

**Untersuchungen zum globalen
Spurenstofftransport
und
Stratosphären-Troposphären-Austausch
mit dem
Lagrangeschen Modell ECHAM4/ATTILA**

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

Christian Reithmeier

Institut für Physik der Atmosphäre
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) e.V.
D-82234 Weßling

Oberpfaffenhofen 2001

Gutachter der Dissertation:

Erster Gutachter: Prof. Dr. R. Sausen

Zweiter Gutachter: Prof. Dr. J. Egger

Tag der Abgabe: 9. Februar 2001

Tag der mündlichen Prüfung: 17. Mai 2001

ECHAM, Lagrangescher Transport, Trajektorien, Alter der Luft, Stratosphären-Troposphären-Austausch

Untersuchungen zum globalen Spurenstofftransport und Stratosphären-Troposphären-Austausch mit dem Lagrangeschen Modell ECHAM4/ATTILA

Kurzzusammenfassung

Untersuchungen zum globalen Klima, die auch die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre berücksichtigen, involvieren eine große Anzahl zu transportierender Spurenstoffe. Deshalb wurde in dieser Arbeit das Lagrangesche Transportschema ATTILA entwickelt, das online im Klimamodell ECHAM4 läuft und somit effizient für derartige Studien eingesetzt werden kann. In dieser Arbeit werden die Probleme, die beim Einsatz Lagrangescher Methoden auf globaler und langfristiger Skala entstehen, diskutiert und die in ATTILA angewandten Lösungen ausführlich beschrieben. Transportexperimente mit sowohl kurzlebigen als auch langlebigen Tracern ergaben, dass ATTILA weitaus weniger diffusiv ist als das semi-Lagrangesche Schema, welches standardmäßig in ECHAM verwendet wird. Es konnte gezeigt werden, dass der in ECHAM erhöhte meridionale Transport im Tropopausenbereich und der zu starke Abwärtsfluss durch die Tropopause nicht auf eine zu starke Meridionalzirkulation in ECHAM zurückzuführen ist, sondern im Wesentlichen das Ergebnis der numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas ist. Ferner wurden in dieser Arbeit durch die Analyse von Trajektorien und die Berechnung von Altersspektren und Massenflüssen Untersuchungen zur stratosphärischen Dynamik durchgeführt.

ECHAM, Lagrangian transport, trajectories, age of air, stratosphere-troposphere-exchange

Investigating the global transport of trace species and the stratosphere-troposphere-exchange with the Lagrangian model ECHAM4/ATTILA

Short Abstract

Investigating the chemical composition of the atmosphere and its influence on the global climate involves a large number of trace species. Therefore, the Lagrangian transport scheme ATTILA has been developed in this thesis. ATTILA runs online in the general circulation model ECHAM4 and, thus, can be used efficiently for studies involving many tracers. The present study discusses the problems which arise when applying Lagrangian methods on long range and global scale, and describes in detail the solutions developed for ATTILA. Transport experiments with both short-lived and long-lived tracers clearly show that ATTILA is numerically much less diffusive than the operational semi-Lagrangian scheme of ECHAM. It could be shown that the enhanced meridional transport in the tropopause region and the overestimated downward flux through the tropopause in ECHAM is rather due to the numerical properties of the semi-Lagrangian scheme than due to an incorrect circulation. Furthermore, the stratospheric dynamics has been investigated in this study by analysing trajectories and by calculating age spectra and mass fluxes.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	x
Abstract	xii
1 Einleitung	1
2 Entwicklung und Implementation eines Lagrangeschen Transportschemas in das Klimamodell ECHAM4: Modellbeschreibung	10
2.1 Das atmosphärische Zirkulationsmodell ECHAM4	10
2.2 Der Lagrangesche Ansatz	13
2.3 Das Ausgangsmodell STOCHEM	15
2.4 Das Lagrangesche Advektionsschema ATTILA	16
2.4.1 Allgemeines	16
2.4.2 Zur Benutzung des ECHAM Modellgitters in ATTILA	17
2.4.3 Berechnung der Trajektorien	18
i. Advektion durch den skaligen Wind	19
ii. Allgemeine subskalige Turbulenz	20
iii. Grenzschichtturbulenz	22
iv. Langzeitentwicklung der Trajektorien	23
2.4.4 Austausch zwischen den Luftpaketen	26
2.4.5 Subskalige Konvektion	29
2.4.6 Quellen und Senken	33
2.4.7 Berechnung der Grenzschichthöhe	33
2.4.8 Modell-Output	34
2.4.9 Rechenzeitbedarf und Parallelisierbarkeit	35
3 Globaler Spurenstofftransport	39
3.1 Durchgeführte Experimente und ihre Bedeutung	39
3.2 Der fiktive Spurenstoff “NO _x aus tropischen Blitzen”	41
3.2.1 Aufbau des Simulationsexperimentes	42
3.2.2 Ergebnis der Simulation	42
3.3 Simulation von ²²² Rn	43
3.3.1 Quellen und Senken von ²²² Rn	43
3.3.2 Aufbau des Simulationsexperimentes	45

3.3.3	Vergleich von globalen Verteilungen (ATTILA vs. SLT)	46
3.3.4	Vergleich mit Beobachtungen	49
	i. Flächengemittelte Bodenkonzentrationen	49
	ii. Zeitreihen an verschiedenen Stationen	50
	iii. Vertikalprofile	58
3.3.5	Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse	61
3.4	Simulation von ^{14}C aus Atomwaffentests	63
3.4.1	Quellen und Senken von ^{14}C	63
3.4.2	Aufbau des Simulationsexperimentes	64
	i. Anfangsverteilung	64
	ii. Behandlung des Kohlenstoffkreislaufes	65
3.4.3	Ergebnis der Simulation	66
3.4.4	Vergleich mit Vertikalprofilen	68
3.4.5	Einfluss der Diffusionsparameterisierung auf die Ergebnisse	71
3.4.6	Zusammenfassung der Ergebnisse	74
3.5	Simulation von SF_6	75
3.5.1	Quellen und Senken	75
3.5.2	Aufbau des Simulationsexperimentes	77
3.5.3	Ergebnisse der Simulation und Diskussion	77
	i. Stationsmessungen	77
	ii. Meridionale Profile über dem Atlantik und Pazifik	78
	iii. Vertikalprofile	80
3.6	Zusammenfassung der Experimente	82
4	Das Alter der stratosphärischen Luft	85
4.1	Hintergrund	85
4.2	Das Alter der Luft aus SF_6 -Simulationen	86
4.3	Das Alter der Luft aus Trajektorienrechnungen	87
4.4	Vergleich mit Beobachtungen und Diskussion	90
4.5	Altersspektren	93
4.6	Altersstruktur und Dynamik der polaren Stratosphäre	95
4.7	Fazit	99

5	Stratosphären-Troposphären-Austausch	103
5.1	Einleitung	103
5.2	Einfluss der subskaligen Konvektion	110
5.3	Berechnung von Massenflüssen	112
5.4	Vergleich der Ergebnisse mit anderen Studien	116
5.5	Charakterisierung der Lagrangeschen Zirkulation in der Stratosphäre	119
5.5.1	Trajektorienanalyse in der Oberwelt	119
5.5.2	Trajektorienanalyse in der Stratosphäre	122
5.6	Horizontale Verteilung der Massenflüsse	124
5.7	Zusammenfassung der Ergebnisse	127
6	Zusammenfassung und Ausblick	131
A	Details zur Berechnung der Trajektorien	138
A.1	Das Runge-Kutta-Verfahren 4. Ordnung	138
A.2	Die kubisch Hermitesche Interpolation	139
A.3	Über die Anhäufung von Trajektorien in der Grenzschicht	141
B	Details zum Austausch zwischen Luftpaketen	144
B.1	Massenerhaltung	144
B.2	Zusammenhang zwischen Mischungsparameter und Diffusionskoeffizient	144
C	Details zur Berechnung der Grenzschichthöhe	146
D	Paralleles Rechnen und das Gesetz von Amdahl	148
E	Theoretische Grundlagen zum Alter der Luft	150
E.1	Theorie	150
E.2	Berechnung des mittleren Alters mittels Tracer	151
E.3	Fehlerabschätzung für SF ₆	152
E.3.1	Fehler durch quadratischen Anstieg	153
E.3.2	Fehler durch mangelnde Konvergenz	155
	Symbole	157
	Abkürzungen	160

Literaturverzeichnis	162
Danksagung	177
Lebenslauf	179

Tabellenverzeichnis

2.1 Wahl der Glättungsparameter in ATTILA	34
3.1 Verteilung der ^{222}Rn -Emissionen	45
3.2 Bodenkonzentrationen von ^{222}Rn in verschiedenen Regionen	49
3.3 Anpassungszeiten für den $^{14}\text{CO}_2$ -Gehalt	68
3.4 Übersicht über die Sensitivitätsexperimente zur Diffusion	72
4.1 Beobachtetes mittleres Alter der Luft	91

Abbildungsverzeichnis

2.1 Anfangsverteilung der Trajektorien	18
2.2 Zeitliche Entwicklung der Trajektorienverteilung	24
2.3 Verteilung der Trajektorien nach 10 und 30 Jahren	25
2.4 Mischungsparameter d nach Smagorinsky	29
2.5 Subskalige Konvektion in ATTILA	30
2.6 Gewichtsfunktion bei der Glättung	34
2.7 Programmumfang und Rechenzeit	35
2.8 Rechenzeitbedarf und Parallelisierbarkeit	36
2.9 Rentabilität von ATTILA	37
3.1 Verteilung des "tropische Blitze"-Tracers	43
3.2 Zonal gemittelte Verteilung von ^{222}Rn im Nordsommer	46
3.3 Mittlere Verteilung von ^{222}Rn im Juli bei 100 hPa	48
3.4 Standorte der ^{222}Rn -Messstationen	50
3.5 Bodenkonzentrationen von ^{222}Rn an verschiedenen Stationen	51
3.6 Vertikalprofile von ^{222}Rn im Sommer	60
3.7 Anfangsverteilung von $^{14}\text{CO}_2$ aus Atomwaffentests (Oktober 1963)	64
3.8 Schematische Darstellung des Kohlenstoffkreislaufes	65

