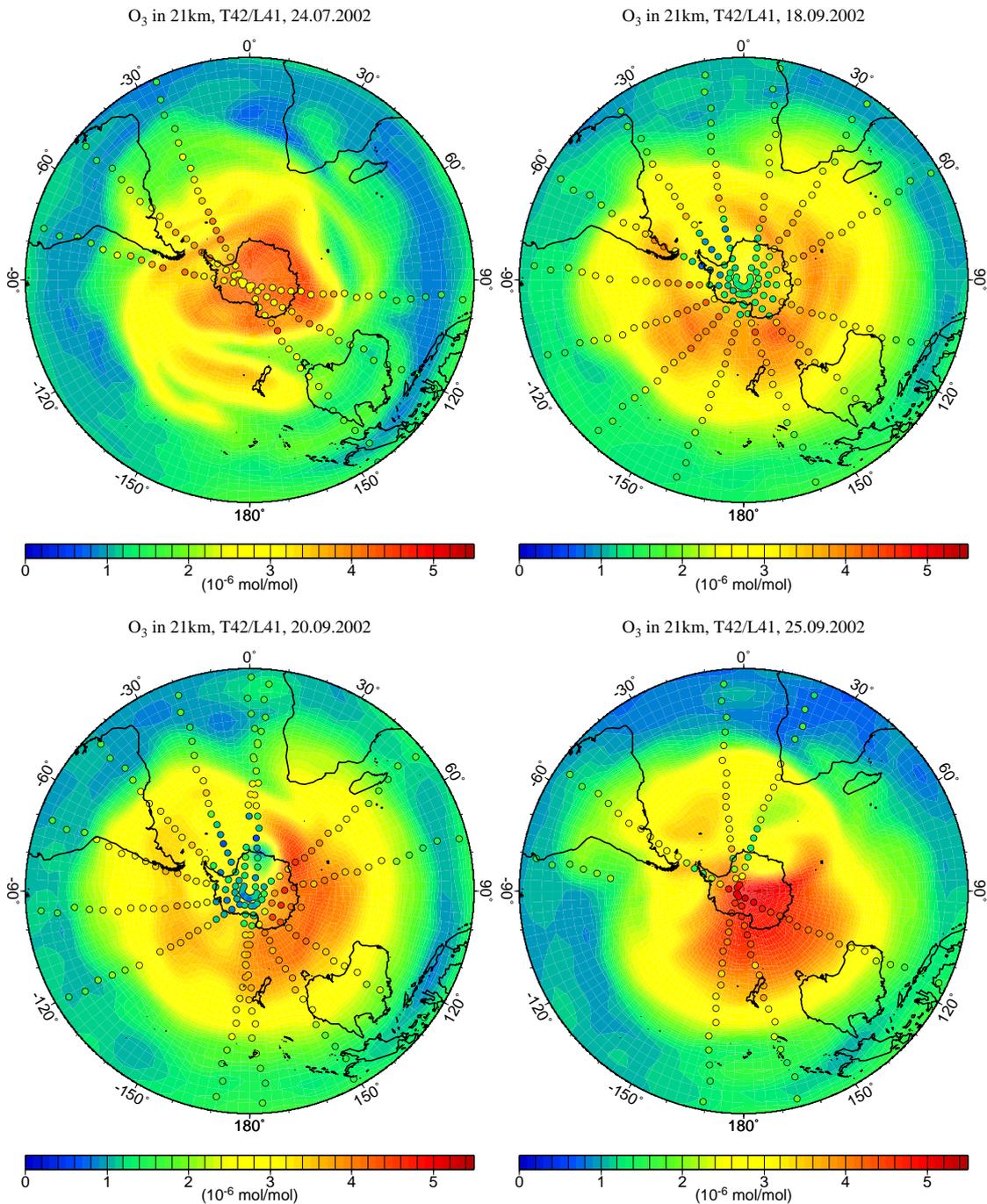


Abbildung 5.11: Wie Abbildung 5.9, jedoch für das O₃-Mischungsverhältnis (in $\mu\text{mol/mol}$).

guter bis sehr guter Übereinstimmung mit der Beobachtung. Die deutliche Verbesserung der Simulationsergebnisse durch die Entwicklung der L41-Modellversion ist eindeutig anhand der Profile erkennbar. Lediglich in polaren Breiten können die niedrigen Ozonwerte in der unteren Stratosphäre nicht von der Simulation reproduziert werden. Somit stellt sich die Frage, ob in der durchgeführten ECHAM-Simulation überhaupt ein signifikanter chemischer Ozonabbau stattgefunden hat, oder ob der erkennbare Rückgang

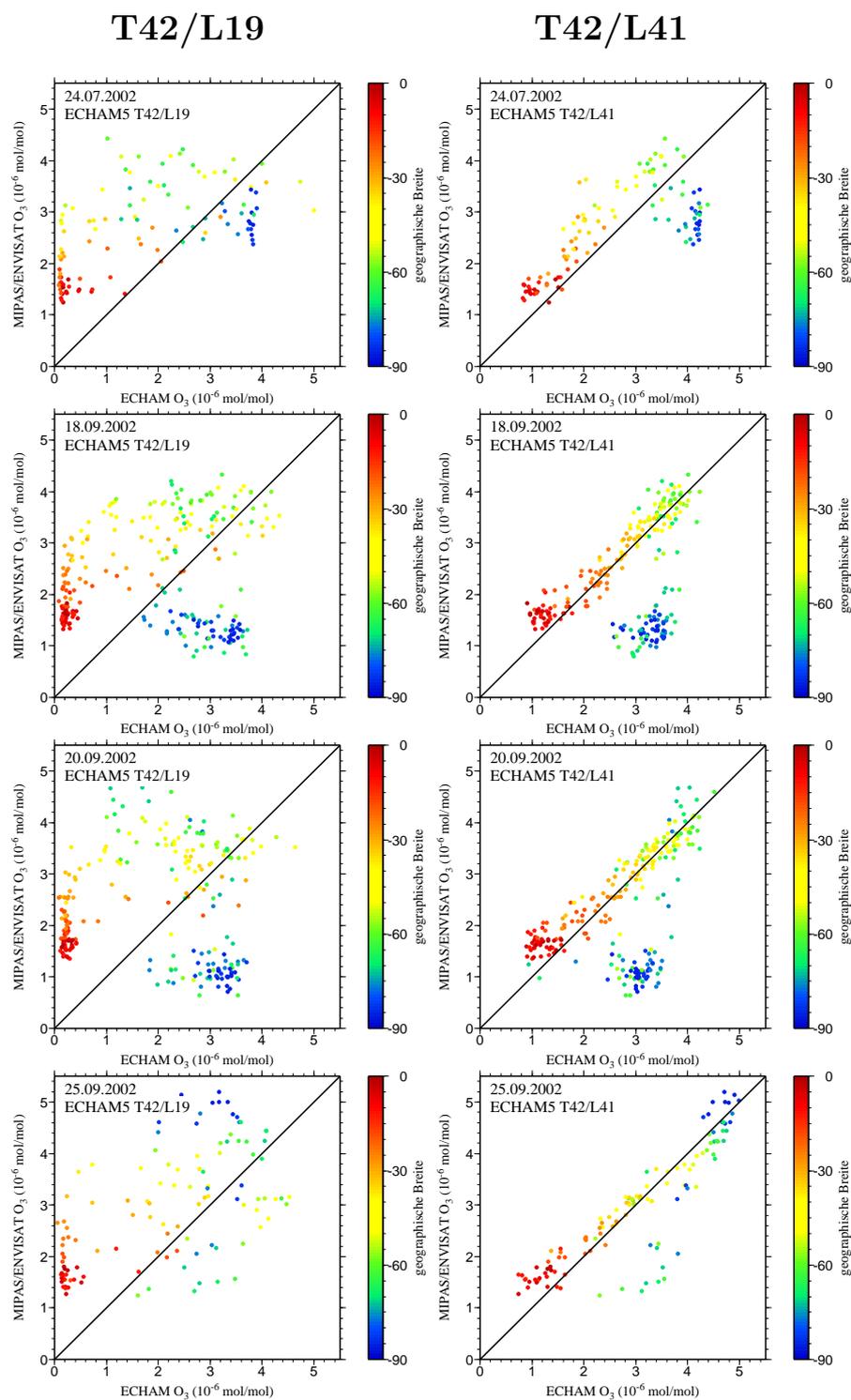


Abbildung 5.12: Wie Abbildung 5.4, jedoch für das O_3 -Mischungsverhältnis (in $\mu\text{mol/mol}$).

der Ozonmischungsverhältnisse (vgl. Abbildung 5.11) nur durch Transporte zustande kommt. Dazu wurde eine Sensitivitätsstudie durchgeführt, bei der die für den Ozonverlust entscheidenden heterogenen Reaktionen auf der Oberfläche der PSCs nicht berücksichtigt

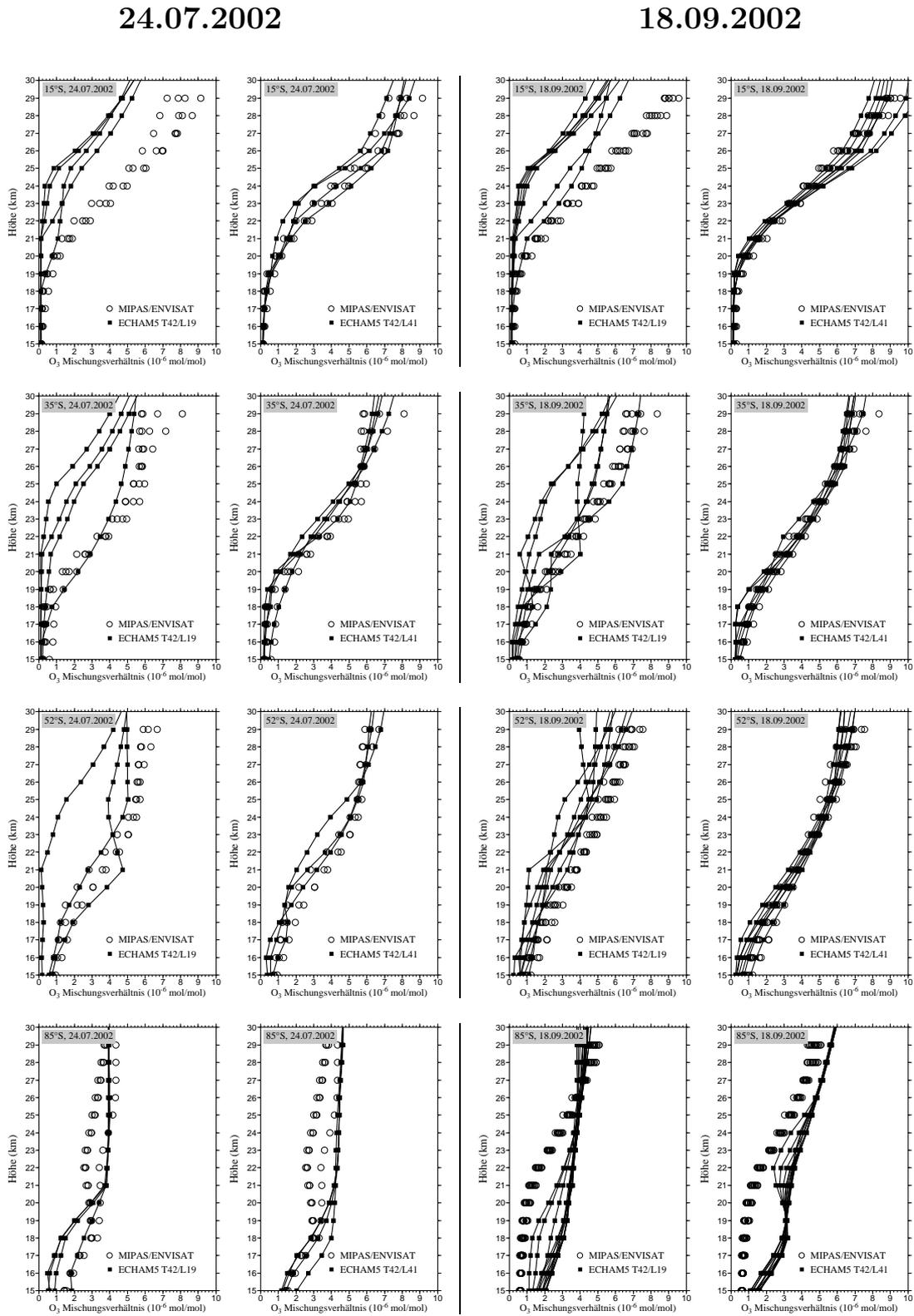


Abbildung 5.13: Wie Abbildung 5.5, jedoch für das O₃-Mischungsverhältnis (in $\mu\text{mol/mol}$).