3.9	Zeitliche Entwicklung des globalen $^{14}\text{CO}_2$ -Gehaltes	67
3.10	Vertikalprofile von $^{14}\text{CO}_2$ in verschiedenen Breiten	69
3.11	Vertikalprofile von $^{14}\text{CO}_2$ bei verschiedenen Diffusionskoeffizienten	73
3.12	Geographische Verteilung der SF_6 -Emissionen	78
3.13	Bodenkonzentrationen von SF_6 an verschiedenen Stationen	79
3.14	Meridionalprofile von SF_6 im Atlantik und Pazifik	80
3.15	Vertikalprofile von SF_6	81
4.1	Alter der Luft aus SF_6 -Simulationen	88
4.2	Alter der Luft aus Trajektorienrechnungen	89
4.3	Altersspektrum an der tropischen Tropopause	90
4.4	Zonal gemittelttes Altersspektrum bei 50 hPa	94
4.5	Vertikale Altersstruktur in 70°S – 90°S	96
4.6	Zeitliche Entwicklung des Altersspektrums in 70°S – 90°S	97
4.7	Trajektorien vom/zum Polarwirbel	98
4.8	Zonalwind in der Stratosphäre	100
5.1	Lage der thermischen Tropopause in ECHAM	104
5.2	Häufigkeit des Auftretens hochreichender Konvektion	111
5.3	Massenflüsse durch die Tropopause und durch 380 K	113
5.4	Illustration zur Reduzierung der Massenflüsse	114
5.5	Massenflüsse im Vergleich zu Hoerling et al. (1993)	117
5.6	Trajektorienanalyse in der Oberwelt	120
5.7	Trajektorienanalyse in der Stratosphäre	123
5.8	Horizontale Verteilung der Massenflüsse	125
A.1	Das Runge-Kutta-Schema 4. Ordnung	138
A.2	Kubisch Hermitesche Interpolation	140
A.3	Zur Anhäufung von Trajektorien in der Grenzschicht	141
D.1	Das Gesetz von Amdahl	149
E.1	Breite Δ^2 des Altersspektrums	153
E.2	Fehler in Γ durch quadratischen Anstieg von SF_6	154
E.3	Fehler in Γ durch mangelnde Konvergenz	155

Kurzfassung

Untersuchungen zum globalen Klima, die z. B. die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre oder den Einfluss von Aerosolen berücksichtigen, involvieren eine große Anzahl zu transportierender Spurenstoffe. Deshalb wurde in dieser Arbeit ein Lagrangesches Transportschema (ATTILA — Atmospheric Tracer Transport in a Lagrangian Model) für passive Spurenstoffe entwickelt, das online im Klimamodell ECHAM4 läuft und somit effizient für derartige Studien eingesetzt werden kann, weil der Rechenzeitbedarf eines Lagrangeschen Advektionsschemas nicht von der Anzahl der transportierten Stoffe abhängt. Eine weitere Motivation für diese Arbeit sind die numerischen Eigenschaften eines Lagrangeschen Transportschemas, wie die Erhaltung der Masse, Vermeidung numerischer Diffusion und die Erhaltung starker Gradienten, die speziell beim operationellen, semi-Lagrangeschen Transportschema in ECHAM ein Problem sind.

In dieser Arbeit werden die Probleme, die beim Einsatz Lagrangescher Methoden auf globaler und langfristiger Skala entstehen, diskutiert und die in ATTILA angewandten Lösungen vorgestellt. Dabei wird zum Teil auf bereits bewährte Konzepte des Lagrangeschen Chemie-Transport-Modells STOCHEM zurückgegriffen. Es werden aber auch neue Verfahren, z. B. zur Verwendung der in ECHAM online verfügbaren Daten der Konvektionsparameterisierung in einem Lagrangeschen Schema, entwickelt. Eine Untersuchung zur Effizienz von ATTILA zeigt, dass sich der Einsatz gegenüber dem semi-Lagrangeschen Schema schon ab einer mäßig großen Anzahl von Spurenstoffen (mehreren 10) rechnet. Werden hingegen nur wenige Spurenstoffe transportiert, benötigt das Modellsystem ECHAM4/ATTILA einen Faktor 2.5 mehr Rechenzeit als die operationelle Version.

Transportexperimente mit sowohl kurzlebigen als auch langlebigen Tracern ergaben, dass ATTILA realistische Verteilungen produziert, die in vielen Aspekten mit den Ergebnissen des semi-Lagrangeschen Schemas übereinstimmen. Wesentliche Unterschiede zum semi-Lagrangeschen Schema ergaben sich allerdings in der Gegenwart starker horizontaler oder vertikaler Gradienten. So konnte gezeigt werden, dass der in ECHAM erhöhte meridionale Transport in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre und der zu starke Abwärtsfluss durch die Tropopause in mittleren Breiten nicht auf eine zu starke Meridionalzirkulation in ECHAM zurückzuführen

ist, sondern im Wesentlichen das Ergebnis der numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas ist. In den obersten Modellschichten hingegen ist der Vertikaltransport in ATTILA im Vergleich zu Beobachtungen zu schnell, während er im semi-Lagrangeschen Schema zu langsam ist.

Eine Analyse der von ATTILA berechneten Trajektorien hinsichtlich der stratosphärischen Dynamik und des Stratosphären-Troposphären-Austausches ergab, dass aufgrund der zeitlichen Variation der großräumigen stratosphärischen Zirkulation der Eintrittszeitpunkt in die Stratosphäre ein wesentlicher Faktor für die Bestimmung des Transportweges eines Luftpaketes in der Stratosphäre ist. So werden z. B. hauptsächlich diejenigen Luftmassen zur südpolaren Stratosphäre (oberhalb von 100 hPa) transportiert, die im Südherbst (März bis Mai) die Stratosphäre in den Tropen betreten. In der polaren Stratosphäre schlägt sich dies in einem multimodalen Altersspektrum nieder, das mehrere ausgeprägte Maxima im Abstand von einem Jahr besitzt. Im Vergleich zu Beobachtungen ist aber in ECHAM die subtropische Transportbarriere in der Stratosphäre deutlich zu schwach.

Die Massenflüsse durch die 380 K-Isentrope präsentieren sich bei dieser Analyse als eher gleichmäßige, in eine Richtung gerichtete (aufwärts in den Tropen, abwärts in den Extratropen) Flüsse, während der Austausch durch die Tropopause den Charakter eines 2-Wege-Austausches annimmt, der auch Schwankungen auf kürzerer Zeitskala unterworfen ist. In höheren Breiten findet sich durch die Tropopause ein Aufwärtsfluss, der aber nur die unterste extratropische Stratosphäre beeinflusst und durch einen höheren Abwärtsfluss in den Subtropen — der auf ein schmales Band begrenzt ist — kompensiert wird.

Die zweidimensionalen Verteilungen der Massenflüsse zeigen eine starke zonale Variabilität, bilden aber dennoch klare Strukturen aus. Vor allem in den Tropen ist ein deutliches “Zellenmuster” zu erkennen, das aus scharf abgegrenzten Gebieten mit abwechselnd aufwärts und abwärts gerichteter Bewegung besteht.

Abstract

Investigating the chemical composition of the atmosphere or the influence of aerosols on the global climate involves a large number of trace species. Therefore, a Lagrangian transport scheme (ATTILA — Atmospheric Tracer Transport in a Lagrangian Model) for passive tracers has been developed in this thesis. ATTILA runs online in the general circulation model ECHAM4 and, thus, can be used efficiently for studies involving many tracers, because the computational cost of a Lagrangian advection scheme does not increase with the number of transported species. This work was further motivated by the numerical properties of Lagrangian schemes: They conserve mass, avoid numerical diffusion, and are thus able to maintain sharp gradients, which are especially a problem in the operational semi-Lagrangian transport scheme of ECHAM.

This doctoral thesis discusses the problems which arise when applying Lagrangian methods on long range and global scale, and presents the solutions developed for ATTILA. These are partly based on the chemistry-transport model STOCHEM, and have partly been developed newly, like the convection scheme in ATTILA, which uses the full set of data calculated by the convection parameterisation of ECHAM. A study on the efficiency of ATTILA shows that the use of ATTILA is profitable above a moderately large number (some 10) of transported species. However, when transporting only a small number of tracers, the model system ECHAM4/ATTILA needs 2.5 times more CPU time than the operational version of ECHAM4.

Transport experiments with both short-lived and long-lived tracers show that ATTILA produces realistic tracer distributions, which agree in many aspects with the results obtained with the semi-Lagrangian scheme. However, in the presence of sharp horizontal or vertical gradients the two transport schemes differ substantially. It could be shown that the enhanced meridional transport in the upper troposphere and lower stratosphere and the overestimated downward flux through the tropopause in ECHAM is rather due to the numerical properties of the semi-Lagrangian scheme than due to an incorrect circulation. However, in the uppermost model domain ATTILA exhibits a too fast vertical transport compared to observations, whereas in the semi-Lagrangian scheme this transport is too slow.

An analysis of the trajectories calculated by ATTILA regarding stratospheric dy-

namics shows that the time of entry into the stratosphere is a major factor determining an air parcel's pathway in the stratosphere because of the temporal variation of the stratospheric circulation. E. g., mainly those air parcels are transported to the southern polar stratosphere (above 100 hPa) which enter the stratosphere in the tropics in fall (MAM). In the polar stratosphere this is reflected in age spectra with several distinct maxima at intervals of one year. Compared to observations, however, the simulated subtropical transport barrier in the stratosphere is clearly too weak.

An analysis of the mass fluxes shows that the flux through the 380 K isentropic surface can be seen as a rather uniform and unidirectional (upward in tropics, downward in extratropics) flux, whereas the exchange through the tropopause can be characterised as a two-way exchange which is also subject to variations on a shorter time scale. At higher latitudes an upward flux through the tropopause is found, which, however, affects the lowermost stratosphere only, and is compensated by a higher downward flux in the subtropics which is restricted to a narrow band.

The horizontal mass flux distributions exhibit a pronounced zonal variability, but nevertheless show distinct patterns. Especially in the tropics a clear "cellular pattern" is discernible which consists of well-defined regions with alternating upward and downward fluxes.

1 Einleitung

Zum Verständnis des Klimasystems der Erde spielt die Modellierung des Transportes und der Umwandlungsprozesse von Spurenstoffen in der Atmosphäre eine wichtige Rolle. Obwohl die Konzentrationen dieser Spurenstoffe sehr gering sind, dominieren sie wesentliche Eigenschaften der Atmosphäre, wie deren chemische Zusammensetzung oder ihr Absorptionsvermögen solarer und terrestrischer Strahlung. Die gesamte in der Atmosphäre vorkommende Menge an Ozon (O_3) zum Beispiel ergibt unter Standardbedingungen (Druck 1013 hPa, Temperatur 0°C) eine Schicht von lediglich ca. 3 mm Dicke (z.B. Bojkov und Fioletov, 1995), und dennoch ist dieses Spurengas maßgeblich für das vertikale Temperaturprofil in der Stratosphäre verantwortlich, schützt durch die Absorption ultravioletter Strahlung Eiweißverbindungen, die die Grundlage allen Lebens bilden, vor Zerstörung und kann bei Auftreten an falscher Stelle (nämlich am Boden statt in der Stratosphäre) eine ebenso gesundheitsschädigende Wirkung entfalten.

Spurenstoffe spielen auch eine wichtige Rolle bei der Untersuchung des Einflusses des Menschen auf das globale Klima, da dieser hauptsächlich auf der Emission klimarelevanter Spurenstoffe in die Atmosphäre beruht.

Während nun einige dieser Spurenstoffe, wie z. B. Kohlendioxid (CO_2) oder Lachgas (N_2O), aufgrund ihrer langen Lebenszeit als homogen in der Atmosphäre verteilt angesehen werden können, zeigen doch die meisten relevanten Spurenstoffe eine räumliche wie zeitliche Variabilität in ihrer Verteilung. Beispielsweise erniedrigt sich das Mischungsverhältnis von Wasserdampf (H_2O), das eines der wichtigsten klimarelevanten Spurengase darstellt, vom Boden bis zur Tropopause um den Faktor 1000 (z. B. Brasseur et al., 1998, Tabelle 2) und weist auch eine hohe horizontale und zeitliche Variabilität auf, wie man leicht aus Satellitenbildern erkennen kann. Auch anthropogene Emissionen erfolgen räumlich inhomogen. Luftverkehrsemissionen z.B. sind auf enge räumliche Bereiche begrenzt, die die Hauptflugrouten markieren (Sausen et al., 1999), und Emissionen am Boden sind von der Art der Landnutzung, der Bevölkerungsdichte oder der wirtschaftlichen Aktivität in der betrachteten Region abhängig. Andere Prozesse wie chemische Reaktionen, die als Quellen oder Senken bestimmter Spurenstoffe fungieren, sind oftmals von der Temperatur und der Strahlung abhängig und können so inhomogene Verteilungen der

betroffenen Spurenstoffe erzeugen.

Weitere klimarelevante Spurenstoffe stellen die Aerosole dar, die sowohl natürlich in der Atmosphäre vorkommen als auch vom Menschen erzeugt werden. Aerosole wirken auf das Klima direkt über ihre Strahlungseigenschaften, die ebenfalls räumlich inhomogen verteilt sein können (z.B. Schult et al., 1997), und indirekt über die Änderung von Wolkenbildungsprozessen und der optischen Eigenschaften von Wolken. Die wichtigsten Eigenschaften von Aerosolen, deren Einfluss auf die Atmosphäre und die chemischen und mikrophysikalischen Prozesse, die die Bildung und Umwandlung von Aerosolen und Aerosolvorläufersubstanzen bestimmen, sind z. B. in Kärcher (1999) und Kärcher und Solomon (1999) dargestellt. Roeckner et al. (1999) zeigten, dass der beobachtete Anstieg der global gemittelten Lufttemperatur am Boden von dem gekoppelten Atmosphäre-Ozean-Modell ECHAM4/OPYC3 besser reproduziert wird, wenn nicht nur diverse Treibhausgase, sondern auch der (insgesamt kühlende) Einfluss von Sulfataerosolen — sowohl direkt über den Strahlungsantrieb als auch indirekt über die Änderung der Wolkenalbedo — berücksichtigt wird.

Will man nun das globale Klima oder bestimmte Aspekte davon, wie z.B. das stratosphärische Ozonloch, untersuchen oder deren zukünftige Entwicklung vorher-sagen, so ist das geeignete Werkzeug hierzu ein allgemeines Zirkulationsmodell der Atmosphäre (wie z. B. ECHAM), das mit einem der Fragestellung angepassten Zusatzmodell gekoppelt ist, wie z.B. mit einem Chemiemodul, welches die für die Ozonchemie relevanten Reaktionen berechnet, oder mit einem Aerosolmodul, welches die Bildung und Umwandlung von Aerosolen in der Atmosphäre beschreibt. Eine Aufgabe (unter vielen) bei der Kopplung eines solchen Zusatzmoduls mit einem Klimamodell ist, für den Transport der in diesem Modul behandelten Spurenstoffe durch die vom Klimamodell erzeugte Dynamik (Wind, Turbulenz etc.) zu sorgen. Dabei sind im Wesentlichen zwei Kriterien zu erfüllen bzw. gegeneinander abzuwägen und zu optimieren: Einerseits muss der Transport auch von inhomogenen Verteilungen mit starken Gradienten möglichst genau und numerisch stabil berechnet werden, andererseits müssen meist eine große Anzahl von Spurenstoffen transportiert werden, wobei sich der Rechenzeitbedarf in praktikablen Grenzen halten muss.

Genau dieser Problematik, nämlich der möglichst exakten und effizienten Repräsen-

tation des Transportes von atmosphärischen Spurenstoffen — egal, ob chemische Spezies, Aerosole oder passive Spurenstoffe — in einem Klimamodell, widmet sich die hier vorliegende Arbeit. Zu diesem Zweck wurde für das Klimamodell ECHAM4 ein neues Transportschema entwickelt, das auf einem Lagrangeschen Ansatz basiert und im Folgenden ATTILA (Atmospheric Tracer Transport in a Lagrangian Model) genannt wird.

Traditionelle Ansätze zur Repräsentation des Spurenstofftransportes in einem globalen Modell benutzen Eulersche Methoden. Dabei werden die Spurenstoffverteilungen als Konzentrationen auf einem, das Modellgebiet überdeckendem, Gitter dargestellt. Die Berechnung des Transportes erfolgt dann durch Lösung der entsprechenden Differentialgleichungen in diskreten Zeitschritten, wobei die auftretenden partiellen Ableitungen auf verschiedene Arten wie z. B. durch finite Differenzen approximiert werden. Die zahlreichen Eulerschen Advektionsschemata unterscheiden sich meist in der Art und Weise dieser Approximation und sind dann jeweils mit anderen Vor- bzw. Nachteilen behaftet (vgl. Rood, 1987). Spektrale Methoden behandeln jeweils Spurenstoffverteilungen auf einer Kugeloberfläche und stellen diese als Reihenentwicklung bezüglich einer Basis (z. B. Kugelflächenfunktionen) dar, die ab einer bestimmten Grenze (Wellenzahl) abbricht. Dies hat den Vorteil, dass horizontale Ableitungen nicht approximiert werden müssen. Die Lösung erfolgt ebenfalls in diskreten Zeitschritten, und zwar für die in der Reihenentwicklung auftretenden Koeffizienten, die die Verteilung charakterisieren.

Während diese Methoden recht gut funktionieren, wenn sie auf relativ glatte, schwach variierende Felder angewandt werden, kann es bei stark inhomogenen Verteilungen zu Problemen kommen. Viele Advektionsschemata neigen bei starken Gradienten dazu, negative Konzentrationen zu produzieren (“numerische Dispersion”) oder die Verteilungen zu stark auszuglätten (“numerische Diffusion”). Ferner müssen die meisten Eulerschen Schemata ein Stabilitätskriterium erfüllen, wie z. B. das CFL-Kriterium¹ $\Delta t \leq \Delta x/u$, wobei u die maximal auftretende Geschwindigkeit und Δx bzw. Δt die diskreten Schrittweiten im Raum bzw. in der Zeit sind. Bei einem regulären Längengrad-Breitengrad-Gitter bedeutet dies, dass aufgrund der geringen Gitterpunktabstände Δx in den polaren Gebieten der Zeitschritt Δt kleiner gewählt werden muss als es für die in niedrigeren Breiten erzielte Auflösung

¹Nach Courant, Friedrichs und Lewy.

nötig wäre.

Bei spektralen Methoden entstehen numerische Fehler durch das Abbrechen der Reihenentwicklung ab einer bestimmten Wellenzahl und durch das Gibbsche Phänomen (z. B. Königsberger, 1992, S. 325 ff.). Letzteres produziert in der Nähe von starken Gradienten *immer* — also unabhängig von der spektralen Auflösung — Regionen mit “Über-” bzw. “Unterschwingern”, d. h. es entstehen Konzentrationen, die über dem Maximum bzw. unter dem Minimum in der betroffenen Region liegen. Während Unterschwinger oftmals in negativen Konzentrationen resultieren und somit im Nachhinein korrigiert werden können, ist die Detektion von Überschwingern schwieriger. Handelt es sich bei dem transportierten Spurenstoff z. B. um Wasserdampf, so können die Überschwinger zu Übersättigung und somit zu künstlichem Niederschlag führen (Williamson und Rasch, 1989).

Eine weitere (Eulersche) Methode, den Spurenstofftransport in einem Windfeld zu behandeln, ist die semi-Lagrangesche Technik. Hierbei liegen die Konzentrationen ebenfalls auf einem Gitter vor, und es wird zu jedem Zeitschritt für jeden Gitterpunkt ein sogenannter “Startpunkt” berechnet, welcher genau derjenige Punkt ist, bei dem eine Trajektorie starten muss, um im nächsten Zeitschritt beim gewählten Gitterpunkt anzukommen. Die Spurenstoffkonzentration an einem Gitterpunkt zum nächsten Zeitschritt ist dann die zum dazugehörigen Startpunkt interpolierte Spurenstoffkonzentration zum aktuellen Zeitschritt. Solche Transportschemata basieren also auf der Berechnung von Rückwärtstrajektorien und sind im Allgemeinen numerisch stabil, so dass sich bei Verwendung eines regulären Längengrad-Breitengrad-Gitters keine Einschränkung bezüglich des Zeitschrittes wegen der geringen Gitterpunktabstände in den Polgebieten ergibt (siehe oben). Die Qualität eines semi-Lagrangeschen Advektionsschemas hängt wesentlich vom verwendeten Interpolationsverfahren ab, und durch geeignete Wahl desselben kann man wünschenswerte Eigenschaften, wie z. B. die Vermeidung negativer Konzentrationen oder künstlicher Oszillationen, erreichen. Allerdings erzeugen diese Schemata immer noch ernstzunehmende numerische Diffusion, und es ist auch schwierig, ein semi-Lagrangesches Schema zu konstruieren, das die Masse eines Spurenstoffes erhält (Rasch und Williamson, 1990a). Ferner kann der Transport einer größeren Anzahl von Spurenstoffen sehr rechenzeitintensiv werden, weil die Interpolation für jeden Spurenstoff einzeln durchgeführt werden muss, und ein genaues und somit

teures Interpolationsverfahren benötigt wird (Rasch und Williamson, 1990a; siehe auch Johnson et al., 2000, für eine Diskussion des derzeit in ECHAM4 verwendeten semi-Lagrangeschen Schemas).