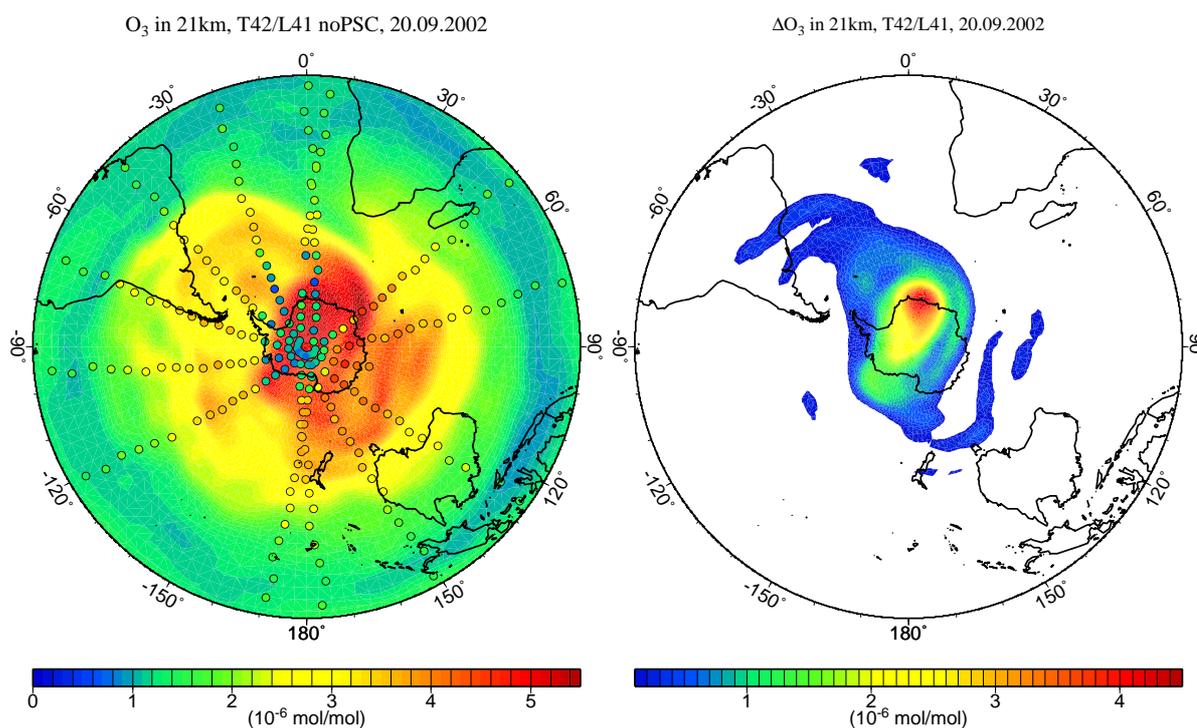


Abbildung 5.14: **Links:** O₃-Mischungsverhältnisse (in μmol/mol) in 21 km Höhe für den 20.09.2002 ohne Berücksichtigung heterogener chemischer Reaktionen auf polaren Stratosphärenwolken. **Rechts:** Differenz der O₃-Mischungsverhältnisse aus 2 ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulationen (T42/L41) ohne sowie mit PSC-Reaktionen. Differenzen kleiner als 0,1 μmol/mol sind nicht dargestellt.

wurden. Es ist eindeutig zu erkennen, dass die Ozonmischungsverhältnisse ohne die Berücksichtigung heterogener Reaktionen noch deutlich höher ausfallen als in der Referenzsimulation, siehe Abbildung 5.14. In weiten Teilen innerhalb des Wirbels führen die durch die PSCs ausgelösten Reaktionen zu einem chemischen Ozonabbau um 2 μmol/mol. Im Zentrum des Wirbels wird durch die Berücksichtigung der heterogenen Reaktionen ein Ozonverlust von bis zu 90% (4,5 μmol/mol) simuliert. Dies zeigt eindeutig, dass das Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA mit dem neuen PSC-Modul (Buchholz, 2005) prinzipiell in der Lage ist, einen starken chemischen Ozonverlust im antarktischen Polarwirbel zu produzieren.

5.3.3 Die Verteilungen der chlorhaltigen Spurengase

In Abschnitt 5.2 wurde bereits die wichtige Rolle chlorhaltiger Spurengase wie Chlorwasserstoff (HCl) oder Chlornitrat (ClONO₂) bei der Ausbildung eines „Ozonlochs“ (Farman et al., 1985) angesprochen, die Details der hier skizzierten Reaktionsabläufe finden sich beispielsweise auch in Jacob (1999). HCl und ClONO₂ selber stellen so genannte Reservoirgase dar, da die Chloratome in dem entsprechenden Molekül gebunden sind und in

dieser Form nicht zu einem Abbau von Ozon führen. Erst mit der Bildung von polaren Stratosphärenwolken werden die Reservoorgase in Folge heterogener chemischer Reaktionen in die so genannten „reaktiven Vorläufersubstanzen“ (HOCl , Cl_2) umgewandelt. Diese können durch die aufgehende Frühlingssonne photolysiert werden. Die dabei gebildeten Chlorradikale wie Chlormonoxid (ClO) oder atomares Chlor (Cl) führen zu einem katalytischen Abbau von Ozon (z.B. Anderson et al., 1989). Die Umwandlung der reaktiven Vorläufersubstanzen in aktives Chlor wird auch „Chloraktivierung“ genannt. Im Verlauf des Polarwinters bzw. Frühlings kann somit folgende Entwicklung der Spurengasverteilung beobachtet werden: die Mischungsverhältnisse der Reservoorgase HCl und ClONO_2 innerhalb des Polarwirbels nehmen ab, da sie in die reaktiven Vorläufersubstanzen umgewandelt werden. Die zunehmende Sonneneinstrahlung führt zu einer verstärkten „Aktivierung“ dieser Vorläufersubstanzen, sodass das Mischungsverhältnis des aktiven Chlors ansteigt. Damit verbunden tritt ein starker Rückgang der Ozonmischungsverhältnisse auf. Es soll nun untersucht werden, ob und inwieweit diese Effekte trotz der in den vorigen Abschnitten festgestellten Einschränkungen im Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA reproduziert werden können. Allerdings liefert das MIPAS-Instrument keine Messungen von HCl , sodass teilweise auf andere Studien verwiesen werden muss bzw. nur qualitative Aussagen getroffen werden können. Das HALOE-Instrument wäre prinzipiell in der Lage, HCl zu detektieren. Da es jedoch auf Okkultationsmessungen basiert und somit auf Sonnenlicht angewiesen ist, existieren für den September auch keine HALOE HCl -Messungen aus dem Inneren des antarktischen Polarwirbels. Ebenso lagen für die vorliegende Arbeit keine MIPAS-Daten von aktivem Chlor vor. Die Ableitung von ClO -Profilen aus MIPAS-Messungen stellt sich allgemein schwierig dar, da ClO in dem von MIPAS beobachteten Spektralbereich (mittleres Infrarot) nur eine schwache Signatur aufweist. Modellrechnungen während der „Preflight“-Phase von ENVISAT deuteten jedoch an, dass sehr hohe ClO -Mischungsverhältnisse, wie sie etwa im Polarwirbel während des Tages auftreten, detektiert werden können (Glatthor et al., 2001). Die ersten vorläufigen Ergebnisse von MIPAS/ENVISAT ClO -Beobachtungen liegen für die in diesem Kapitel untersuchte Episode vor. Bis zu dieser Studie gab es satellitengestützte ClO -Beobachtungen nur von Mikrowellensensoren wie MLS (Microwave Limb Sounder, Santee et al., 2003) oder SMR (Submillimeter Radiometer, Frisk et al., 2003). Eine Bewertung der von ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierten Verteilung von ClO wird im Folgenden anhand der Studien von Glatthor et al. (2004) (MIPAS) und Ricaud et al. (2005) (SMR) vorgenommen.

Untersuchung der HCl -Mischungsverhältnisse.

Ende Juli sind noch hohe HCl -Werte von bis zu 1,8 nmol/mol im Polarwirbel (hier: in 21 km) vorhanden (Abbildung 5.15). Diese gehen jedoch im weiteren Verlauf stark zurück. Bis zum Aufbrechen des Wirbels sind die Mischungsverhältnisse praktisch auf Null gesunken. Dies kann auf die Umwandlung des Chlorwasserstoffs in die Vorläufersubstanzen an den polaren Stratosphärenwolken zurückgeführt werden, die in Abschnitt 5.3 angesprochene Sensitivitätsstudie ohne PSC-Chemie zeigt den Rückgang des HCl -Mi-

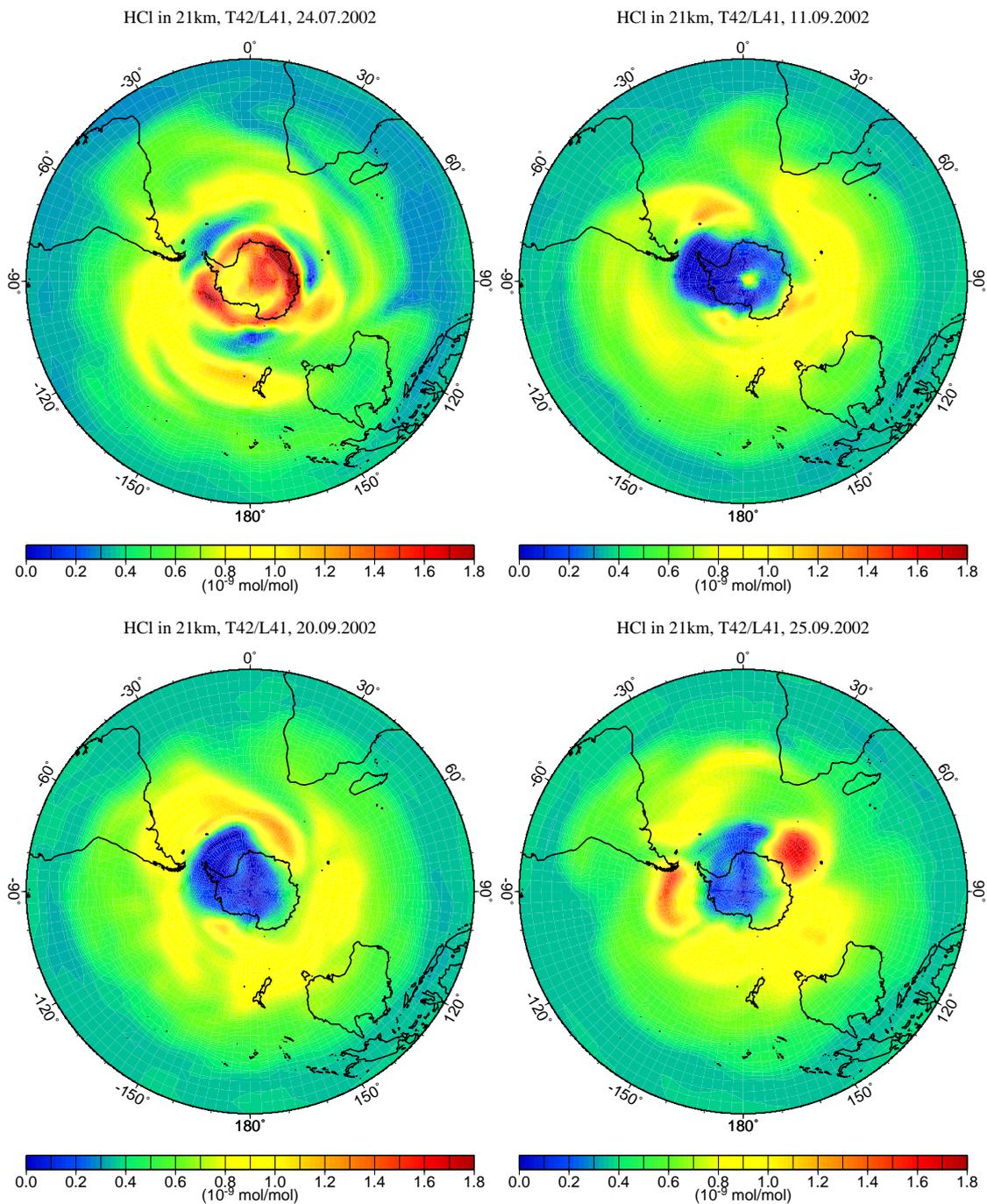


Abbildung 5.15: HCl-Mischungsverhältnis (in nmol/mol) in 21 km Höhe, ECHAM5/NUDGE/-MECCA-Modellsimulation T42/L41. Dargestellt ist der 12 UTC Termin.

schungsverhältnisses nicht (hier nicht gezeigt). Auch wenn keine direkten HCl-Messungen von MIPAS existieren, können die ECHAM-Ergebnisse mit Simulationen eines Modellsystems (BASCOE, Belgian Assimilation System for Chemical Observations from Envisat) verglichen werden, das MIPAS/ENVISAT-Profilen (hier: von O_3 , H_2O , N_2O , CH_4 , HNO_3 und NO_2) zur chemischen Datenassimilierung verwendet. Dieser Ansatz wurde für die in

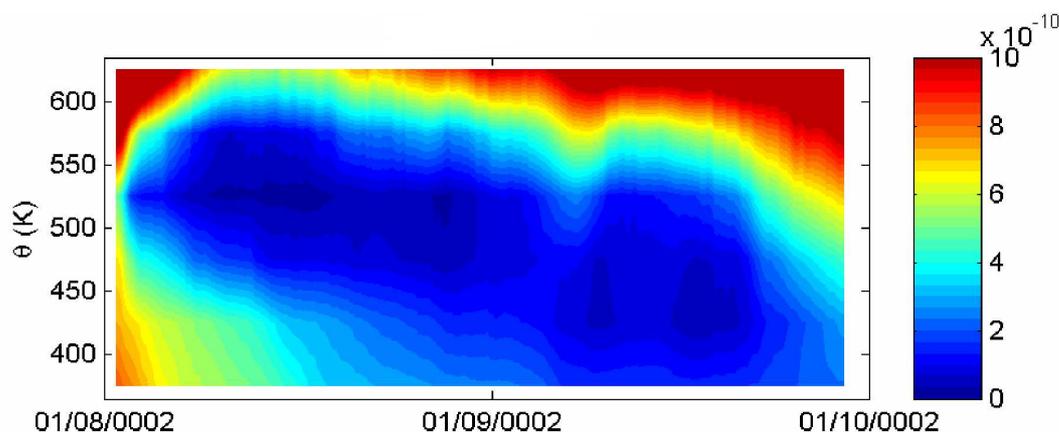


Abbildung 5.16: Zeitliche Entwicklung des vom BASCOE-Modellsystem simulierten HCl-Mischungsverhältnisses als Funktion der potentiellen Temperatur. Es wurden alle Werte aus dem Inneren des antarktischen Polarwirbels gemittelt. (Abbildung 7b aus Fonteyn et al., 2003.)

dem vorliegenden Kapitel untersuchte Episode von Fonteyn et al. (2003) verfolgt. Dort wird exemplarisch die horizontale Verteilung des modellierten HCl-Mischungsverhältnisses für den 11. September gezeigt, daher wird dieser Termin in dem vorliegenden Abschnitt ebenfalls untersucht (Abbildung 5.15). Die zeitliche Entwicklung der von ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierten HCl-Werte steht allgemein in guter Übereinstimmung mit den Modellstudien von Fonteyn et al. (2003), siehe zum Vergleich die vom BASCOE-Modellsystem simulierte zeitliche Entwicklung des HCl-Mischungsverhältnisses (Abbildung 5.16). Der Höhenbereich um 21 km entspricht darin etwa einer potentiellen Temperatur von $\Theta=550\text{K}$. Auch die BASCOE-Ergebnisse zeigen in diesem Höhenbereich Anfang August noch hohe Werte bis zu 1 nmol/mol, die jedoch schnell zurückgehen. Innerhalb weniger Tage sinken die simulierten Werte auf unter 0,2 nmol/mol und weniger. Ab Ende September, besonders stark mit Einsetzen der plötzlichen Stratosphärenenerwärmung um den 25.09., ist die kontinuierliche Rückbildung von HCl zu erkennen. Dieser, anhand der BASCOE-Simulation exemplarisch vorgestellte zeitliche Verlauf des HCl-Mischungsverhältnisses kann auch anhand weiterer Modellstudien dieser Episode bestätigt werden (hier nicht gezeigt) (z.B. Ricaud et al., 2005; Groß et al., 2005). Insbesondere steht diese Entwicklung in Übereinstimmung mit der in Abschnitt 5.3.3 angeführten Beschreibung der Umwandlung des Reservoirgases HCl in die reaktiven Vorläufersubstanzen (siehe z.B. auch Michelsen und Spivakovsky, 1999).