Steil et al. (1998) entwickelten z. B. ein Chemiemodul zur Untersuchung der stratosphärischen Ozonchemie für das Klimamodell ECHAM, welches für die Advektion von Spurenstoffen ebenfalls ein semi-Lagrangesches Schema benutzt. Um den Rechenzeitbedarf sowohl im Chemiemodul als auch im Advektionsschema gering zu halten, wurde dabei ein Familienkonzept angewandt, das verwandte chemische Spezies mit kurzer Lebensdauer zu einer Familie mit einer größeren Lebensdauer zusammenfasst. Dadurch kann für das Chemiemodul ein relativ großer Zeitschritt gewählt und die Anzahl der zu transportierenden Spurenstoffe bzw. Familien auf 12 reduziert werden, was eine Integration des Modells über klimatologische Zeiträume möglich macht (siehe auch Hein et al., 2000).

Bei einem Lagrangeschen Transportschema hingegen sind die oben genannten Probleme weniger ausgeprägt. Bei dieser Methode liegen die Spurenstoffkonzentrationen zwar auch an bestimmten Punkten vor, jedoch sind diese Punkte nicht mehr fest im Raum verteilt, sondern bewegen sich mit dem Wind entlang berechneter Trajektorien. Man kann sich also die Modellatmosphäre in Luftpakete unterteilt vorstellen, die mit dem Wind transportiert werden und an dessen Mittelpunkten die für das Luftpaket repräsentativen Spurenstoffkonzentrationen vorliegen. Da das Advektionsschema nicht die Konzentrationen ändert, sondern den Ort der Konzentrationen, also die Positionen der Luftpakete, ist es strikt massenerhaltend und numerisch nichtdiffusiv. Außerdem werden sämtliche Spurenstoffe mit der Berechnung der Trajektorien gleichzeitig transportiert, so dass der Rechenzeitbedarf eines Lagrangeschen Advektionsschemas nicht von der Anzahl der transportierten Spurenstoffe abhängt.

Dies ist ein Grund, warum Lagrangesche Methoden bei Problemen mit vielen Spurenstoffen bevorzugt eingesetzt werden. Das Lagrangesche Chemie-Transport-Modell STOCHEM z. B. behandelt bis zu 70 verschiedene Spurengase zur Simulation der troposphärischen Chemie auf globaler Skala (Johnson et al., 1999; Collins et al., 1997). Bei der Chemiemodellierung kommt als weiterer Vorteil hinzu, dass das chemische Gleichgewicht in den einzelnen Luftpaketen durch die Advektion weniger gestört wird. Da alle Spurenstoffe miteinander transportiert werden, ist ein im che-

mischen Gleichgewicht befindliches Luftpaket nach dem Advektionsschritt wieder näher am Gleichgewichtszustand als eine ortsfeste Gitterbox, in der die Konzentrationen der Spurenstoffe einzeln neu berechnet wurden.

Das Hauptanwendungsgebiet von Trajektorienrechnungen liegt (bisher) allerdings eher in der Untersuchung von Transportvorgängen auf kleineren Skalen als der globalen Skala, wo eine Reihe verschiedener Techniken entwickelt wurden. Die Technik der "Konturadvektion" (englisch: contour advection) wird beispielsweise benutzt, um feinskalige Strukturen im Transport, wie sie bei der Ablösung von Filamenten vom Polarwirbel entstehen, zu untersuchen (Schoeberl und Newman, 1995; Waugh und Plumb, 1994). Hierbei werden Konturlinien (wie z. B. Linien konstanter potentieller Vorticity) durch eine Reihe von Partikeln repräsentiert, die dann mit dem Wind advehiert werden. Darüber hinaus sorgt ein spezieller Algorithmus für eine angemessene Auflösung der Konturlinien. In der von Waugh und Plumb (1994) benutzten Technik werden z. B. in Abhängigkeit von der Krümmung der Konturlinie an bestimmten Stellen neue Partikel eingefügt oder bestehende gelöscht. Die Technik der "domain filling trajectories" wird ebenfalls dazu benutzt, um hochaufgelöste Spurenstoffverteilungen zu erhalten, die hilfreich bei der Interpretation von Satellitendaten (Sutton et al., 1994) oder bei der Untersuchung chemischer Prozesse unter bestimmten atmosphärischen Bedingungen (Lutman et al., 1997) sein können. Hierbei werden Partikel in einer ausgewählten Region gleichmäßig verteilt und dann Rückwärtstrajektorien bis zu einem bestimmten früheren Zeitpunkt gerechnet. Beobachtungen eines Spurenstoffes zu diesem Zeitpunkt an den Endpunkten der Trajektorien geben dann Aufschluss über den Transport dieses Stoffes im betrachteten Zeitraum und über dessen Verteilung in der ausgewählten Region. Zusätzlich kann bei chemisch aktiven Stoffen ein Chemie-Boxmodell entlang den Trajektorien integriert werden, um Einblicke in die Bedeutung verschiedener chemischer Prozesse zu erhalten (Lutman et al., 1997).

Ein weiteres wichtiges Anwendungsgebiet ist die Berechnung der Schadstoffausbreitung aus bodennahen Punktquellen. Spätestens seit der Reaktorkatastrophe in Tschernobyl im Jahre 1986 entwickelten die meisten europäischen Länder ein entsprechendes Ausbreitungsmodell, wovon die meisten auf einem Lagrangeschen Ansatz beruhen und unter die Kategorie der Lagrangeschen Partikel-Dispersions-Modelle (LPDM) fallen. Eine Vielzahl dieser Modelle wurde im Europäischen

Tracer-Experiment ETEX (van Dop und Nodop, 1998) evaluiert. Ein weiterer Überblick über die Berechnung und Anwendung von Trajektorien kann in Stohl (1998) gefunden werden.

Allen diesen Modellen, einschließlich des auf globaler Skala operierenden Chemie-Transport-Modells STOCHEM, ist gemein, dass sie in den meisten Fällen offline laufen, d. h. sie werden von zuvor berechneten meteorologischen Daten angetrieben, die entweder von einem entsprechenden Modell oder von einem Assimilationsverfahren stammen. Einer gewissen Rechenzeiterparnis steht bei Untersuchungen zum globalen Klima der Nachteil gegenüber, dass keine Rückkopplungen auf die Dynamik der Atmosphäre, z. B. über die Strahlungseigenschaften der transportierten Spurenstoffe, möglich sind.

Veröffentlichte Studien, in denen online laufende Lagrangesche Transportschemata benutzt werden, sind dagegen weitaus seltener (siehe Mote et al., 1994, für eine solche Studie auf kurzfristiger Zeitskala). Erst vor kurzem ist eine Arbeit erschienen, in der ein online laufendes Lagrangesches Transportschema auf globaler und langfristiger Skala benutzt wird, um damit das Alter der Luft (vgl. Kapitel 4) zu berechnen (Eluszkiewicz et al., 2000).

ATTILA ist ebenfalls konzipiert als ein Lagrangesches Transportschema, das online in einem globalen Klimamodell läuft und somit auf klimatologischer Zeitskala arbeitet. ATTILA ist daher besonders geeignet für Klimaänderungsstudien, die eine große Anzahl von Spurenstoffen beinhalten, wie z. B. bei der Modellierung von chemischen Prozessen oder von Aerosolen mit vielen Typ- und Größenklassen.

In einem ersten Schritt wurde daher ATTILA als Transportschema für passive Spurenstoffe entwickelt, wobei viele Konzepte auf dem bereits etablierten globalen Chemie-Transport-Modell STOCHEM basieren.

Bei der Anwendung des Lagrangeschen Konzeptes auf die globale und langfristige Skala entstehen natürlich auch Nachteile bzw. Probleme, die behandelt werden müssen und die hauptsächlich darauf beruhen, dass die Spurenstoffkonzentrationen nicht auf einem ortsfesten Gitter berechnet werden. Da ist z. B. das Problem der Kommunikation zwischen Klimamodell und Transportschema, also die Frage, wie Informationen von den Luftpaketen auf das Gitter des Klimamodells, und umgekehrt, übertragen werden. Ferner muss man sich überlegen, wie Parameterisierun-

gen subskaliger Prozesse, die für den Spurenstofftransport wichtig sind, wie z. B. Diffusion und Konvektion, konstruiert werden müssen, damit sie auf sich bewegende Luftpakete anwendbar sind. Integriert man das Modell über klimatologische Zeiträume, so stellt sich zusätzlich das Problem der Stabilität der Verteilung der Luftpakete, also der Vermeidung von Regionen, in denen sich Luftpakete ansammeln bzw. von Regionen, die sich leeren. Schließlich muss man auch Betrachtungen zum Rechenzeitbedarf und zu Methoden der effizienten Programmierung anstellen, da ein Lagrangesches Schema zwar bei einer großen Anzahl zu transportierender Spurenstoffe effizient arbeitet, aber bei einer geringen Anzahl erheblich mehr Rechenzeit benötigt als ein konventionelles Transportschema.

Die Ziele dieser Arbeit sind die Untersuchung des Spurenstofftransportes und der Dynamik in dem globalen Modell ECHAM4 mit Hilfe eines Lagrangeschen Transportschemas. Dazu werden zunächst die oben dargestellten Probleme erörtert, verschiedene Lösungen diskutiert und ein entsprechendes Lagrangesches Transportschema für das Klimamodell ECHAM4 entwickelt. Bei der Evaluierung dieses Modells wird nicht nur dessen Transportverhalten untersucht, sondern man gewinnt auch durch Vergleich mit dem operationellen semi-Lagrangeschen Schema in ECHAM neue Erkenntnisse über die Dynamik im Modell und über die numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas, was als Interpretationshilfe früherer Ergebnisse mit ECHAM dienen kann. Das neu geschaffene Modellsystem ECHAM4/ATTILA soll dann dazu benutzt werden, um Transportprozesse in der Atmosphäre zu untersuchen, wobei der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der Dynamik der Stratosphäre und dem Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre liegt. Es wird auch großer Wert darauf gelegt werden, zu zeigen, wie man die von einem Lagrangeschen Schema gelieferten spezifischen Informationen (Trajektorien etc.) vorteilhaft nutzen kann, um die atmosphärische Dynamik von einer anderen — Lagrangeschen — Perspektive zu betrachten und so Einblicke zu erhalten, die mit einem Eulerschen oder semi-Lagrangeschen Schema nicht möglich wären.

Die Arbeit ist wie folgt aufgebaut: Im nächsten Kapitel (**Kapitel 2**) wird das Modellsystem ECHAM4/ATTILA beschrieben, wobei der Hauptaugenmerk auf den Lagrangeschen Methoden und der Diskussion der damit verbundenen Probleme liegt. Technische Details sind dabei in den Anhang verlegt (**Anhang A bis D**). Das Kapitel schließt mit einer Betrachtung zum Rechenzeitbedarf und der Effizienz

2 Entwicklung und Implementation eines Lagrangeschen Transportschemas in das Klimamodell ECHAM4: Modellbeschreibung

Im Folgenden wird das für diese Arbeit entwickelte Modell ECHAM4/ATTILA vorgestellt. Ausgangspunkt dieser Entwicklung ist die vierte Generation des Modells der Allgemeinen Atmosphärischen Zirkulation (GCM) ECHAM, welches für die Advektion bestimmter prognostischer Variablen und der passiven Spurenstoffe ein semi-Lagrangesches Schema benutzt (siehe unten). In dieses Modell wurde ein weiteres Advektionsschema für passive Spurenstoffe (mit Namen ATTILA) implementiert, das auf einem rein Lagrangeschen Ansatz basiert. Sowohl programmiertechnisch als auch konzeptionell unterscheidet sich diese Methode erheblich von Eulerschen und semi-Lagrangeschen Verfahren, da die betrachteten Spurenstoffkonzentrationen nicht auf einem festem Gitter, sondern entlang Trajektorien berechnet werden. Dies hat auch Auswirkungen auf die Datennachbearbeitung, worauf in Abschnitt 2.4.8 näher eingegangen wird.

Da zum Modellsystem ECHAM ausführliche Beschreibungen existieren, werden im nächsten Abschnitt nur die wichtigsten Eigenschaften kurz erläutert und im Übrigen auf verschiedene Literaturstellen verwiesen. In den darauf folgenden Abschnitten werden die Konzepte eines Lagrangeschen Verfahrens, die damit verbundenen Probleme und die dazu gehörigen Lösungsmöglichkeiten ausführlich diskutiert, und deren Umsetzung in den Programmcode ATTILA beschrieben.

2.1 Das atmosphärische Zirkulationsmodell ECHAM4

Auf der Basis einer früheren Version des ECMWF Wettervorhersagemodells wurde vom Meteorologischen Institut der Universität Hamburg in Zusammenarbeit mit dem Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, das atmosphärische Zirkulationsmodell ECHAM (ECMWF Modell, Hamburger Version) speziell zur Anwendung auf Fragestellungen zum globalen Klima entwickelt (Roeckner et al., 1992, 1996).

Das Modell basiert auf den primitiven Gleichungen. Die prognostischen Variablen sind dabei die Vorticity und horizontale Divergenz des Windfeldes, die Temperatur,

der Logarithmus des Bodendruckes, das Wasserdampfmischungsverhältnis, das Mischungsverhältnis von Wolkenwasser (in flüssiger und fester Phase) und, wahlweise, das Massenmischungsverhältnis von bis zu 21 passiven Spurenstoffen.

ECHAM ist im Wesentlichen ein spektrales Modell, d. h. die Verteilung einer prognostischen Variable auf einer Kugelschale (konzentrisch zur Erdoberfläche) wird als Reihe von Kugelflächenfunktionen dargestellt, die ab einer bestimmten totalen Wellenzahl abbricht. In diesem Spektralraum werden allerdings nur die linearen Terme der Gleichungen behandelt, zur Berechnung der nichtlinearen Terme und der (meisten) parameterisierten Prozesse werden die prognostischen Variablen auf ein Gaußsches Gitter transformiert.

Es hat sich gezeigt, dass im Spektralraum bei der Berechnung der Advektion von Wasserdampf- und Wolkenwassergehalt, deren Verteilungen scharfe horizontale Gradienten aufweisen können, aufgrund des Gibbsschen Phänomens (siehe z. B. Königsberger, 1992, S. 325 ff.) negative, und somit physikalisch sinnlose, Konzentrationen auftreten können. Um dies zu vermeiden, werden in der zurzeit aktuellen Version 4 von ECHAM diese beiden prognostischen Variablen und die passiven Spurenstoffe ausschließlich im Gitterpunktraum behandelt. Die Advektion erfolgt dabei mit einem semi-Lagrangeschen Transportschema (SLT), das von Williamson und Rasch (1994) für das NCAR Klimamodell CCM2 (Hack et al., 1993) entwickelt wurde. Dabei wird ein formerhaltendes Interpolationsverfahren benutzt, das die Entstehung künstlicher Extrema verhindert, und somit auch negative Konzentrationen und die Erzeugung von künstlichem Niederschlag durch künstliche Übersättigungen des Wasserdampfes vermeidet (Rasch und Williamson, 1990a). Das Advektionsschema ist allerdings nicht massenerhaltend, so dass zur Erzwingung dieser Eigenschaft nach jedem Zeitschritt ein sogenannter "Massenfixer" angewendet werden muss (Rasch und Williamson, 1990b).

ECHAM enthält Parameterisierungen für Strahlung, stratiforme Bildung von Wolken und Niederschlag, konvektive Bildung von Wolken und Niederschlag, horizontale Diffusion², Bodenflüsse und vertikale Diffusion, Schwerewellen, und diverse Oberflächenprozesse, wie z. B. ein 5-Schichten Bodenmodell zur Berechnung des Wärme- und Wasserhaushaltes des Bodens oder ein Abflussschema für Niederschlag über Land. Im Gegensatz zum operationellen Modell wird in dieser Arbeit eine leicht

²Dies ist der einzige parameterisierte Prozess, der im Spektralraum berechnet wird.

abgeänderte Version des konvektiven Massenflussschemas benutzt, die für die passiven Spurenstoffe die Entstehung von negativen Konzentrationen verhindert (Brinkop und Sausen, 1996, 1997).

Die Atmosphäre ist im Modell vertikal in 19 nicht äquidistante Schichten unterteilt, wobei ein hybrides σ - p -Koordinatensystem benutzt wird (Simmons und Burridge, 1981; Roeckner et al., 1992). Die Koordinatenflächen folgen dabei in Bodennähe der Orographie und gehen mit zunehmender Höhe allmählich zu reinen Druckflächen über. Der Modelloberrand liegt bei 10 hPa (≈ 30 km), die Mitte der untersten Schicht befindet sich ungefähr 30 m über dem Boden. Die planetare Grenzschicht wird durch 4-5 Schichten aufgelöst, in der Tropopausenregion beträgt die vertikale Auflösung ca. 2 km.

Für die in dieser Arbeit präsentierten Studien wurde eine spektrale Horizontalauflösung von T30 gewählt, was einer Auflösung von 6° (≈ 670 km am Äquator) im Spektralraum entspricht. Das Gaußsche Gitter, auf dem die nichtlinearen Terme, die Parameterisierungen und die semi-Lagrangesche Advektion berechnet werden, hat eine Auflösung von ungefähr 3.75° sowohl in longitudinaler als auch in meridionaler Richtung.

Die zeitliche Integration erfolgt nach dem Leap-Frog-Verfahren mit einem Zeitschritt von 30 min. Ein Zeitfilter verhindert, dass sich die Lösungen der beiden Zeitebenen voneinander entfernen (Asselin, 1972).

Eine detaillierte Beschreibung des Modells und des vom Modell berechneten Klimas kann in Roeckner et al. (1996) gefunden werden. In DKRZ (1992) werden besonders die technischen Aspekte der Modellstruktur angesprochen. Eine sorgfältige Auswertung der vom Modell berechneten Wolkenparameter und des Strahlungshaushaltes wurde in Chen und Roeckner (1997, 1996) durchgeführt.

ECHAM4 ist ein etabliertes Zirkulationsmodell und wurde in einer Reihe von Klimasensitivitätsexperimenten erfolgreich eingesetzt (siehe z. B. Cubasch et al., 1992; Graham et al., 1994; Graf et al., 1995; Ponater et al., 1994, 1996). Ebenso wurde der semi-Lagrangesche Spurenstofftransport in mehreren Studien untersucht und mit Beobachtungsdaten und anderen Modellen verglichen (z. B. Jacob et al., 1997; van Velthoven et al., 1997; Danilin et al., 1998; Dentener et al., 1999; Kjellström et al., 2000).

2.2 Der Lagrangesche Ansatz

Wie schon in der Einleitung erwähnt, gibt es, egal auf welcher Skala, im Wesentlichen zwei Ansätze, um die Ausbreitung von Spurenstoffen in der Atmosphäre zu berechnen. Im Eulerschen Ansatz wird die Konzentration eines Spurenstoffes an ortsfesten Punkten betrachtet. In Abhängigkeit vom Windfeld und anderen meteorologischen Parametern wird die zeitliche Entwicklung der Konzentration an diesen Punkten in diskreten Zeitschritten berechnet.

In einem Lagrangeschen Ansatz hingegen wird zwar die Verteilung der Spurenstoffe auch durch Konzentrationen an gewissen Punkten in der Atmosphäre repräsentiert, jedoch sind diese Punkte nicht mehr fest im Raum verteilt, sondern bewegen sich mit dem Wind entlang berechneter Trajektorien mit. Die reine Advektion durch das Windfeld wird also in ersterem Ansatz durch Veränderung der Konzentration an den Gitterpunkten bei konstanter Position, in letzterem Ansatz durch Veränderung der Position der Gitterpunkte bei konstanter Konzentration an den Punkten realisiert. Für den Fall einer (instantanen oder kontinuierlichen) Punktquelle eines Spurenstoffes führte Runca (1992) diese beiden Ansätze auf einen gemeinsamen mathematischen Formalismus zurück, und zeigte, dass zur Lösung der abgeleiteten Gleichung der Lagrangesche Ansatz sich einer statistischen Methode bedient (die Konzentration an einem Ort ist abhängig von der Wahrscheinlichkeit eines Partikels in einer bestimmten Zeit vom Emissionsort zu diesem Ort zu gelangen), während der Eulersche Ansatz auf einer Massenbilanz beruht (durch Berechnung von Spurenstoffmassenflüssen an einem bestimmten Ort).