Neben der zeitlichen Entwicklung kann auch die horizontale Verteilung der von ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierten HCl-Mischungsverhältnisse mit den BASCOE-Ergebnissen verglichen werden. Es ist allerdings zu beachten, dass die BASCOE-Modellergebnisse von Fonteyn et al. (2003) (Abbildung 5.17) auf einer Isofläche der potentiellen Temperatur von $\Theta=475\text{K}$ (etwa 20 km) präsentiert werden und somit in etwas niedrigeren Höhen vorliegen als die hier diskutierten ECHAM-Werte (21 km). Ebenso wie die vom

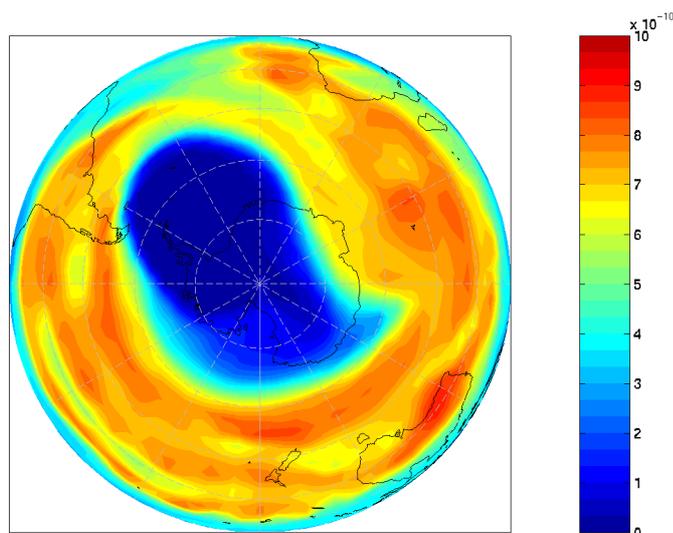


Abbildung 5.17: Vom BASCOE-Modellsystem simuliertes HCl-Mischungsverhältnis bei $\Theta=475\text{K}$ für den 11.09.2002. (Ausschnitt aus Abbildung 8 aus Fonteyn et al., 2003.)

ECHAM-Modellsystem simulierten HCl-Werte (Abbildung 5.15, hier: rechtes oberes Teilbild) zeigen auch die Modellergebnisse von Fonteyn et al. (2003) (Abbildung 5.17) einen nahezu vollständigen Rückgang des HCl-Mischungsverhältnisses in der unteren Stratosphäre für den 11.09. Allerdings ist die Fläche mit sehr niedrigen Werten etwas größer als in der ECHAM5/NUDGE/MECCA-Simulation. Außerhalb des Wirbels werden in mittleren Breiten von BASCOE Mischungsverhältnisse von rund 0,65–0,9 nmol/mol simuliert, dies steht in guter Übereinstimmung mit den ECHAM-Ergebnissen. Auch in niederen Breiten werden von beiden Modellsystemen ähnlich niedrige HCl-Werte zwischen etwa 0,4 und 0,5 nmol/mol simuliert.

Untersuchung der ClO-Mischungsverhältnisse.

Gleichzeitig mit dem Rückgang des HCl-Mischungsverhältnisses kann eine deutliche Chloraktivierung im Modell beobachtet werden (Abbildung 5.18). Die Entstehung von polaren Stratosphärenwolken im Modell und damit verbunden die Bildung von ClO im Inneren des Wirbels beginnt ab Ende Juli bis Anfang August. Dies ist konsistent mit langjährigen Beobachtungen in der Südhemisphäre (z.B. Sinnhuber et al., 2003). Ab etwa Mitte September 2002 gehen die modellierten ClO-Mischungsverhältnisse rasch zurück. Allgemein ist zu erkennen, dass im Inneren des Wirbels bis kurz vor Aufbrechen des Polarwirbels erhöhte ClO-Werte bis zu etwa 1,3 nmol/mol simuliert werden. Es wird jedoch auch deutlich, dass diese Maximalwerte auf kleine Regionen beschränkt sind, der Großteil der Fläche innerhalb des Wirbels weist Mischungsverhältnisse von rund 1 nmol/mol und darunter auf. Nach Aufbrechen des Wirbels werden nur noch geringe Mengen ClO (niedriger als 0,5 nmol/mol) vom ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystem simuliert. Diese zeitliche Entwicklung steht in Übereinstimmung mit den MIPAS/ENVISAT Beobach-

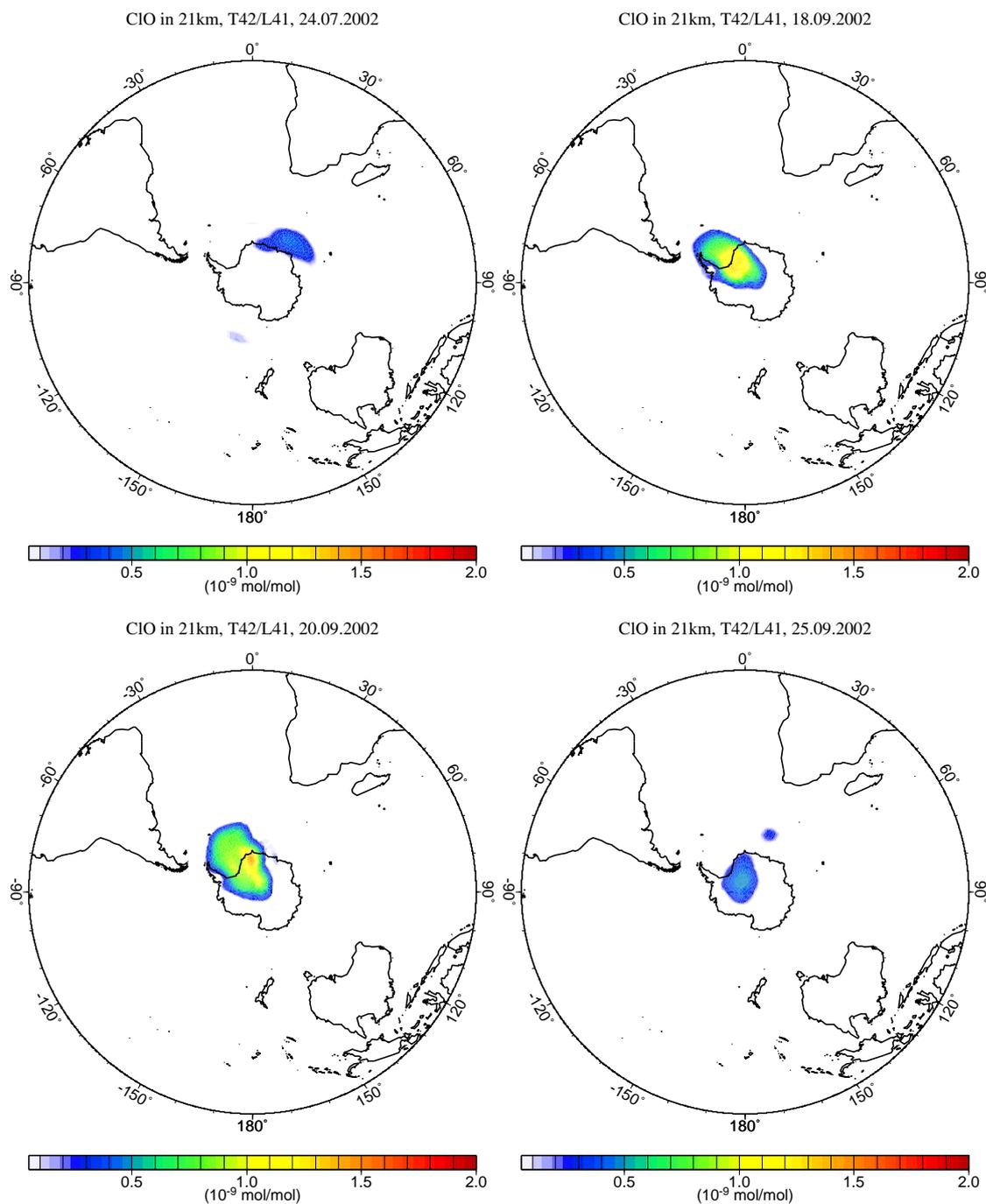


Abbildung 5.18: Wie Abbildung 5.15, jedoch für das ClO-Mischungsverhältnis (in nmol/mol).

tungen (Glatthor et al., 2004), siehe Abbildung 5.19: die Tagesmittelwerte der ClO-Mischungsverhältnisse im Inneren des Polarwirbels zeigen einen Anstieg bis etwa zum 17. September und danach einen schnellen Rückgang. An allen Tagen zwischen dem 15. und 20. September wurden in weiten Teilen des Wirbels in einem Höhenbereich um 21 km erhöhte ClO-Mischungsverhältnisse zwischen $1 \pm 0,4$ und $2,5 \pm 0,7$ nmol/mol de-

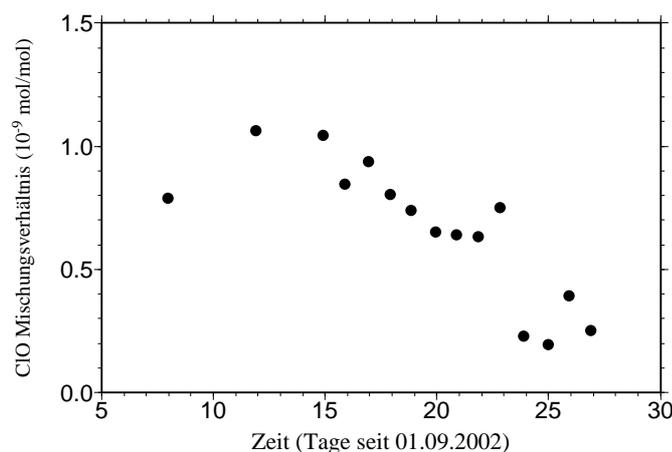


Abbildung 5.19: Tagesmittelwerte der von MIPAS/ENVISAT gemessenen ClO-Mischungsverhältnisse (in nmol/mol) bei $\Theta=550\text{K}$ (≈ 21 km) im Inneren des antarktischen Polarwirbels. Daten aus Glatthor et al. (2004).

tektiert⁸. Außerhalb des Wirbels lagen die Werte unterhalb des Detektions-Schwellwertes von etwa 0,5 nmol/mol. Die maximalen Werte von rund $2,5 \pm 0,7$ nmol/mol wurden hierbei in der Taghälfte am 17.09. registriert (siehe dazu einen von Glatthor et al. (2004) ausgewählten Orbit von diesem Tag, Abbildung 5.20). Am 18.09. lagen die maximalen ClO-Mischungsverhältnisse mit etwa $2 \pm 0,6$ nmol/mol bereits etwas niedriger. Bis zum 20. September wurden im Höhenbereich um 21 km noch Werte von maximal $2,1 \pm 0,6$ nmol/mol gemessen. Mit dem Einsetzen der Stratosphärenenerwärmung um den 20.09. konnte ein starker Rückgang der ClO-Mischungsverhältnisse registriert werden. Nach dem 23. September waren in der gesamten südhemisphärischen Stratosphäre keine signifikanten Mengen an ClO mehr vorhanden. Bereits vor dem Aufbrechen des Polarwirbels konnte beobachtet werden, dass nicht die gesamte Taghälfte des Wirbels mit ClO gefüllt war, sondern dass die Mischungsverhältnisse zum tagseitigen Wirbelrand hin abnahmen. Dies deutet an, dass die Chlordeaktivierung bereits vor dem letztendlichen Aufbrechen des Wirbels eingesetzt hat.