Die sich bewegenden Gitterpunkte im Lagrangeschen Fall stellt man sich auch gemeinhin als Partikel oder Luftpakete vor, die bestimmte Informationen, wie z. B. Spurenstoffkonzentrationen, tragen. Eine besonders elegante Form erhält dabei die Kontinuitätsgleichung, die besagt, dass sich in einem solchem Paket die Masse eines Spurenstoffes nur aufgrund lokaler Quellen- oder Senkenprozesse ändern kann. Sie lautet

$$\frac{d}{dt}c(\vec{r}, t) = P + L,$$

während für ein Eulersches Schema das totale Differential zerlegt werden muss, und die Kontinuitätsgleichung die Form

$$\frac{\partial}{\partial t}c(\vec{r}, t) = -\vec{u} \nabla c(\vec{r}, t) + P + L$$

annimmt, wobei c das Massenmischungsverhältnis eines Spurenstoffes, \vec{u} den Wind, und P bzw. L lokale Quellen- bzw. Senkenprozesse bezeichnen.

Andererseits ist bei Eulerschen Verfahren durch die Einführung eines festen Gitters oftmals die Formulierung sowie die programmiertechnische Umsetzung von subskaligen Prozessen einfacher.

Um den Preis dieser gewissen Unhandlichkeit erhält man beim Lagrangeschen Ansatz aber auch eine weitaus höhere Flexibilität. Bei der Entwicklung einer Parameterisierung kann man z. B. wählen, ob sich die Auswirkung des parameterisierten Prozesses auf die Spurenstoffverteilung in einer Veränderung der Konzentrationen in den Luftpaketen oder in einer Veränderung der Positionen der Pakete manifestiert. Dabei kann je nach Prozess die eine oder die andere Wahl "physikalisch naheliegend" sein. Modelle, die die (regionale) Ausbreitung von — vor allem in der Grenzschicht emittierten — Spurenstoffen berechnen, enthalten beispielsweise oftmals eine Parameterisierung für die turbulenten, in den eingelesenen Windfeldern nicht aufgelösten Windschwankungen. Eine solche Parameterisierung wirkt sich naheliegenderweise auf die Position der Partikel aus. Andere Parameterisierungen wiederum, die lokale Prozesse wie z. B. radioaktiven Zerfall, chemische Umwandlung oder Deposition repräsentieren, wirken sich direkt auf die Konzentrationen in den Paketen aus.

Ferner läßt sich in einem Lagrangeschen Modell besonders der Fall einer Punktquelle elegant darstellen, indem in regelmäßigen Zeitabständen am Emissionsort neue Punkte erzeugt, also "Partikel emittiert" werden. Die Verteilung des Spurenstoffes ist dann direkt durch die Positionen der Partikel gegeben. Als Beispiele für solche Modelle mit den oben genannten Eigenschaften, die unter die Kategorie der *Lagrangeschen Partikel-Dispersions-Modelle* (kurz LPDM) fallen, seien hier nur das speziell für die Ausbreitung von radioaktiven Substanzen im Falle eines atomaren Unfalls entwickelte "Nuclear Accident Model" NAME des U.K. Met. Office (Maryon et al., 1991) und das Pendant des Deutschen Wetterdienstes genannt (Glaab et al., 1998; Fay et al., 1995).

Aus diesen Gründen haben Lagrangesche Methoden in der Modellierung verschiedenster atmosphärischer Transportvorgänge vor allem auf regionaler und kurz- bis mittelfristiger Skala breiten Eingang gefunden. Stohl (1998) gibt einen umfassenden Überblick über die zahlreichen Anwendungen solcher Trajektorienrechnungen

in der Atmosphäre.

Auf globaler und vor allem auf langfristiger Skala dominieren allerdings Gitterpunktmodelle. Eine gewisse Ausnahme bilden hier die beiden Lagrangeschen Chemie-Transport-Modelle STOCHEM (siehe unten) und GRANTOUR (Atherton et al., 1996; Penner et al., 1991), die zwar auf globaler Skala arbeiten, aber selten länger als ein paar Modelljahre integriert werden (auch wegen der sehr rechenzeitintensiven Chemie). Diese Modelle laufen offline, d. h. sie werden von archivierten Daten angetrieben, und es sind somit keine Rückkopplungen auf die Dynamik der Atmosphäre möglich.

Eine weitere Ausnahme ist das globale Zirkulationsmodell SKYHI des Geophysical Fluid Dynamics Laboratory, für das (unter anderem) ein online laufendes Lagrangesches Transportschema zur Verfügung steht (Eluszkiewicz et al., 2000). In gleicher Weise wurde ATTILA als ein globales Lagrangesches Transportschema — vorerst nur für passive Spurenstoffe — entwickelt, das auf klimatologischen Zeitskalen online mit dem globalen Zirkulationsmodell ECHAM4 mitläuft.

2.3 Das Ausgangsmodell STOCHEM

ATTILA wurde als Advektionsschema für das Modell ECHAM völlig neu entwickelt. Insbesondere wurde der Programmcode von ATTILA neu geschrieben und an die Codestruktur von ECHAM angepasst. Um jedoch zeitraubende Misserfolge während der Entwicklung möglichst gering zu halten, lehnte sich die Auswahl der numerischen Methoden und Parameterisierungen in vielen Fällen an die zum Teil bewährten Konzepte des Lagrangeschen Chemie-Transport-Modells (CTM) STOCHEM an, das am U.K. Met. Office in Bracknell entwickelt wurde (Johnson et al., 1999; Collins et al., 1997). STOCHEM ist ein 3-dimensionales CTM der Troposphäre bis 100 hPa, dessen dynamischer Teil auf einem rein Lagrangeschen Ansatz beruht, und dessen Chemiemodul über 100 chemische und photochemische Reaktionen mit bis zu 70 beteiligten Spurenstoffen behandelt, und das vor allem zur Berechnung des troposphärischen Ozons und der Oxidantienbildung in der Troposphäre eingesetzt wird (Stevenson et al., 1998b, 1997; Collins et al., 1997; Johnson et al., 1999). Darüber hinaus wurde mit STOCHEM auch der passive Spurenstofftransport untersucht und mit anderen Modellen und Beobachtungsdaten verglichen

(Stevenson et al., 1998a; van Velthoven et al., 1997).

In ATTILA beruhen bis auf die Parameterisierung der Konvektion alle im Folgenden präsentierte Prozesse in mehr oder weniger stark abgewandelter Form auf den Konzepten von STOCHEM, worauf in den einzelnen Beschreibungen der Verfahren (im nächsten Abschnitt) jeweils gesondert eingegangen wird. Das Konvektionsschema in ATTILA wurde speziell entwickelt, um die in ECHAM berechneten Daten zur Konvektion verwenden zu können (Abschnitt 2.4.5).

2.4 Das Lagrangesche Advektionsschema ATTILA

2.4.1 Allgemeines

Das Modell ECHAM4/ATTILA kann in den horizontalen Auflösungen T21 und T30 betrieben werden. Je nach gewählter Auflösung wird die Modellatmosphäre in 82944 ($= 2^{10} \cdot 3^4$, bei T21) oder 186624 ($= 2^8 \cdot 3^6$, bei T30) Luftpakete gleicher Masse³ unterteilt.⁴ Die Spurenstoffkonzentrationen sind auf den Mittelpunkten der Luftpakete gegeben und werden als repräsentativ für das gesamte Paket angesehen. In jedem ECHAM Zeitschritt wird der vom Modell errechnete skalige Wind benutzt, um die Mittelpunkte der Luftpakete zu advehieren (siehe Abschnitt 2.4.3). Sie bewegen sich also entlang von Trajektorien, die durch den Modellwind gegeben sind. Ferner werden in jedem Zeitschritt diverse Parameterisierungen ausgeführt, die sich sowohl auf die Position der Pakete als auch auf die Spurenstoffkonzentrationen in ihnen auswirken (siehe nachfolgende Abschnitte). Die Datenauswertung kann direkt durch Auswertung der Trajektorien erfolgen oder unter Benutzung eines implementierten Algorithmus, der die Konzentrationen auf dem ECHAM Gitter bereitstellt (siehe Abschnitt 2.4.8). Mehr zur Benutzung des ECHAM Gitters im folgenden Abschnitt.

³Die Masse m_{cell} eines Luftpaketes ergibt sich dann aus der Gesamtmasse der Atmosphäre geteilt durch die Anzahl der Luftpakete, z. B. gilt bei einer Auflösung von T30

$$m_{\text{cell}} \approx 5.12 \cdot 10^{18} \text{ kg} / 186624 \approx 2.7 \cdot 10^{13} \text{ kg}.$$

⁴Da der Programmcode nach der Anzahl der Pakete parallelisiert und vektorisiert ist, ist es günstig, diese als Produkt kleiner Primzahlen zu wählen, siehe auch Abschnitt 2.4.9.

2.4.2 Zur Benutzung des ECHAM Modellgitters in ATTILA

Obwohl ein Lagrangesches Verfahren an kein bestimmtes Gitter gebunden ist, wurde dennoch ein Algorithmus entwickelt, der in jedem Zeitschritt die Spurenstoffkonzentrationen in den Luftpaketen auf das ECHAM Modellgitter überträgt (Abschnitt 2.4.8). Dies geschah aus mehreren Gründen. Erstens wird damit erreicht, dass der Output von ATTILA dasselbe Format hat wie der Rest des Modells, was die Datenverarbeitung erheblich erleichtert.⁵ Zweitens *müssen* die Konzentrationen auf dem Modellgitter vorliegen, wenn Spurenstoffe transportiert werden, die auf das Zirkulationsmodell rückwirken sollen, z. B. durch Absorption und Emission von Strahlung. Im Hinblick auf zukünftige Entwicklungen ist es daher sinnvoll, ATTILA auf dem ECHAM Modellgitter auszuwerten, da dies die Konzentrationen sind, die ECHAM bei einer Rückkopplung “sehen” wird. Ein weiterer wichtiger Grund aber ist der Umstand, dass ein Gitter sehr hilfreich bei Parameterisierungen ist, die einen Austausch zwischen den Paketen beschreiben. Ohne die Verwendung eines Gitters müsste man in jedem Zeitschritt zu jedem Paket die nächsten Nachbarn bestimmen und auch ihre verschiedenen Entfernungen zum jeweils betrachteten Paket in der Parameterisierung mitberücksichtigen. Ein solcher Ansatz wird in dem Chemie-Transport-Modell CLaMS verfolgt (P. Konopka, pers. Mitteilung), erschien aber für Anwendungen auf der klimatologischen Zeitskala als zu aufwändig. Außerdem können geeignete Parameterisierungen in ECHAM direkt für ATTILA übernommen werden, wenn die Konzentrationen auf dem Modellgitter vorliegen. Dies ist z. B. im Falle der subskaligen Konvektion so geschehen (siehe Abschnitt 2.4.5).