Für den Zeitraum 19.–20. September liegen auch ClO-Messungen des SMR-Gerätes an Bord des ODIN-Satelliten (Murtagh et al., 2003) vor. Auch diese Beobachtungen zeigen maximale ClO-Mischungsverhältnisse in der unteren Stratosphäre (um 21 km) bis zu 1 nmol/mol. Hierbei ist zu beachten, dass diese Messungen bei hohen Sonnenzenitwinkeln zwischen 90° und $92,5^\circ$, also in der Dämmerung durchgeführt wurden. Unter der Annahme eines photochemischen Gleichgewichts zwischen ClO und seinem Dimer Cl_2O_2 errechnen sich daraus maximale ClO-Tagwerte um 2 nmol/mol (Ricaud et al., 2005), in Übereinstimmung mit den MIPAS-Messungen von Glatthor et al. (2004). Die nächsten ODIN-Messungen, die für den 25.–26. September vorliegen, zeigen einen starken Rückgang

⁸Allgemein wurden die maximalen Werte immer in der unteren Stratosphäre um etwa 20 km beobachtet. Der Gesamtfehler der abgeleiteten ClO-Mischungsverhältnisse in 21 km wird mit etwa 28% angegeben, siehe Glatthor et al., 2004

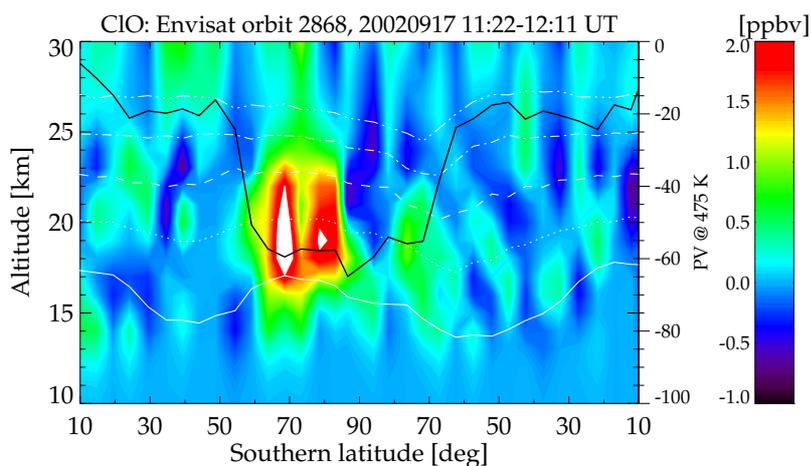


Abbildung 5.20: Von MIPAS/ENVISAT gemessenes ClO-Mischungsverhältnis während eines ausgewählten Orbits vom 17.09.2002. Schwarze Linie: PV bei $\Theta=475$ K. Weiße Linien: Potentielle Temperatur 400, 475, 550, 625 und 700 K (von unten nach oben). (Ausschnitt aus Abbildung 2 aus Glatthor et al., 2004.)

des ClO-Mischungsverhältnisses um rund 70%. Letztlich wurden um den 1.–2. Oktober im gesamten Teil des Wirbels unterhalb rund 30 km keine signifikanten Mengen ClO mehr detektiert.

Der Vergleich der ECHAM-Modellsimulation mit den Ergebnissen dieser beiden Studien zeigt, dass der zeitliche Verlauf der Chloraktivierung bzw. -deaktivierung realistisch vom Modellsystem wiedergegeben wird. Es wird aber auch deutlich, dass die maximalen ClO-Mischungsverhältnisse im ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystem um rund 40% unterschätzt werden. Insbesondere erscheint die Fläche, in der hohe ClO-Werte detektiert werden, in der T42/L41-Simulation zu gering auszufallen. Auch in dieser neuen Modellversion werden noch zu geringe Mengen an Chlorverbindungen aus der mittleren in die untere Stratosphäre transportiert. Somit liegen in diesem Höhenbereich zu niedrige Mischungsverhältnisse an Vorläufersubstanzen vor und entsprechend fällt die Chloraktivierung innerhalb des Wirbels großräumig zu gering aus. Dadurch kann die gezeigte Überschätzung der Ozonmischungsverhältnisse (vgl. Abbildung 5.11) in der südpolaren unteren Stratosphäre erklärt werden.

Untersuchung der ClONO₂-Mischungsverhältnisse.

Die MIPAS-Messungen des ClONO₂-Mischungsverhältnisses⁹ (hier: in 21 km) zeigen im Südfrühling eine prominente Struktur (Abbildung 5.21, linke Hälfte): die Ausbildung des so genannten „Chlornitrat-Kragens“ (z.B. Toon et al., 1989; Roche et al., 1993). Diese Struktur entsteht am Rande des Polarwirbels, wo reaktives ClO aus dem Inneren des Wirbels mit NO₂ von außerhalb des Wirbels zu ClONO₂ reagiert. Dieser Kragen ist deutlich an den sehr hohen ClONO₂-Mischungsverhältnissen von stellenweise bis zu 2,7 nmol/mol in

⁹Gesamtfehler des ClONO₂-Mischungsverhältnisses in 21 km: 11% nach Höpfner et al. (2003).

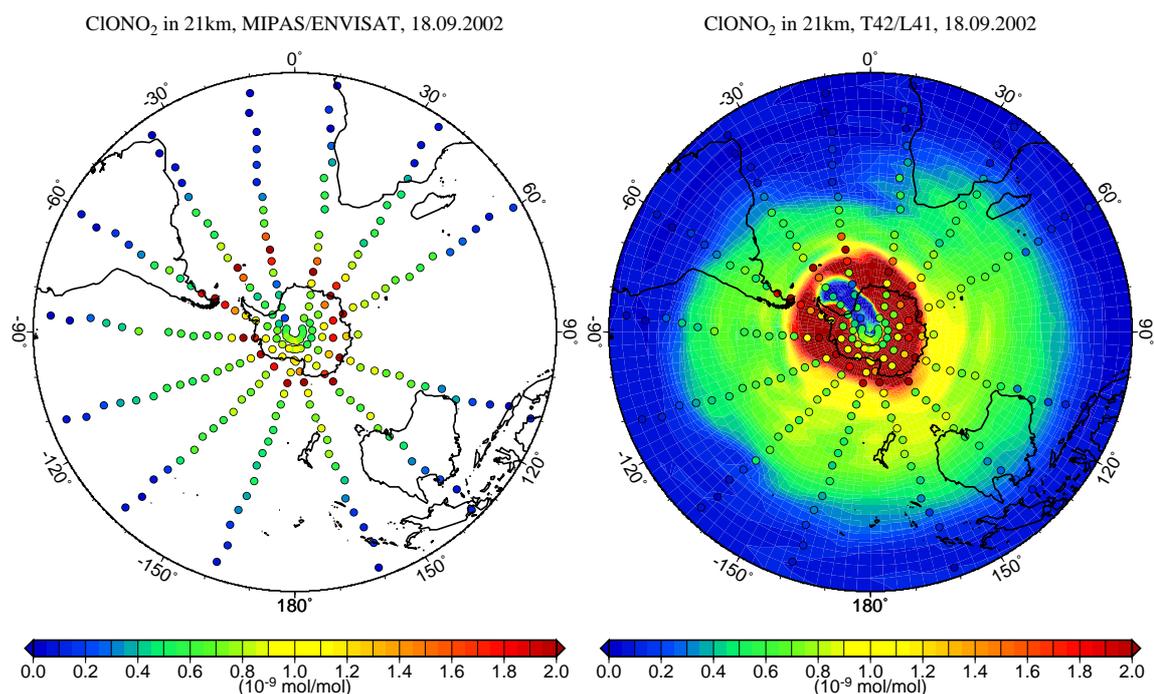


Abbildung 5.21: ClONO_2 -Mischungsverhältnis (in nmol/mol) in 21 km Höhe für den 18.09.2002. **Links:** MIPAS/ENVISAT. **Rechts:** ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsimulation T42/L41, zusätzlich sind die links gezeigten MIPAS-Daten darübergelegt.

den MIPAS-Daten zu identifizieren. In der ECHAM5/NUDGE/MECCA-Simulation wird diese Struktur deutlich überbewertet (rechte Hälfte von Abbildung 5.21). Es kann zwar auch hier die typische Kragenstruktur mit ähnlich hohen Absolutwerten von stellenweise bis zu $2,5 \text{ nmol/mol}$ erkannt werden. Allerdings fällt die Fläche mit erhöhten Chlornitratwerten im Modell deutlich zu hoch aus. Dies kann zum Einen in dem Transportalgorithmus in Kombination mit der vergleichsweise groben horizontalen Modellauflösung begründet liegen, wodurch die Ausbildung scharfer Gradienten (die eindeutig in den Beobachtungen erkennbar sind) aufgrund diffusiver Effekte im Modell verhindert wird. Zusätzlich kann ein großer Teil des Chlornitrats durch eine zu starke Chlordeaktivierung vor Ort am inneren Wirbelrand gebildet werden. Prinzipiell existieren zwei Hauptreaktionswege der Chlordeaktivierung: der Mechanismus des katalytischen Ozonabbaus kann gestoppt werden, wenn die ClO -Radikale mit NO_2 zu dem Reservoirgas ClONO_2 reagieren. Sind nicht genügend NO_2 -Moleküle vorhanden, kann praktisch ein vollständiger Ozonabbau stattfinden. Letztlich reagieren die Chlornitradikale dann mit Methan und bilden über den zweiten möglichen Reaktionsweg das andere wichtige Reservoirgas HCl . Welcher dieser beiden Reaktionswege abläuft, hängt stark von der umgebenden Ozonkonzentration (und natürlich von der Anzahl der zur Verfügung stehenden NO_2 -Moleküle) ab. Die Rückbildung von HCl ist besonders stark bei niedrigen Ozonkonzentrationen, wie sie im antarktischen Polarwirbel im Frühling typisch sind; bei hohen Ozonmischungsverhältnissen dominiert hingegen die zuerst genannte Reaktion (Grooß et al., 1997; Douglass et al., 1995; Mickley et al., 1997;

Michelsen et al., 1999). Es wurde bereits diskutiert, dass in der ECHAM-Modellsimulation im Polarwirbel deutlich zu hohe Ozonwerte auftreten (Abbildung 5.11). Im Modell kann daher der Mechanismus der Chlordeaktivierung dominieren, der zur Bildung von Chlornitrat führt. Somit können die zu hohen ClONO₂-Werte innerhalb des Polarwirbels Ende September im Modell erklärt werden. Es wäre ebenfalls denkbar, dass die starke Bildung von Chlornitrat durch ein zu hohes Angebot an NO₂-Molekülen im Modell zustande kommt. In der Regel sind während des Spätwinters und Frühlings innerhalb des südpolaren Wirbels nur geringe Mischungsverhältnisse an Stickoxiden zu beobachten, da diese an den Teilchen der polaren Stratosphärenwolken angelagert werden und durch Sedimentation der PSCs aus dem entsprechenden Höhenbereich entfernt werden. Dieser Vorgang wird auch „Denitrifizierung“ genannt. Fällt die Denitrifizierung im Modell zu schwach aus, begünstigt dies die verstärkte Rückbildung von ClONO₂. Erste Studien von Buchholz (2005) deuten jedoch nicht darauf hin, dass die Sedimentation der PSCs und damit verbunden die Denitrifizierung im ECHAM5-Modellsystem systematisch unterschätzt würden.

In den Folgetagen bis zum 25.09. setzt im Modell im gesamten inneren Bereich des Wirbels eine starke ClONO₂-Rückbildung ein (nicht gezeigt). Dieser Reaktionsweg wurde auch erstmals von Höpfner et al. (2004) anhand von MIPAS-Messungen für die hier untersuchte Episode gefunden. Diese Messungen zeigen einen deutlichen Anstieg des Chlornitratmischungsverhältnisses im Inneren des Wirbels von rund 0,9 nmol/mol (im Tagesmittel) am 15.09. bis auf etwa 1,7 nmol/mol am 25.09. (jeweils in etwa 21 km Höhe). Die im ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystem simulierte starke Chlordeaktivierung über den ClONO₂-Bildungsmechanismus wird somit von den MIPAS-Messungen bestätigt, dennoch ist festzustellen dass der Absolutbetrag des letztlich gebildeten Chlornitrats aufgrund der zu hohen Ozonmischungsverhältnisse im Modell zu hoch ausfällt.

5.4 Abschließende Bewertung und Ausblick

In den vorangegangenen Abschnitten konnte insbesondere durch einen Vergleich der im Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA simulierten „passiven“ Spurengase Methan und Distickstoffoxid mit MIPAS/ENVISAT-Messungen gezeigt werden, dass ein realistischerer Vertikaltransport in der polaren Stratosphäre erst durch die Entwicklung der vertikal höher aufgelösten 41-Schichtenversion ermöglicht wurde. Dies ist ein wichtiges Ergebnis da oftmals argumentiert wird, dass die Dynamik der Stratosphäre prinzipiell nicht realistisch mit Modellen simuliert werden kann, deren oberste Schicht um 10 hPa (bzw. 5 hPa) zentriert ist. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Simulationen haben gezeigt, dass diese Aussage lediglich für Modellversionen mit nicht genügend hoher Anzahl an vertikalen Schichten getroffen werden darf. Die simulierten Verteilungen der passiven und chemisch aktiven Spurenstoffe zeigen in weiten Teilen der Stratosphäre eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den MIPAS-Beobachtungen. Die auch in der neuen L41-Version noch verbleibenden Abweichungen, speziell in der polaren Strato-

sphäre, können nicht auf einen vermeintlich zu niedrigen Modelloberrand zurückgeführt werden. In Abschnitt 5.2.3 wurde dazu bereits angesprochen, dass zu hohe Mischungsverhältnisse an passiven Spurenstoffen auch in der ECHAM5–Mittelatmosphärenversion (z.B. Steil et al., 2003) beobachtet werden, deren oberste Modellschicht um 0,01 hPa zentriert ist.

Trotz der gezeigten Verbesserung des Transportverhaltens in der 41–Schichtenversion deutet sich an, dass bei der hier verwendeten horizontalen Modellauflösung T42 in Verbindung mit dem verwendeten Transportalgorithmus (Lin und Rood, 1996) noch einige Unsicherheiten bestehen bleiben. So konnte beispielsweise gezeigt werden, dass der in den MIPAS–Daten beobachtete meridionale Gradient der CH_4 –Mischungsverhältnisse im Modell zu gering ausgeprägt ist. Dies deutet darauf hin, dass der simulierte Polarwirbelrand keine wirksame Barriere zwischen polaren und extrapolaren Luftmassen darstellt. Dieses Problem kann möglicherweise in zukünftigen Studien durch Verwendung eines rein lagrangeschen Transportschemas gelöst werden. Bei diesem Ansatz wird die Modellatmosphäre in eine große Anzahl an Luftpaketen eingeteilt, deren Schwerpunkte advehiert werden. Jeder Spurenstoff wird dabei durch ein Massenmischungsverhältnis in diesem Luftpaket beschrieben. Somit werden nicht die Konzentrationen des Spurenstoffs durch die Advektion verändert, sondern die Orte der jeweiligen Konzentrationen, d.h. die Orte der Schwerpunkte der Luftpakete. Ein solches Schema ist streng massenerhaltend und numerisch nicht diffusiv¹⁰, es eignet sich somit ideal für Spurengasverteilungen, die starke Gradienten aufweisen. Zu diesem Zweck wurde das lagrangesche Transportschema ATTILA (Atmospheric Tracer Transport in a Lagrangian Model) entwickelt (Reithmeier und Sausen, 2002). Erste Modellstudien mit der neuen Modellversion ECHAM5/ATTILA wurden von Traub (2004) für passive Spurenstoffe präsentiert. Erste Studien mit der Vorgängerversion ECHAM4, bei denen der Wasserdampf mittels ATTILA transportiert wurde, zeigen beispielsweise, dass der meridionale Gradient der Wasserdampfverteilung im Tropopausenbereich deutlich realistischer simuliert werden kann (A. Stenke, persönliche Mitteilung). Es deutet sehr viel darauf hin, dass die in den vorigen Abschnitten diskutierten Schwierigkeiten aufgrund des Transportverhaltens durch eine vollständige Kopplung von ATTILA an das bestehende ECHAM5/NUDGE/MECCA–Modellsystem gelöst werden können. Hierzu ist es jedoch erforderlich, dass auch die chemischen Reaktionen vollständig im Luftpaket–Raum behandelt werden und nicht etwa die Konzentrationen der Spurenstoffe in den Gitterpunkt–Raum zurück transformiert werden müssen, wodurch die Vorteile des lagrangeschen Ansatzes aufgehoben würden. Mit diesen Arbeiten wurde erst vor Kurzem begonnen (P. Jöckel, persönliche Mitteilung).

¹⁰Hinzu kommt, dass alle Spurenstoffe simultan advehiert werden und somit der numerische Aufwand unabhängig von der Anzahl der Spurenstoffe ist.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Simulationen mit einer neuen, von Beobachtungen der Dynamik angetriebenen Version des globalen Klima-Chemiemodells ECHAM5/NUDGE/MECCA durchgeführt und diskutiert. Es wurden zunächst einige technische Arbeiten vorgestellt, die speziell bei der Entwicklung der vertikal höher aufgelösten 41-Schichtenversion erforderlich waren. Beispielsweise musste die simulierte Strahlungsbilanz am Oberrand der Atmosphäre angepasst werden. Dazu war es nötig, einige wolkenmikrophysikalische Parameter im Modell neu einzustellen, da die Prozesse in der Wolkenparametrisierung auflösungsabhängig sind. Ohne diese Neuanpassung wäre die konvektive Bewölkung in der neuen 41-Schichtenversion signifikant reduziert. Dies hätte eine zu hohe langwellige Ausstrahlung am Oberrand der Atmosphäre im Vergleich zu Satellitenbeobachtungen zur Folge.

Das erste Ziel der Arbeit war es, die Transporteigenschaften des neuen Modells anhand eines Vergleiches von modellierten Daten mit Beobachtungen einer bereits vorhandenen und in der Literatur sehr gut dokumentierten Episode zu evaluieren. Dabei wurde der Interkontinentaltransport von kanadischen Waldbrand-Spurengasen untersucht. Anschließend wurde die gleiche Episode erstmals mit vollständiger Troposphärenchemie simuliert, um die Auswirkungen der Waldbrandemissionen auf die Ozonbildung zu analysieren. Die aus kanadischen Waldbränden emittierten Spurengase führten zu einer Erhöhung der Ozonkonzentrationen bis über Europa. Im zweiten Teil der Arbeit wurde das überprüfte Modellsystem eingesetzt, um die während der TROCCINOX-Kampagne gewonnenen Spurenstoffmessungen aus der oberen tropischen Troposphäre zu interpretieren und auf globaler Skala zu bewerten. Insbesondere konnte gezeigt werden, dass durch Verwendung einer alternativen Blitz-NO-Parametrisierung, die die Blitzrate im Modell an den konvektiven Massenfluss in einer Wolke koppelt, eine deutliche Verbesserung der Simulationsergebnisse im Vergleich zu der in der Mehrzahl aller globaler Modelle eingesetzten Standard-Parametrisierung erreicht werden konnte. Es deutet viel darauf hin, dass mit dem neuen Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA unter Verwendung dieser Parametrisierung der Unsicherheitsbereich der globalen Stickoxidproduktion durch Blitze von gegenwärtig etwa 2–20 Tg(N)/Jahr signifikant reduziert werden kann.

Abschließend wurden Simulationen durchgeführt, in denen insbesondere das Transportverhalten des ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystems in der polaren Stratosphäre untersucht wurde. Durch den Vergleich mit MIPAS/ENVISAT-Daten konnte gezeigt werden, dass die 19-Schichten-Standardmodellversion von ECHAM5 die Dynamik der polaren unteren Stratosphäre nicht zufriedenstellend reproduzieren kann. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelte, vertikal höher aufgelöste 41-Schichtenversion führte zu einem signifikant verbesserten Transportverhalten.

Validierung der großräumigen Transporteigenschaften – Interkontinentaltransport von kanadischen Waldbrand-Spurengasen

Die Transporteigenschaften des neuen ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystems wurden anhand eines Vergleiches mit Simulationsergebnissen des Lagrangeschen Partikeldispersionsmodells FLEXPART von Forster et al. (2001) evaluiert. Hierbei wurde insbesondere der Interkontinentaltransport von Spurenstoffen untersucht, die durch boreale Waldbrände in Kanada emittiert wurden. Die erzielten Ergebnisse stehen allgemein in guter Übereinstimmung mit den FLEXPART-Modellergebnissen. Die zeitliche Entwicklung und die Absolutbeträge der simulierten Spurenstoffmischungsverhältnisse (hier: CO) können nach dem Transport über den Atlantik anhand eines Vergleiches mit Messreihen der Station Mace Head (Irland) bestätigt werden. Die durchgeführten Sensitivitätsstudien mit verschiedenen horizontalen Auflösungen zeigen, dass für den Vergleich mit Punktmessungen eine Modellauflösung von T63 den besten Kompromiss aus verfügbarer Information und Rechenzeitbedarf darstellt. Mit leichten Einschränkungen, die sich zwangsläufig aus der geringeren Auflösung ergeben, können auch die T42-Simulationen zur Modellevaluierung herangezogen werden. Anschließend wurde eine Simulation mit vollständiger Troposphärenchemie durchgeführt, mit deren Hilfe erstmals direkt eine erhöhte photochemische Ozonproduktion durch die von borealen Waldbränden emittierten Spurenstoffe während dieser Episode nachgewiesen werden konnte. Die dadurch simulierten erhöhten Ozonmischungsverhältnisse über Europa können durch Messungen bestätigt werden.

Stickoxide aus Blitzen in der oberen tropischen Troposphäre – Simulationen im Rahmen der TROCCINOX-Messkampagne

Im zweiten Teil dieser Arbeit wurden Modellsimulationen im Rahmen des TROCCINOX-Projektes durchgeführt und bewertet. Ziel war es, die gemessene Spurenstoffverteilung der oberen tropischen Troposphäre durch Verwendung zweier verschiedener Blitz-NO-Parametrisierungen möglichst realistisch zu simulieren. Einerseits wurde eine üblicherweise in globalen Modellen eingesetzte Parametrisierung getestet, die die simulierte Anzahl der Blitze und die damit verbundenen Stickoxidemissionen an die Höhe der konvektiven Wolken koppelt. Zum Anderen wurde eine neue Parametrisierung eingesetzt, die den kon-

vektiven Massenfluss in einer Wolke berücksichtigt. Die erste Hälfte der TROCCINOX-Kampagne war von subtropischer Gewittertätigkeit geprägt. Die von beiden Parametrisierungen simulierten Stickoxidverteilungen stehen in Übereinstimmung mit der Beobachtung. In der zweiten Hälfte der Kampagne wurden starke tropische Gewitter innerhalb der Messregion beobachtet. Der damit verbundene starke Anstieg der gemessenen Stickoxidmischungsverhältnisse wird von der Standard-Parametrisierung signifikant unterschätzt. Erst durch Verwendung der neuen Parametrisierung kann der starke Anstieg der Blitzaktivität und der damit verbundenen NO-Mischungsverhältnisse mit dem ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystem erklärt werden. Insgesamt ist es damit möglich, einen Großteil der Variabilität der TROCCINOX-Messungen (keine bzw. schwache Konvektion, starke tropische Konvektion, frische Blitzemissionen sowie gealterte Luftmassen aus dem Ausströmgebiet konvektiver Zellen) zu beschreiben. Sowohl die horizontale wie auch die vertikale Verteilung der Stickoxide steht in guter Übereinstimmung mit der Messung. Dadurch war es möglich, eine Reihe weiterer Sensitivitätsstudien durchzuführen, bei denen die globale Gesamtmenge der Stickoxidemissionen aus Blitzen zwischen 2 und 10 Tg(N)/Jahr variiert wurde. Es konnte festgestellt werden, dass die TROCCINOX-Messungen am besten im Modellsystem ECHAM5/NUDGE/MECCA unter Verwendung der neuen „updraft“-Parametrisierung und der Annahme einer globalen Gesamtemission von Stickoxiden aus Blitzen von 5 Tg(N)/Jahr erklärt werden können. Die durchgeführten Sensitivitätsstudien deuten darauf hin, dass der Unsicherheitsbereich der Gesamtstickoxidemission aus Gewittern während der ausgewerteten TROCCINOX-1-Messungen etwa 2–7,5 Tg(N)/Jahr beträgt. Dies ist ein wichtiger Schritt zur Reduzierung des Unsicherheitsbereiches auf globaler Skala.

Ozonchemie in der südpolaren unteren Stratosphäre – Modellvalidierung mit Hilfe von MIPAS/ENVISAT Beobachtungen

Abschließend wurden Modellsimulationen durchgeführt, mit deren Hilfe das Transportverhalten des neuen ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystems in der polaren Stratosphäre untersucht wurde. Als Episode wurde der Südwinter und Frühling 2002 ausgewählt, in der erstmalig eine große Stratosphärenenerwärmung in der südpolaren Stratosphäre beobachtet werden konnte. Zu dieser Episode liegen eine Reihe von Studien mit Chemietransportmodellen vor, mit denen die ECHAM5/NUDGE/MECCA-Ergebnisse verglichen wurden. Zum Anderen existieren für diesen Zeitraum die ersten Beobachtungen des MIPAS-Gerätes an Bord des europäischen Umweltsatelliten ENVISAT. Da es sich bei MIPAS um ein passives Infrarot-Spektrometer handelt, besitzen die Daten gegenüber bislang weit verbreiteten Okkultationsmessungen den Vorteil, dass sie nicht auf Sonnenlicht angewiesen sind und somit auch Messungen im Inneren des Polarwirbels während der Polarnacht vorliegen. Der Vergleich der simulierten „passiven“ Spurenstoffe Methan und Distickstoffoxid mit den MIPAS-Messungen zeigt, dass die Dynamik der polaren Stratosphäre mit der Standard-Modellversion mit 19 vertikalen Schichten nicht zufriedenstellend reprodu-

ziert werden kann. Die Tropopausen–Transportbarriere ist zu stark ausgeprägt, der beobachtete vertikale Gradient des CH_4 –Mischungsverhältnisses wird signifikant unterschätzt. Die Absolutwerte in der unteren polaren Stratosphäre fallen deutlich zu hoch aus. Erst durch Verwendung der im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten, vertikal höher aufgelösten 41–Schichtenversion von ECHAM5/NUDGE/MECCA wird eine signifikante Verbesserung des Transportverhaltens erreicht. Der großräumige Abwärtstransport von Luftmassen über den polaren Breiten wird deutlich besser erfasst. Das simulierte CH_4 –Vertikalprofil ist in wesentlich besserer Übereinstimmung mit den MIPAS–Messungen als die Ergebnisse der Standard–L19–Modellversion. Dies ist ein wichtiges Ergebnis, da oftmals argumentiert wird, dass die Dynamik der Stratosphäre prinzipiell nicht mit Modellsystemen erfasst werden könne, deren oberste Schicht um 10 hPa (bzw. 5 hPa) zentriert ist. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Simulationen haben jedoch gezeigt, dass bei genügend hoher vertikaler Auflösung auch in einem „5 hPa–Modell“ die allgemeine Dynamik der unteren und mittleren Stratosphäre realitätsnah simuliert werden kann. Allerdings verbleiben auch in der neuen L41–Version noch kleine Unsicherheiten. Die simulierten Mischungsverhältnisse der passiven Spurenstoffe liegen noch etwas höher als die Beobachtungen. Eine Möglichkeit, wie das Transportverhalten des neuen ECHAM5/NUDGE/MECCA–Modellsystems weiter verbessert werden kann, wird im abschließenden Ausblick diskutiert.

Neben den passiven Spurenstoffen wurden auch die für einen Ozonabbau entscheidenden Chlorverbindungen untersucht. Es konnte gezeigt werden, dass deren zeitlicher Verlauf, insbesondere der kontinuierliche Rückgang des Reservoirgases HCl und damit verbunden der Bildung von „aktivem“ Chlor wie ClO, in guter Übereinstimmung mit den MIPAS–Daten und den Studien der Chemietransportmodelle steht. Aufgrund der verbleibenden Schwierigkeiten im Transportverhalten liegen die Absolutwerte an aktivem Chlor jedoch etwas zu niedrig. Dies hat einen zu geringen Ozonabbau in der unteren polaren Stratosphäre zur Folge. Es konnte aber gezeigt werden, dass diese Unsicherheiten auf die polaren Breiten beschränkt sind. Die simulierten vertikalen Ozonverteilungen in den niederen und mittleren Breiten stehen hingegen in guter bis sehr guter Übereinstimmung mit den MIPAS–Beobachtungen.