Weil also die Spurenstoffkonzentrationen auf das ECHAM Gitter übertragen werden, wurde die Anzahl der Luftpakete so gewählt, dass sich im globalen Mittel, wie in STOCHEM auch, ungefähr 2 Pakete in einer Gitterbox befinden. Je nach Masse an Luft, die sich in einer Gitterbox befindet, kann diese Zahl aber erheblich schwanken.⁶ In einem regelmäßigen Längengrad-Breitengrad-Gitter haben naturgemäß äquatornahe Gitterboxen mehr Masse als solche in höheren Breiten, und die vertikale Diskretisierung in ECHAM bringt es mit sich, dass die obersten und

⁵In Kapitel 3 wird allerdings gezeigt, wie man durch direkte Auswertung der Trajektorien oftmals zu genaueren Ergebnissen gelangen kann.

⁶Da alle Luftpakete die gleiche Masse besitzen (Abschnitt 2.4.1), ist die Anzahl der Luftpakete in einem Gebiet proportional zur Masse an Luft in diesem Gebiet.

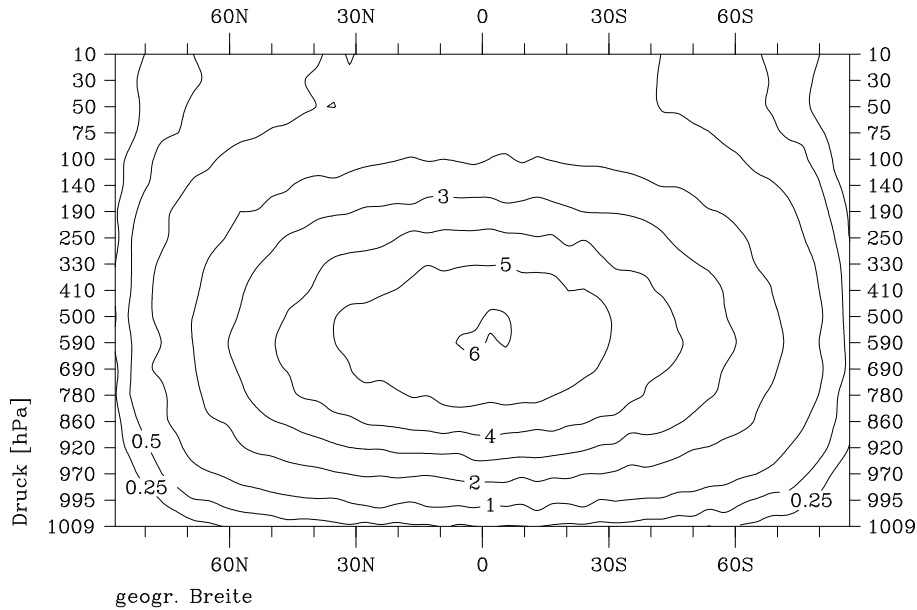


Abbildung 2.1: Zonal gemittelte Anzahl von Luftpaketen in einer ECHAM Gitterbox. Die beschrifteten Teilstriche an der Druckkoordinate geben die ungefähren Höhen der einzelnen ECHAM Schichten wieder. Isolinien sind für die Werte 0.25, 0.5, 1, 2, 3, 4, 5 und 6 dargestellt.

untersten Schichten weniger Masse als die Schichten in der mittleren und oberen Troposphäre haben. Abbildung 2.1 zeigt die zonal gemittelte Anzahl von Luftpaketen pro Gitterbox. In mittleren Breiten befinden sich in der gesamten freien Troposphäre jeweils 2–4 Pakete in einer Gitterbox. In Äquatornähe in Höhen um 600 hPa befinden sich bis zu durchschnittlich 6 Pakete in einer Gitterbox, während in den untersten Schichten in polaren Breiten auf 100 Gitterboxen 6 Pakete kommen. Vor allem die Existenz von solchen “dünn besiedelten” Gebieten gilt es zu berücksichtigen, wenn in ATTILA das ECHAM Gitter benutzt wird. Generell muss man immer die Möglichkeit in Betracht ziehen, dass sich in einer Gitterbox kein Luftpaket befindet. Auf dieses “Problem der leeren Gitterboxen” wird in den nachfolgenden Abschnitten, wo nötig, jeweils gesondert eingegangen.

2.4.3 Berechnung der Trajektorien

Zu Beginn eines Modelllaufes werden die Luftpakete zufällig in der Atmosphäre verteilt, und zwar so, dass die Anzahl der Pakete in einem Kontrollvolumen mit dessen Masse korrespondiert. Dabei wird auch die Orographie berücksichtigt, z. B.

befinden sich in einer Luftsäule über dem Himalaya weniger Pakete als in einer Luftsäule auf dem gleichen Breitengrad über dem Pazifik. Abbildung 2.1 zeigt die anfängliche Verteilung der Pakete bezogen auf das ECHAM Gitter.

i. Advektion durch den skaligen Wind. In jedem Zeitschritt wird das von ECHAM errechnete Windfeld benutzt, um die Positionen der Luftpakete⁷ neu zu bestimmen. Dabei wird das Runge-Kutta-Verfahren 4. Ordnung benutzt, welches in Press et al. (1990, §15.1, S. 550 ff.) allgemein beschrieben wird, und nicht nur in STOCHEM, sondern auch von einer Reihe anderer Autoren zur Berechnung von Trajektorien benutzt wurde (z. B. Sparling et al., 1995; O’Neill et al., 1994; Pierrehumbert und Yang, 1993; Sutton et al., 1994; Waugh und Plumb, 1994). In Anhang A.1 wird dieses Verfahren in der Anwendung auf den hier vorliegenden Fall beschrieben.

Die Trajektorien werden dabei 3-dimensional berechnet, d. h. es wird sowohl der horizontale Wind als auch der vom Modell diagnostizierte vertikale Wind benutzt. Es ist unmittelbar klar, dass einschränkende Annahmen, die die Berechnung von Trajektorien auf zwei Dimensionen reduzieren und häufig auf kürzerfristigen Skalen angewandt werden, wie z. B. die Annahme konstanter potentieller Temperatur entlang einer Trajektorie, in diesem Falle unzulässig sind.

Bemerkung: Diese Annahmen werden meistens gemacht, wenn Trajektorien aus Beobachtungsdaten berechnet werden, da es keine Routinemessungen des vertikalen Windes gibt und die Abschätzung des Vertikalwindes aus anderen Beobachtungsdaten (z. B. mit Hilfe der ω -Gleichung, siehe Holton, 1979, §6.2, S. 136 ff.) relativ ungenau ist. Stammen die Winddaten allerdings von einem dynamisch konsistenten Modell, so sind bei der heute üblichen räumlichen und zeitlichen Auflösung dieser Daten auch auf der kürzerfristigen Skala (von einigen Tagen) 3-dimensionale Trajektorien zu bevorzugen (Stohl und Seibert, 1998; Stohl et al., 1995).

⁷Wenn im Folgenden von der Position eines Luftpaketes gesprochen wird, so ist damit die Position eines Punktes ohne Ausdehnung gemeint, den man sich als Mittelpunkt des Luftpaketes vorstellt. Streng genommen ist der Begriff des Luftpaketes in diesem Kontext überflüssig, da nur Trajektorien berechnet werden. Er gewinnt aber an Bedeutung im restlichen Teil des Modells, wenn die Spurenstoffkonzentrationen an diesen Punkten als repräsentativ für ein bestimmtes Luftvolumen angesehen werden.

Das Runge-Kutta-Verfahren erfordert die zeitliche und räumliche Interpolation des Windfeldes. Da die zeitliche Auflösung von 30 min (bei T30) relativ gut ist im Vergleich zur zeitlichen Auflösung in STOCHEM (6 h) und den meisten anderen Modellen, die von archivierten Daten angetrieben werden (meist ≥ 3 h), erfolgt keine Interpolation des Windfeldes zwischen den einzelnen Zeitebenen. In der Horizontalen erfolgt die Interpolation linear, in der Vertikalen kubisch Hermitesch (siehe Anhang A.2). Methven (1997) fand bei der Entwicklung eines offline Trajektorienmodells, dass vertikale lineare Interpolation wegen der oftmals starken Krümmung der zu interpolierenden Vertikalprofile vor allem in der Tropopausenregion zu unbefriedigenden Ergebnissen führte, und die Verwendung eines kubischen Interpolationsverfahrens entscheidende Verbesserungen brachte. In Methven (1997) erzeugte die kubische Spline-Interpolation die realistischsten Profile, wurde aber aus Kostengründen durch die kubische Polynominterpolation ersetzt. Um dennoch die Gradienten des vertikalen Profils zu berücksichtigen, wurde in ATTILA (wie auch in STOCHEM) das in Anhang A.2 beschriebene kubisch Hermitesche Verfahren verwendet.

Befindet sich ein Luftpaket oberhalb der obersten oder unterhalb der untersten Modellschicht, auf dem die Windfelder vorliegen, so wird der Wind der obersten bzw. untersten Schicht benutzt. Verlässt ein Paket die Modellatmosphäre durch den Ober- bzw. Unterrand, so wird es durch (vertikale) Spiegelung an der jeweiligen Grenzfläche wieder in das Modellgebiet eingesetzt. In diesem Sinne agieren also der Modellober- und -unterrand als “reflektierende” Flächen.

ii. Allgemeine subskalige Turbulenz. Turbulente Schwankungen im Windfeld, die aufgrund der begrenzten Auflösung nicht erfasst werden, sind in den meisten Modellen durch einen stochastischen Prozess parameterisiert. Dabei wird jeweils zum berechneten skaligen Wind eine “zufällige”, turbulente Windkomponente hinzugefügt. In Modellen, die kurzfristige, genaue Trajektorien (vor allem in der Grenzschicht) berechnen, wird diese Windkomponente oftmals durch einen Markov-Prozess basierend auf der Langevin-Gleichung (Thomson, 1987) parameterisiert, wie z. B. im Lagrangeschen Partikeldispersionsmodell FLEXPART (Stohl, 1998b) oder in Heinz (1994). Wilson und Sawford (1996) argumentierten allerdings in ihrem Überblick über die verschiedenen Modelle, dass für Langstreckentransporte auch

einfachere Ansätze — von 0-ter Ordnung, entsprechend einem “random walk” Modell, in dem zur berechneten neuen Position eine zufällige Komponente addiert wird — genügen (siehe auch Stohl, 1998). Eine solche Parameterisierung wurde für das U.K. Nuclear Accident Model NAME entwickelt (Maryon et al., 1991; Maryon und Buckland, 1994), und auch für STOCHEM und ATTILA übernommen.