Ausblick

Reduzierung des Unsicherheitsbereiches der globalen Blitz–NO–Emissionen

Speziell in Kapitel 4 konnte demonstriert werden, dass mit dem neuen ECHAM5/NUDGE/MECCA–Modellsystem unter Verwendung der „updraft“ Blitz–NO–Parametrisierung nun ein sehr leistungsfähiges Werkzeug zur Verfügung steht, mit dem z.B. der Einfluss von Stickoxidemissionen aus Gewittern auf die Chemie der Atmosphäre untersucht werden kann. Es deutet sehr viel darauf hin, dass eine der entscheidenden Fragestellungen im

Rahmen des TROCCINOX-Projektes, die signifikante Reduzierung des Unsicherheitsbereiches der globalen Stickoxidemissionen aus Blitzen, erst mit dieser neuen Modellversion möglich ist. Verständlicherweise können die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Simulationen zur TROCCINOX-1-Messkampagne nur der erste Schritt in diese Richtung sein. Um eine global gültige Aussage abgeben zu können, müssen die Untersuchungen auf weitere Episoden ausgedehnt werden. Als nächster Schritt sollen daher die Messungen der TROCCINOX-2-Kampagne aus dem Jahre 2005 ausgewertet werden. Diese Messungen stellen eine wichtige Ergänzung zu den im Rahmen der vorliegenden Arbeit vorgestellten Ergebnissen dar. Insbesondere die Beobachtungen des russischen Höhenforschungs-Flugzeuges Geophysica erschließen einen zusätzlichen Höhenbereich bis in die untere Stratosphäre, der noch einmal deutlich über den in dieser Arbeit untersuchten Höhenbereich hinausgeht. Das liefert wichtige Zusatzinformationen über die Verteilung der Stickoxide, insbesondere kann die noch nicht endgültig geklärte Frage untersucht werden, in welchem Höhenbereich relativ zur Wolkenoberkante die maximalen Stickoxidmischungsverhältnisse registriert werden.

Weiterhin sollen auch Messkampagnen aus den Extratropen ausgewertet werden. Hierzu ist geplant, die Episoden der beiden in mittleren Breiten durchgeführten Kampagnen LINOX (Lightning produced NO_x) und EULINOX (European Lightning Nitrogen Oxides Project) (Höller, 1996; Huntrieser et al., 1998, 2002; Höller und Schumann, 2000) mit dem ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystem nachzusimulieren.

Tracertransport mit dem lagrangeschen Schema ATTILA

In Kapitel 5 konnte gezeigt werden, dass die im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelte 41-Schichtenversion zu einem deutlich verbesserten vertikalen Transportverhalten in der polaren Stratosphäre führt. Es ist sehr wahrscheinlich, dass die verbleibenden Schwierigkeiten durch die Verwendung eines neuen, rein lagrangeschen Transportschemas behoben werden können. In Kapitel 5 wurde insbesondere deutlich, dass der gegenwärtig standardmäßige Transportalgorithmus in ECHAM5 bei niedrigen horizontalen Modellauflösungen (hier: T42) die Ausbildung starker horizontaler Gradienten, wie sie im Bereich des Polarwirbelrandes beobachtet werden können, unterschätzt. Erste Modellstudien mit der Vorgängerversion ECHAM4 deuten darauf hin, dass durch Verwendung des lagrangeschen Transportschemas ATTILA (Reithmeier und Sausen, 2002) deutlich realistischere meridionale Gradienten simuliert werden können. Das letztendliche Ziel ist es, nicht nur die „passiven“ Spurenstoffe, sondern auch die chemisch reaktiven Spezies in einem vollständig lagrangeschen Schema zu behandeln. Bislang findet die Berechnung der chemischen Reaktionen allerdings noch an den Modellgitterpunkten statt. In einem rein lagrangeschen System müsste dies jedoch ebenfalls in den einzelnen Luftpaketen durchgeführt werden. Dieser Ansatz wird gegenwärtig umgesetzt (P. Jöckel, persönliche Mitteilung).

Begleitende Simulationen während Feldmesskampagnen – Erstellung von „chemischen Wettervorhersagen“

Neben den in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Reanalysen wurde das ECHAM5/NUDGE/MECCA-Modellsystem testweise zu einem Modell zur „chemischen Wettervorhersage“ erweitert. Dabei wird das Modell nicht, wie in den bisherigen Kapiteln, von Analysen der Dynamik, sondern von ECMWF-Vorhersagen angetrieben. Dadurch können insbesondere Regionen bestimmt werden, in denen in den folgenden Tagen Gewitter wahrscheinlich sind. Die Stärke der Gewitter und damit verbunden die Stickoxidemissionen können prognostiziert werden. Ebenso kann abgeschätzt werden, in welche Regionen Spurenstoffe transportiert werden. Insgesamt kann die horizontale wie vertikale Verteilung aller im Modell enthaltenen Spurenstoffe für einen bestimmten Zeitpunkt prognostiziert werden. Diese Vorhersagen können bei der Planung von Flugrouten während Messkampagnen hilfreich sein. Je nach wissenschaftlicher Zielsetzung eines Messfluges können so beispielsweise Regionen mit erwarteter starker Gewittertätigkeit angefliegen werden. ECHAM5/NUDGE/MECCA als Vorhersagetool konnte bereits erfolgreich während der beiden TROCCINOX-Messkampagnen zu der Flugroutenplanung eingesetzt werden. Gegenwärtig ist geplant, das testweise aufgebaute Modellsystem zu einem vollständig automatisierten Vorhersage-System weiterzuentwickeln, wie es beispielsweise mit dem MATCH-MPIC Chemietransportmodell vorliegt, welches sehr erfolgreich bei der Begleitung verschiedenster Messkampagnen eingesetzt wird (Lawrence et al., 2003). Zusätzlich ist vorgesehen, dass das neue Vorhersagesystem vollständig interaktiv vom Endanwender (z.B. dem Experimentator vor Ort) genutzt werden kann. Beispielsweise kann eine geplante Flugroute in die Modellvorhersagen eingetragen werden und so im Voraus die simulierten Spurenstoffverteilungen entlang der Flugroute abgelesen werden. Diese Entwicklung wird derzeit in Kooperation mit dem Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz im Rahmen des vom Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) geförderten Projektes „Collaborative Climate Community Data and Processing Grid“ (C³-GRID) durchgeführt.

Literaturverzeichnis

- Allen, D. R., R. M. Bevilacqua, G. E. Nedoluha, C. E. Randall und G. L. Manney (2003), Unusual stratospheric transport and mixing during the 2002 Antarctic winter, *Geophys. Res. Lett.*, **30(12)**, 1599, doi:10.1029/2003GL017117.
- Anderson, J. G., W. H. Brune, S. A. Lloyd, D. W. Toohey, S. P. Sander, W. L. Starr, M. Loewenstein und J. R. Podolske (1989), Kinetics of O₃ destruction by ClO and BrO within the Antarctic vortex: An analysis based on in situ ER-2 data, *J. Geophys. Res.*, **94(D9)**, 11 480–11 520.
- Andreae, M. O. und P. Merlet (2001), Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. Cycles*, **15**, 955–966.
- Arino, O., M. Simon, I. Piccolini und J.-M. Rosaz (2001), The ERS-2 ATSR-2 World Fire Atlas and the ERS-2 ATSR-2 World burnt Surface Atlas Projects, *Proceedings of the 8th ISPRS conference on Physical Measurement and Signatures in Remote Sensing, Aussois*.
- Asselin, R. (1972), Frequency filter for time integrations, *Mon. Wea. Rev.*, **100**, 487–490.
- Baldwin, M. P., T. Hirooka, A. O'Neill, S. Yoden, A. J. Charlton, Y. Hio, W. A. Lahoz und A. Mori (2003), Major stratospheric warming in the southern hemisphere in 2002: Dynamical aspects of the ozone hole split, *SPARC Newsletter*, **20**, SPARC Office, Toronto, ON, Canada, 24–26.
- Barkstrom, B. R. (1984), The Earth Radiation Budget Experiment (ERBE), *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **65**, 1170–1185.
- Bradshaw, J., D. Davis, G. Grodzinsky, S. Smyth, R. Newell, S. Sandholm und S. Liu (2000), Observed distributions of nitrogen oxides in the remote free troposphere from the NASA Global Tropospheric Experiment programs, *Rev. Geophys.*, **38**, 61–116.
- Brasseur, G. P. und S. Solomon (1986), Aeronomy of the middle atmosphere, (second edition), *D. Reidel Publishing Company, Boston*.
- Brasseur, G. P., J.-F. Müller und C. Granier (1996), Atmospheric impact of NO_x emissions by subsonic aircraft: A three-dimensional model study, *J. Geophys. Res.*, **1423–1428**, doi:10.1029/95JD02363.
- Brill, K. F., L. W. Uccellini, J. Manobianco, P. J. Kocin und J. H. Homan (1991), The use of successive dynamic initialization by nudging to simulate cyclogenesis during GALE IOP, 1, *Meteorol. Atmos. Phys.*, **45**, 15–40.

- Buchholz, J. (2005), Simulations of Physics and Chemistry of Polar Stratospheric Clouds with a General Circulation Model, Dissertation, Universität Mainz.
- Chipperfield, M. P., et al. (1997), On the use of HF as a reference for the comparison of stratospheric observations and models, *J. Geophys. Res.*, **102(D11)**, 12 901–12 920.
- Colarco, P. R., M. R. Schoeberl, B. G. Doddridge, L. T. Marufu, O. Torres und E. J. Welton (2004), Transport of smoke from Canadian forest fires to the surface near Washington, D.C.: Injections height, entrainment, and optical properties, *J. Geophys. Res.*, **109**, D06203, doi:10.1029/2003JD004248.
- Dameris, M., V. Grewe, M. Ponater, R. Deckert, V. Eyring, F. Mager, S. Matthes, C. Schnadt, A. Stenke, B. Steil, C. Brühl und M. A. Giorgetta (2005), Long-term changes and variability in a transient simulation with a chemistry-climate model employing realistic forcing, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 2121–2145.
- DeCaria, A. J., K. E. Pickering, G. L. Stenchikov, J. R. Scala, J. L. Stith, J. E. Dye, B. A. Ridley und P. Laroche (2000), A cloud-scale model study of lightning-generated NO_x in an individual thunderstorm during STERAO-A, *J. Geophys. Res.*, **105**, 11 601–11 616.
- Dethof, A., A. Geer, W. Lahoz, F. Goutail, A. Bazureau, D.-Y. Wang und T. von Clarmann (2004), MIPAS temperature validation by the MASI group, Second Workshop on the Atmospheric Chemistry Validation of ENVISAT (ACVE-2), Frascati, Italien, 3–7 Mai.
- Douglas, A. R., M. R. Schoeberl, R. S. Stolarski, J. W. Waters, J. M. Russell, A. E. Roche und S. T. Massie (1995), Interhemispheric differences in springtime production of HCl and ClONO₂ in the polar vortices, *J. Geophys. Res.*, **100(D7)**, 13 967–13 978.
- EMEP (2000), co-operative programme for monitoring and evaluation of the long-range transmission of air pollutants in Europa, Homepage <http://www.emep.int>
- EPA (1989), *The 1985 NAPAP Emissions Inventory (Version 2): Development of the Annual Data and Modelers's Tapes*, EPA Report EPA-600/7-89-012a, Environmental Protection Agency, Washington, D. C.
- EPA (1997), *National Air Pollutant Emission Trends 1900–1996*, EPA Report EPA-454/R-97-011, Environmental Protection Agency, Washington, D. C.
- Farman, J. C., B. G. Gardiner und J. D. Shanklin (1985), Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction, *Nature*, **315**, 207–210.
- Feng, W., M. P. Chipperfield, H. K. Roscoe, J. J. Remedios, A. M. Waterfall, G. P. Stiller, N. Glatthor, M. Höpfner und D.-Y. Wang (2005), Three-Dimensional Model Study of the Antarctic Ozone Hole in 2002 and Comparison with 2000, *J. Atmos. Sci.*, **62**, 822–837,

doi: 10.1175/JAS-3335.1.

- Flannigan, M. D., K. A. Logan and B. D. Amiro (2004), Future area burned in Canada, *Clim. Change*, im Druck.
- Fonteyn, D., P. Berrisford, S. Bonjean, S. Chabrilat, A. Charlton, F. Daerden, Q. Errera und W. Lahoz (2003), Chemical and dynamical data assimilation for the Antarctic winter 2002, *J. Atmos. Sci.*, eingereicht.
- Forster, C., U. Wandinger, G. Wotawa, P. James, I. Mattis, D. Althausen, P. Simmonds, S. O'Doherty, S. G. Jennings, C. Kleefeld, J. Schneider, T. Trickl, S. Kreipl, H. Jäger und A. Stohl (2001), Transport of boreal forest fire emissions from Canada to Europe, *J. Geophys. Res.*, **106(D19)**, 22 887-22 906, doi:10.1029/2001JD900115.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, M. A. F. Silva Dias, P. L. Silva Dias, R. Chatfield, E. Prins, P. Artaxo, G. A. Grell und F. S. Recuero (2005), Monitoring the transport of biomass burning emissions in South America, *Environmental Fluid Mechanics*, **5**, 135–167.
- French, N., P. Goovaerts und E. S. Kasischke (2004), Uncertainty in estimating carbon emissions from boreal forest fires, *J. Geophys. Res.*, **109**, D14S08, doi:10.1029/2003JD003635.
- Frisk, U., et al. (2003), The Odin satellite, I: Radiometer design and test, *Astronomy & Astrophysics*, **402**, L27–L34, doi:10.1051/0004-6361:20030335, 2003.
- Fromm, M., J. Alfred, K. Hoppel, J. Hornstein, R. Bevilacqua, E. Shettle, R. Servranckx, Z. Li und B. Stocks (2000), Observations of boreal forest fire smoke in the stratosphere by POAM III, SAGE II, and lidar in 1998, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 1407–1410.
- Fromm, M., R. Bevilacqua, R. Servranckx, J. Rosen, J. P. Thayer, J. Herman und D. Larko (2005), Pyro-cumulonimbus injection of smoke to the stratosphere: Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3-4 August 1998, *J. Geophys. Res.*, **110**, D08205, doi:10.1029/2004JD005350.
- Galanter, M., H. Levy und G. R. Carmichael (2000), Impacts of biomass burning on tropospheric CO, NO_x, and O₃, *J. Geophys. Res.*, **105**, 6633-6653.
- Gallardo, L. und V. Cooray (1996), Could cloud-to-cloud discharges be as effective as cloud-to-ground discharges in producing NO_x?, *Tellus*, **48B**, 641–651.
- Gillet, N. P., A. J. Weaver, F. W. Zwiers und M. D. Flannigan (2004), Detecting the effect of climate change on Canadian forest fires, *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L18211, doi:10.1029/2004-GL020876.
- Glatthor, N., T. von Clarmann, G. Echle, U. Grabowski und E. Kimmich (2001), Optimized spectral microwindows for midlatitude and polar trace gas retrieval from MIPAS-ENVISAT

- measurements, Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere V, J. E. Russell, K. Schäfer, O. Lado-Bordowsky (Editoren), *Proceedings of SPIE Vol. 4168*, 343–353.
- Glatthor, N., T. von Clarmann, H. Fischer, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, G. Mengistu Tsidu, D.-Y. Wang und B. Funke (2004), Spaceborne CIO observations by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) before and during the Antarctic major warming in September/October 2002, *J. Geophys. Res.*, **109**, D11307, doi:10.1029/2003JD004440.
- Gobiet, A., U. Foelsche, A. K. Steiner, M. Borsche, G. Kirchengast und J. Wickert (2005), Climatological validation of stratospheric temperatures in ECMWF operational analyses with CHAMP radio occultation data, *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L12806, doi:10.1029/2005-GL022617.
- Government of the Northwest Territories (2000), Department of Resources, Wildlife and Economic Development, Archived fire records, Yellowknife.
- Grewe, V. und M. Dameris (1996), Calculating the global mass exchange between stratosphere and troposphere, *Ann. Geophysicae*, **14**, 431,442.
- Grewe, V., D. Brunner, M. Dameris, J. L. Grenfell, R. Hein, D. Shindell und J. Staehelin (2001), Origin and variability of upper tropospheric nitrogen oxides and ozone at northern mid-latitudes, *Atmos. Environ.*, **35**, 3421–3433.
- Grooß, J.-U. (1996), Modelling of Stratospheric Chemistry based on HALOE/UARS Satellite Data, Dissertation, Universität Mainz.
- Grooß, J.-U., R. B. Pierce, P. J. Crutzen, W. L. Grose und J. M. Russell III (1997), Reformation of chlorine reservoirs in southern hemisphere polar spring, *J. Geophys. Res.*, **102**, 13 141–13 152.
- Grooß, J.-U., P. Konopka und R. Müller (2005), Ozone Chemistry during the 2002 Antarctic Vortex Split, *J. Atmos. Sci.*, **62(3)**, 860–870, doi: 10.1175/JAS-3330.1.
- Haynes, P. H., M. E. McIntyre, T. G. Shepherd, C. J. Marks und K. P. Shine (1991), On the ‘Downward Control’ of Extratropical Diabatic Circulations by Eddy-Induced Mean Zonal Forces, *J. Atmos. Sci.*, **48(4)**, 651–680.
- Hein, R., M. Dameris, C. Schnadt, C. Land, V. Grewe, I. Köhler, M. Ponater, R. Sausen, B. Steil, J. Landgraf und C. Brühl (2001), Results of an interactively coupled atmospheric chemistry - general circulation model: Comparison with observations, *Ann. Geophysicae*, **19**, 435-457.
- Höller, H. (1996), LINOX – Wissenschafts- und Operationsplan, DLR-Report Nr. 60.

- Höller, H. und U. Schumann (Editoren) (2000), EULINOX (European Lightning Nitrogen Oxides Project) Final Report 1998–1999, DLR–Forschungsbericht 2000–28, 240 Seiten.
- Höpfner, M., T. von Clarmann, H. Fischer, N. Glatthor, U. Grabowski, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, D. Y. Wang und B. Funke (2004), First spaceborne observations of Antarctic stratospheric ClONO₂ recovery: Austral spring 2002, *J. Geophys. Res.*, **109**, D11308, doi:10.1029/2004JD004609.
- Hoppel, K., R. Bevilacqua, D. Allen, G. Nedoluha und C. Randall (2003), POAM–III observations of the anomalous 2002 Antarctic ozone hole, *Geophys. Res. Lett.*, **30(7)**, 1394, doi:10.1029/2003GL016899.
- Huffman, G. J., R. F. Adler, P. Arkin, A. Chang, R. Ferraro, A. Gruber, J. Janowiak, A. McNab, B. Rudolf und U. Schneider (1997), The Global Precipitation Climatology Project (GPCP) Combined Precipitation Data Set, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **78(1)**, 5–20.
- Huntrieser, H., H. Schlager, C. Feigl und H. Höller (1998), Transport and production of NO_x in electrified thunderstorms: Survey of previous studies and new observations at midlatitudes, *J. Geophys. Res.*, **103**, 28 247–28 364.
- Huntrieser, H., C. Feigl, H. Schlager, F. Schröder, C. Gerbig, P. van Velthoven, F. Flatøy, C. Théry, A. Petzold, H. Höller und U. Schumann (2002), Airborne measurements of NO_x, tracer species and small particles during the European Lightning Nitrogen Oxides Experiment, *J. Geophys. Res.*, **107**, doi:10.1029/2000JD000209.
- Isaksen, I. S. A. (Editor) (2000), AEROCHEM-II, Modelling of the impact on ozone and other chemical compounds in the atmosphere from airplane emissions, May 1998–April 1999, Final Report.
- Jacob, D. J. (1999), Introduction to Atmospheric Chemistry, *Princeton University Press*.
- Jaeglé, L., D. J. Jacob, Y. Wang, A. J. Weinheimer, B. A. Ridley, T. L. Campos, G. W. Sachse und D. E. Hagen (1998), Sources and chemistry of NO_x in the upper troposphere over the United States, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 1709–1712.
- Jeuken, A. B. M., P. C. Siegmund, L. C. Heijboer, J. Feichter und L. Bengtsson (1996), On the potential of assimilating meteorological analyses in a global climate model for the purpose of model validation, *J. Geophys. Res.*, **101**, 16 939–16 950.
- Jöckel, P., R. Sander, A. Kerkweg, H. Tost und J. Lelieveld (2005), Technical Note: The Modular Earth Submodel System (MESSy) - a new approach towards Earth System Modeling, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 433–444.

- Kaas, E., A. Guldborg, W. May und M. Déqué (1999), Using tendency errors to tune the parameterisation of unresolved dynamical scale interactions in atmospheric general circulation models, *Tellus*, **51A**, 612–629.
- Kasibhatla, P. S., H. Levy, W. J. Moxim und W. L. Chameides (1991), The relative impact of stratospheric photochemical production on tropospheric NO_y levels: a model study, *J. Geophys. Res.*, **96**, 18 631–18 646.
- Krüger, K., B. Naujokat und K. Labitzke (2005), The Unusual Midwinter Warming in the Southern Hemisphere Stratosphere 2002: A Comparison to Northern Hemisphere Phenomena, *J. Atmos. Sci.*, **62**, 603–613, doi:10.1175/JAS-3316.1.
- Kuo, Y. H. und Y. R. Guo (1989), Dynamic initialization using observations from a network of profilers and its impact on short-range numerical weather prediction, *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1975–1998.
- Kurz, C. und V. Grewe (2002), Lightning and thunderstorms, Part I, Observational data and model results, *Met. Zeitschrift*, **11**, 379–393.
- Labitzke, K. (1982), On the interannual variability of the middle stratosphere during the northern winters, *J. Meteor. Soc. Japan*, **60**, 124–139.
- Labrador, L. J., R. von Kuhlmann und M. G. Lawrence (2005), The effects of lightning-produced NO_x and its vertical distribution on atmospheric chemistry: sensitivity simulations with MATCH-MPIC, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 1815–1834.
- Lacis, A. W., D. J. Wuebbles und J. A. Logan (1990), Radiative Forcing of Climate by Changes in the Vertical Distribution of Ozone, *J. Geophys. Res.*, **95**, 18 631–18 646.
- Lahoz, W. A., A. O'Neill, A. Heaps, V. D. Pope, R. Swinbank, R. S. Harwood, L. Froidevaux, W. G. Read, J. W. Waters und G. E. Peckham (1996), Vortex dynamics and the evolution of water vapour in the stratosphere of the southern hemisphere, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **112**, 423–450.
- Land, C. (1999), Untersuchungen zum globalen Spurenstofftransport mit dem Atmosphärenmodell ECHAM4.L39(DLR), *DLR Forschungsbericht, ISSN 1434-8454*.
- Land, C., J. Feichter und R. Sausen (2002), Impact of vertical resolution on the transport of passive tracers in the ECHAM4 model, *Tellus(B)*, **54(4)**, 344–360.
- Lavoué, D. C., C. Lioussé, H. Cachier, B. J. Stocks und J. G. Goldammer (2000), Modelling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes, *J. Geophys. Res.*, **105**, 26 871–26 890.

- Lawrence, M. G., W. L. Chameides, P. S. Kasibhatla, H. Levy II und W. Moxim (1995), Lightning and atmospheric chemistry: The rate of atmospheric NO production, vol. I, 189–202, CRC Press, Inc.
- Lawrence, M. G., P. J. Rasch, R. von Kuhlmann, J. Williams, H. Fischer, M. de Reus, J. Lelieveld, P. J. Crutzen, M. Schultz, P. Stier, H. Huntrieser, J. Heland, A. Stohl, C. Forster, H. Elbern, H. Jakobs und R. R. Dickerson (2003), Global chemical weather forecasts for field campaign planning: predictions and observations of large-scale features during MINOS, CONTRACE, and INDOEX, *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 267–289.
- Lawrence, M. G. und P. J. Rasch (2005), Tracer Transport in Deep Convective Updrafts: Plume Ensemble versus Bulk Formulations, *J. Atmos. Sci.*, **62(8)**, 2880–2894, doi: 10.1175/JAS3505.1.
- Levèvre, F., G. P. Brasseur, I. Folkins, A. K. Smith und P. Simon (1994), Chemistry of the 1991/1992 stratospheric winter: Three-dimensional model simulations, *J. Geophys. Res.*, **99**, 8183–8195.
- Lin, S. J. und R. B. Rood (1996), Multidimensional flux form semi-Lagrangian transport, *Mon. Wea. Rev.*, **124**, 2046–2068.
- Lohmann, U. und E. Roeckner (1996), Design and performance of a new cloud microphysics parameterization developed for the ECHAM4 general circulation model, *Climate Dyn.*, **12**, 557–572.
- Majewski, D. (1985), Balanced initial and boundary values for a limited area model, *Beitr. Phys. Atmosph.*, **58**, 147.
- Manney, G. L., J. L. Sabutis, D. R. Allen, W. A. Lahoz, A. A. Scaife, C. E. Randall, S. Pawson, B. Naujokat und R. Swinbank (2005), Simulations of Dynamics and Transport during the September 2002 Antarctic Major Warming, *J. Atmos. Sci.*, **62(3)**, 690–707, doi:10.1175/JAS-3313.1.
- Matsuno, T. (1971), A dynamical model of sudden stratospheric warming, *J. Atmos. Sci.*, **28**, 1479–1494.
- Meilinger, S. K. (2000), Heterogeneous Chemistry in the Tropopause Region: Impact of Aircraft Emissions, Dissertation, ETH Zürich, Schweiz.
- Michelsen, H. A. III und C. M. Spivakovsky (1999), Maintenance of high HCl/Cl_y and NO_x/NO_y in the Antarctic vortex: A chemical signature of confinement during spring, *J. Geophys. Res.*, **104**, 26 419–26 436.

- Mickley, L. J., J. P. D. Abbatt, J. E. Frederick und J. M. Russell III (1997), Evolution of chlorine and nitrogen species in the lower stratosphere during Antarctic spring: Use of tracers to determine chemical change, *J. Geophys. Res.*, **102(D17)**, 21 479–21 492.
- Murtagh, D., et al. (2002), An overview of the Odin atmospheric mission, *Can. J. Phys.*, **80**, 309–319, doi: 10.1139/P01-157.
- Newman, P. A., E. R. Nash und J. E. Rosenfield (2001), What controls the temperature of the Arctic stratosphere during the spring?, *J. Geophys. Res.*, **106**, 19 999–20 010.
- Nishii K. und H. Nakamura (2004), Tropospheric influence on the diminished Antarctic ozone hole in September 2002, *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L16103, doi:10.1029/2004GL019532.
- Økland, H. (1970), On the adjustment toward balance in primitive equation weather prediction models, *Mon. Wea. Rev.*, **98**, 271–279.
- Olivier, J. G. J. und J. J. M. Berdowski (2001), Global emissions sources and sinks. In: Berdowski, J., Guicherit, R. und B. J. Heij (Editoren) “The Climate System”, Seiten 33-78. A. A. Balkema Publishers/Swets and Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands. ISBN 90 5809 255 0.
- Pickering, K. E., Y. Wang, W. K. Tao, C. Price und J. F. Müller (1998), Vertical distribution of lightning NO_x for use in regional and global chemical transport models, *J. Geophys. Res.*, **103**, 31 203–31 216.
- Plumb, R. A., W. Heres, J. L. Neu, N. M. Mahowald, J. del Corral, G. C. Toon, E. Ray, F. Moore und A. E. Andrews (2002), Global tracer modeling during SOLVE: High-latitude descent and mixing, *J. Geophys. Res.*, **107**, 8309, doi:10.1029/2001JD001023.
- Price, C. und D. Rind (1992), A simple lightning parameterization for calculating global lightning distributions, *J. Geophys. Res.*, **90**, 9919–9933.
- Price, C. und D. Rind (1993), What determines the cloud-to-ground lightning fraction in thunderstorms?, *Geophys. Res. Lett.*, **20**, 463–466.
- Price, C., J. Penner und M. Prather (1997a), NO_x from lightning, Part I: Global distributions based on lightning physics, *J. Geophys. Res.*, **102**, 5929–5941.
- Price, C., J. Penner und M. Prather (1997b), NO_x from lightning, Part II: Constraints from the global atmospheric electric circuit, *J. Geophys. Res.*, **102**, 5943–5951.
- Randall, C. E., G. L. Manney, D. R. Allen, R. M. Bevilacqua, J. Hornstein, C. Trepte, W. Laho, J. Ajtic und G. Bodeker (2005), Reconstruction and Simulation of Stratospheric Ozone Distributions during the 2002 Austral Winter, *J. Atmos. Sci.*, **62(3)**, 748–764, doi:10.1175/JAS-3336.1.

- Reithmeier, C. und R. Sausen (2002), ATTLA: atmospheric tracer transport in a Lagrangian model, *Tellus B*, **54(3)**, 278–299.
- Ricaud, P., et al. (2005), Polar vortex evolution during the 2002 Antarctic major warming as observed by the Odin satellite, *J. Geophys. Res.*, **110**, D05302, doi:10.1029/2004JD005018.
- Robert, A. J., J. Henderson und C. Turnbull (1972), An implicit time integration scheme for baroclinic models in the atmosphere, *Mon. Wea. Rev.*, **100**, 329–335.
- Roeckner, E., K. Arpe, L. Bengtsson, S. Brinkop, L. Dümenil, M. Esch, E. Kirk, F. Lunkeit, M. Ponater, B. Rockel, R. Sausen, U. Schlese, S. Schubert und M. Windelband (1992), Simulation of the present-day climate with the ECHAM model: impact of model physics and resolution, *Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, Report No. 93, ISSN 0937-1060*.
- Roeckner, E., G. Bäuml, L. Bonaventura, R. Brokopf, M. Esch, M. Giorgetta, S. Hagemann, I. Kirchner, L. Kornblueh, E. Manzini, A. Rhodin, U. Schlese, U. Schulzweida und A. Tompkins (2003), The atmospheric general circulations model ECHAM5 Part I: Model description, *Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, Report No. 349*.
- Roeckner, E., R. Brokopf, M. Esch, M. Giorgetta, S. Hagemann, L. Kornblueh, E. Manzini, U. Schlese und U. Schulzweida (2004), The atmospheric general circulation model ECHAM5 Part II: Sensitivity of simulated climate to horizontal and vertical resolution, *Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, Report No. 354*.
- Roche, A. E., J. B. Kumer und J. L. Mergenthaler (1993), CLAES observations of ClONO₂ and HNO₃ in the antarctic stratosphere, between June 15 and September 17, 1992, *Geophys. Res. Lett.*, **20(12)**, 1223–1226.
- Sander, R. und P. J. Crutzen (1996), Model study indicating halogen activation and ozone destruction in polluted air masses transported to the sea, *J. Geophys. Res.*, **101D**, 9121–9138.
- Sander, R., A. Kerkweg, P. Jöckel und J. Lelieveld (2005), Technical note: The new comprehensive atmospheric chemistry module MECCA, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 445–450.
- Sandu, A., J. G. Verwer, J. G. Blom, E. J. Spee, G. R. Carmichael und F. A. Potra (1997), Benchmarking stiff ODE solvers for atmospheric chemistry problems II: Rosenbrock solvers, *Atmos. Environ.*, **31**, 3459–3472.
- Santee, M. L., G. L. Manney, J. W. Waters und N. J. Livesey (2003), Variations and climatology of ClO in the polar lower stratosphere from UARS Microwave Limb Sounder measurements, *J. Geophys. Res.*, **108(D15)**, 4454, doi:10.1029/2002JD003335.

- Schmitt, A. und B. Brunner (1997), Emissions from aviation and their development over time, *Pollutants from Air Traffic – Results of Atmospheric Research 1992-1997*, DLR-Mitteilung 97-04, ISSN 1434-8462.
- Schlager, H., A. Roiger, M. Lichtenstern und P. Stock (2004), TROCCINOX Annual Report No. 2, WP4: The Field Campaign – Falcon measurements, 42–52.
- Simmons, A. J., D. M. Burridge, M. Jarraud, C. Girard und W. Wergen (1989), The ECMWF medium-range prediction models: development of the numerical formulations and the impact of increased resolution, *Meteorol. Atmos. Phys.*, **40**, 28–60.
- Simmons, A., M. Hortal, G. Kelly, A. McNally, A. Untch und S. Uppala (2005), ECMWF Analyses and Forecasts of Stratospheric Winter Polar Vortex Breakup: September 2002 in the Southern Hemisphere and Related Events, *J. Atmos. Sci.*, **62(3)**, 668–689, doi:10.1175/JAS-3322.1.
- Sinnhuber, B., M. Weber, A. Amankwah, und J. P. Burrows (2003), Total ozone during the unusual Antarctic winter of 2002, *Geophys. Res. Lett.*, **30(11)**, 1580, doi:10.1029/2002GL-016798.
- Sohn, B.-J. (1994), Temperature-Moisture Biases in ECMWF Analyses Based on Clear Sky Longwave Simulations Constrained by SSMI and MSU Measurements and Comparisons to ERBE Estimates, *J. Climate*, **7(11)**, 1707–1718.
- Spichtinger, N., M. Wenig, P. James, U. Platt und A. Stohl (2001), Satellite detection of a continental-scale plume of nitrogen oxides from boreal forest fires, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 4579–4583.
- Steil, B., M. Dameris, C. Brühl, P. J. Crutzen, V. Grewe, M. Ponater und R. Sausen (1998), Development of a chemistry module for GCMs: First results of a multiannual integration, *Ann. Geophysicae*, **16**, 205–228.
- Steil, B., C. Brühl, E. Manzini, P. J. Crutzen, J. Lelieveld, P. J. Rasch, E. Roeckner und K. Krüger (2003), A new interactive chemistry-climate model: 1. Present-day climatology and interannual variability of the middle atmosphere using the model and 9 years of HALOE/UARS data, *J. Geophys. Res.*, **108(D9)**, doi:10.1029/2002JD002971.
- Stiller, G. P., T. von Clarmann, H. Fischer, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, M. Kiefer, S. Kellmann, A. Linden, G. Mengistu, M. Milz und T. Steck (2002), Early IMK MIPAS/ENVISAT results, in *Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere VII*, 24–27 September 2002, Kreta, Griechenland, K. Schäfer und O. Lado-Bordowsky (Editoren), *Proceedings of SPIE*, **4882**.

- Stocks, B. J., M. A. Fosberg und T. J. Lynham (1998), Climate change and forest fire potential in Russian and Canadian boreal forests, *Clim. Change*, **38**, 1–13.
- Stohl, A., C. Forster, A. Frank, P. Seibert und G. Wotawa (2005), Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 2461–2474.
- Tibaldi, S., T. N. Palmer, C. Brankovic und U. Cubasch (1990), Extended-range predictions with ECMWF models: Influence of horizontal resolution on systematic error and forecast skill, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **116(494)**, 835–866.
- Tiedtke, M. (1989), A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1779–1800.
- Toon, G. C., C. B. Farmer, P. W. Schaper, J.-F. Blavier und L. L. Lowes (1989), Ground-based infrared measurements of tropospheric source gases over Antarctica during the 1986 austral spring, *J. Geophys. Res.*, **94(D9)**, 11 613–11 624.
- Traub, M. (2004), Lagrangian transport evaluation of atmospheric chemistry in the Mediterranean region, Dissertation, Universität Mainz.
- United Nations Economic Commission for Europe (1999), Timber Bulletin, Forest fire statistics 1996–1998, **52**.
- van Aalst, M. K., M. M. P. van den Broek, A. Bregman, C. Brühl, B. Steil, G. C. Toon, S. Garcelon, G. M. Hansford, R. L. Jones, T. D. Gardiner, G. J. Roelofs, J. Lelieveld und P. J. Crutzen (2004), Trace gas transport in the 1999/2000 Arctic winter: comparison of nudged GCM runs with observations, *Atmos. Chem. Phys.*, **4**, 81–93.
- van Aalst, M. K., J. Lelieveld, B. Steil, C. Brühl, P. Jöckel, M. A. Giorgetta und G.-J. Roelofs (2005), Stratospheric temperatures and tracer transport in a nudged 4-year middle atmosphere GCM simulation, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **5**, 961–1006.
- van den Broek, M. M. P., M. K. van Aalst, A. Bregman, M. Krol, J. Lelieveld, G. C. Toon, S. Garcelon, G. M. Hansford, R. L. Jones und T. D. Gardiner (2003), The impact of model grid zooming on tracer transport in the 1999/2000 Arctic polar vortex, *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 1833–1847.
- Verwer, J. G., E. J. Spee, J. G. Blom und W. H. Hundsdorfer (1999), A second order Rosenbrock method applied to photochemical dispersion problems, *SIAM J. Sci. Comput.*, **20**, 1456–1480.
- Vignes, O. (1999), A parallel test of the HIRLAM 3D-Var data assimilation system and the operational DNMI system, *DNMI Research Report no. 90*.

- von Clarmann, et al. (2003), Retrieval of temperature and tangent altitude pointing from limb emission spectra recorded from space by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), *J. Geophys. Res.*, **180(D23)**, 4736, doi:10.1029/2003JD003602.
- von Glasow, R., R. Sander, A. Bott und P. J. Crutzen (2002), Modeling halogen chemistry in the marine boundary layer, 1. Cloud-free MBL, *J. Geophys. Res.*, **107D**, 4341, doi:10.1029/2001JD000942.
- von Kuhlmann, R., M. G. Lawrence, P. J. Crutzen und P. J. Rasch (2003), A model for studies of tropospheric ozone and nonmethane hydrocarbons: Model description and ozone results, *J. Geophys. Res.*, **108D**, doi:10.1029/2002JD002893.
- Wang, W.-C. und N. D. Sze (1980), Coupled effects of atmospheric N₂O and O₃ on the Earth's climate, *Nature*, **286**, 589–590.
- Waugh, D. W. und W. J. Randel (1999), Climatology of Arctic and Antarctic Polar Vortices Using Elliptical Diagnostics, *J. Atmos. Sci.*, **56**, 1594–1613.
- Wotawa, G. und M. Trainer (2000), The influence of Canadian forest fires on pollutant concentrations in the United States, *Science*, **288**, 324–328.
- Wotawa, G., P. C. Novelli, M. Trainer und C. Granier (2001), Interannual variability of summertime CO concentrations in the Northern Hemisphere explained by boreal forest fires in North America and Russia, *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 4575–4578.
- Wotton, B. M. und M. D. Flannigan (1993), Length of the fire season in a changing climate, *For. Chron.*, **69**, 187–192.
- Xu, K.-M., et al. (2005), Modeling springtime shallow frontal clouds with cloud-resolving and single-column models, *J. Geophys. Res.*, **110**, D15S04, doi:10.1029/2004JD005153.
- Yurganov, L. N., et al. (2004), A quantitative assessment of the 1998 carbon monoxide emission anomaly in the Northern Hemisphere based on total column and surface concentration measurements, *J. Geophys. Res.*, **109**, D15305, doi:10.1029/2004JD004559.
- Zou, X., I. M. Navon und F. X. Ledimet (1992), An optimal nudging data assimilation scheme using parameter estimation, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **118**, 1163–1186.

Abkürzungen

Abkürzung	Erklärung
ASR	Absorbed Solar Radiation
ATSR	Along Track Scanning Radiometer
ATTILA	Atmospheric Tracer Transport in a Lagrangian Model
BASCOE	Belgian Assimilation System for Chemical Observations from Envisat
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
C ³ -GRID	Collaborative Climate Community Data and Processing Grid
CAPE	Convective Available Potential Energy
CCM	Climate Chemistry Model
CONTRACE	Convective Transport of Trace Gases into the Middle and Upper Troposphere over Europe
CTH	Cloud Top Height (Blitzparametrisierung)
CTM	Chemistry Transport Model
ECMWF	European Centre for Medium Range Weather Forecasts
EDGAR	Emission Database for Global Atmospheric Research
EMEP	European Monitoring and Evaluation Program
ENVISAT	Environmental Satellite
EPA	Environmental Protection Agency
ERBE	Earth Radiation Budget Experiment
ESPERE	Environmental Science Published for Everybody Round the Earth
EULINOX	European Lightning Nitrogen Oxides Project
GCE	Goddard Cumulus Ensemble
GHRC	Global Hydrology Resource Center
GOES	Geostationary Operational Environmental Satellite
GPCP	Global Precipitation Climatology Project
HALOE	Halogen Occultation Experiment
INDOEX	Indian Ocean Experiment

Abkürzung	Erklärung
LIDAR	Light Detection And Ranging
LINOX	Lightning produced Nitrogen Oxides (NO _x)
LIS	Lightning Imaging Sensor
LNB	Level of Neutral Buoyancy
MECCA	Module Efficiently Calculating the Chemistry of the Atmosphere
MESSy	Modular Earth Submodel Systems
MINOS	Mediterranean Intensive Oxidant Study
MIPAS	Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding
MLS	Microwave Limb Sounder
MODIS	Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer
MPIC	Max-Planck Institut für Chemie
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NESDIS	National Environmental Satellite, Data, and Information Service
NMHC	Non Methane HydroCarbons
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
OLR	Outgoing Longwave Radiation
OTD	Optical Transient Detector
PSC	Polar Stratospheric Cloud
RMS	Relative Root Mean Square (Differences)
SMR	SubMillimeter Radiometer
SSM/I	Special Sensor Microwave/Imager
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
TPW	Total Precipitable Water
TROCCINOX	Tropical Convection, Cirrus and Nitrogen Oxides Experiment
UNECE	United Nations Economic Commission for Europe
UPD	Updraft (Blitzparametrisierung)

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name Christian Günther Kurz
geboren am 13. November 1973
in Fürstenfeldbruck
Familienstand ledig

Schulbildung

1980 – 1983 Grundschule Koblenz-Arenberg
1983 – 1984 Grundschule Warendorf/Freckenhorst
1984 – 1993 Gymnasium Laurentianum Warendorf
Juni 1993 Abitur

Grundwehrdienst

1993 – 1994 Jägerbataillon 511, Flensburg

Studium

11/1994 – 05/2001 Studium der Meteorologie, Ludwig-Maximilians-Universität München
Mai 2001 Diplom in Meteorologie
seit Mai 2004 Promotionsstudium an der Ludwig-Maximilians-Universität München

Wissenschaftliche Tätigkeit

seit Dez. 1999 Mitarbeiter am Institut für Physik der Atmosphäre,
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt, Oberpfaffenhofen