Dabei wird jedes Luftpaket nach der Advektion durch den skaligen Wind um eine bestimmte Zufallsgröße versetzt, so dass sich für die Position eines Paketes insgesamt folgende Gleichung ergibt:

$$r_i(t + \Delta t) = r_i(t) + u_i^{\text{RK4}}(\vec{r}(t), t) \cdot \Delta t + A_i \cdot X_i, \quad i = x, y, \eta, \quad (2.1)$$

wobei r_i die Position, Δt der Zeitschritt, \vec{u}^{RK4} der vom Runge-Kutta-Schema gelieferte Wind (siehe Anhang A.1), A_i eine noch festzulegende Größe und X_i eine gleichverteilte Zufallsvariable mit dem Wertebereich $[-1; 1]$ ist. Mit

$$A_x = A_y = \sqrt{2 \cdot \Delta t \cdot K_h} \quad \text{und} \quad A_\eta = \sqrt{2 \cdot \Delta t \cdot K_v} \quad (2.2)$$

reduziert sich das Problem auf die Bestimmung von K_h und K_v , die die horizontale und vertikale Diffusivität der Atmosphäre repräsentieren.

Im Modell NAME werden K_h und K_v so gewählt, dass vorhandene Beobachtungen von Punktquellen möglichst gut reproduziert werden, wobei die so gefundenen Werte während des Modelllaufes dann konstant bleiben. In STOCHEM wird für K_h in der Grenzschicht ein konstanter Wert von $5300 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ benutzt. Oberhalb der Grenzschicht ist die Turbulenz kleiner, aber noch nicht sehr gut untersucht, so dass wie in NAME als grobe Abschätzung 25% des Grenzschichtwertes, also $1325 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, dient (Maryon und Buckland, 1994). Für K_v wird in STOCHEM ein Wert von $7 \cdot 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ verwendet. Allerdings wurde festgestellt, dass dieser Wert möglicherweise entschieden zu hoch gewählt ist. Eine Verringerung von K_v um zwei Größenordnungen brachte berechnete Ozonprofile vor allem in der Stratosphäre weitaus besser in Einklang mit Beobachtungen und auch die Gradienten an der Tropopause waren realistischer (C. Johnson, pers. Mitteilung).

Ferner wurde in Experimenten mit ATTILA festgestellt, dass der horizontale Anteil dieser Parameterisierung sehr wenig Einfluss auf die Ergebnisse hat, was auch die Beobachtungen von Maryon und Buckland (1994) und Uliasz (1994) bestätigt. Diese Insensitivität bezüglich K_h , der Umstand, dass die vertikale Diffusion oberhalb

der Grenzschicht in NAME auch Prozesse repräsentieren soll, die in ATTILA anderweitig parameterisiert sind (wie z. B. der Transport in Wolken), und die allgemeine Unsicherheit in der Bestimmung von K_h und K_v aus Einzelfallstudien, gaben die Veranlassung, in der derzeitigen Version von ATTILA die Parameter K_h und K_v auf Null zu setzen, und somit subskalige turbulente Windschwankungen (oberhalb der Grenzschicht) unberücksichtigt zu lassen.

iii. Grenzschichtturbulenz. Innerhalb der planetaren Grenzschicht hingegen können turbulente Mischungsvorgänge nicht vernachlässigt werden. Wie auch in STOCHEM wird angenommen, dass innerhalb eines Zeitschrittes die Grenzschicht vertikal vollständig durchmischt wird, und somit die Luftpakete ihre "Identität" verlieren und ihre vertikale Position "vergessen". Dieser Prozess kann dadurch parameterisiert werden, dass in jedem Zeitschritt alle Pakete innerhalb der Grenzschicht vertikal per Zufall neu positioniert werden (Maryon et al., 1991). Diese Methode hat auch zur Folge, dass innerhalb der Grenzschicht die Pakete im Durchschnitt einen vertikal gemittelten Horizontalwind erfahren, ein Verfahren, das auch bei der kurzfristigen Berechnung von Trajektorien in der Grenzschicht angewandt wird (Stohl et al., 1995).

Werden die Luftpakete oberhalb der Grenzschicht wie in (ii.) beschrieben zufällig um $A_\eta \cdot X_\eta$ vertikal versetzt⁸, innerhalb der Grenzschicht aber lediglich vertikal neu positioniert, so würde dies zu einer Anhäufung von Trajektorien in der Grenzschicht führen (siehe Anhang A.3). Um diesen Fluss zu kompensieren, werden die Pakete in der Grenzschicht nicht innerhalb der Grenzschicht, also bis zur Grenzschichthöhe η_{BL} , neu positioniert, sondern innerhalb einer etwas mächtigeren Schicht bis zu einer Höhe von $\eta_{BL} - \eta_+$ mit $\eta_+ \geq 0$ (die Vertikalkoordinate η in ECHAM nimmt mit zunehmender Höhe ab). In Anhang A.3 wird gezeigt, dass unter realistischen Bedingungen $\eta_+ = A_\eta/4$ eine geeignete Wahl ist (siehe auch Maryon et al., 1991).

In diesem Zusammenhang wird von Maryon et al. (1991) und Maryon und Buckland (1994) auch darauf hingewiesen, dass eine korrekte Bestimmung der Grenzschichthöhe sehr wichtig ist, auch im Hinblick auf andere Prozesse wie Trockendeposition und Bodenemissionen (siehe 2.4.6). Darauf wird in Abschnitt 2.4.7 näher

⁸Man beachte, dass in der derzeitigen Version von ATTILA $A_\eta = 0$ ist (siehe vorhergehender Abschnitt).

eingegangen.

iv. Langzeitentwicklung der Trajektorien. Bei Ausbreitungsrechnungen auf regionaler Skala werden Trajektorien geeignet initialisiert, so dass ihre Verteilung die Verteilung des simulierten Spurenstoffes widerspiegelt. Bei globalen Anwendungen hingegen werden die Luftpakete über das gesamte Modellgebiet verteilt. Wählt man eine nichtstationäre Verteilung, d.h. eine Verteilung, bei der die Anzahldichte der Trajektorien⁹ mit der Zeit gegen einen anderen als den Anfangswert konvergiert, so ist in regelmäßigen Abständen eine Neuinitialisierung der Trajektorien notwendig. Solche Schritte sind allerdings zu vermeiden, da sie im Wesentlichen die gleichen numerischen Fehler erzeugen wie semi-Lagrangesche Verfahren (Rood, 1987). Ein semi-Lagrangesches Verfahren kann in der Tat als ein rein Lagrangesches Verfahren angesehen werden, in dem die Trajektorien zu *jedem* Zeitschritt neu initialisiert werden, und zwar so, dass sie nach einem Zeitschritt auf einem fest vorgegebenem Gitter enden.

Da in den von ECHAM erzeugten Feldern die Divergenz des Massenflusses $\nabla(\rho\vec{u})$ im Mittel verschwindet¹⁰, ist eine Verteilung dann stationär, wenn die Anzahldichte der Trajektorien proportional zur Dichte ρ der Luft ist. Deshalb wurde in ATTILA die in Abbildung 2.1 gezeigte, theoretisch stabile, Anfangsverteilung gewählt, und nicht etwa eine — zunächst vielleicht naheliegende — Verteilung mit jeweils gleich vielen Trajektorien in jeder Modellschicht. Will man jetzt die auf den Trajektorien gegebenen Spurenstoffkonzentrationen als repräsentativ für eine bestimmte Menge umgebender Luft ansehen, so müssen sie als repräsentativ für eine bestimmte Masse an Luft (und nicht etwa für ein bestimmtes Volumen) angesehen werden, weshalb in dieser Beschreibung von ATTILA von Anfang an von Luftpaketen *gleicher Masse* die Rede war.

Aufgrund numerischer Fehler kann aber auch eine theoretisch stationäre Verteilung in der Praxis instationär sein. Von STOCHEM wurde z. B. eine Anhäufung von Trajektorien in der oberen Troposphäre um 50°S gefunden, während in den obersten Modellschichten nördlich von 40°N zu wenig Trajektorien waren (C. Johnson,

⁹Anzahl der Trajektorien pro Volumeneinheit.

¹⁰In einem einzelnen Zeitschritt kann die Divergenz sehr wohl ungleich Null sein, und entspricht dann der lokalen zeitlichen Änderung der Dichte ρ .

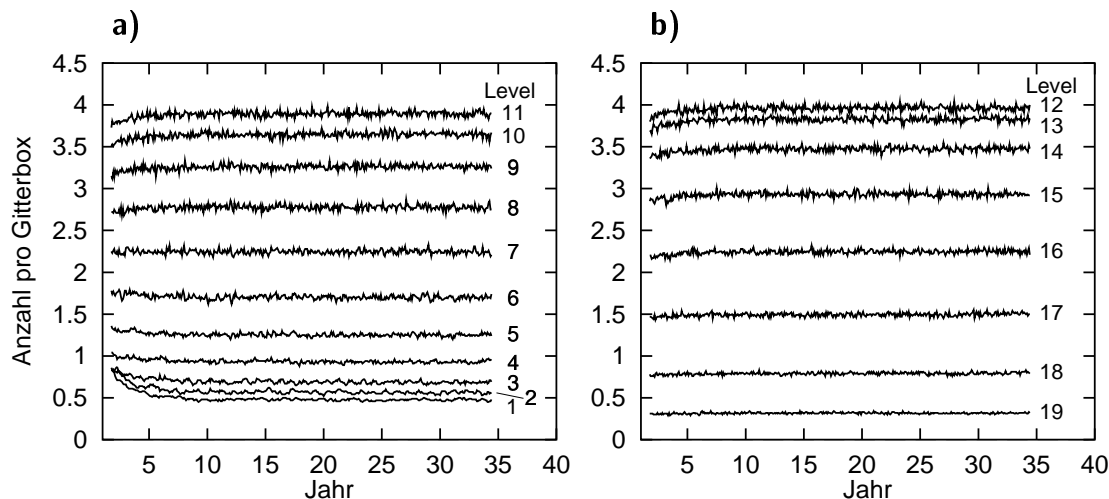


Abbildung 2.2: Zeitliche Entwicklung der Anzahldichten in den obersten 11 (a) und untersten 8 (b) Modellschichten. Gezeigt ist die durchschnittliche Anzahl von Trajektorien pro ECHAM Gitterbox in der jeweiligen Schicht.

pers. Mitteilung). Vor allem bei der Integration über klimatologische Zeiträume muss aber darauf geachtet werden, dass sich die Verteilung der Trajektorien nicht zu sehr von der Anfangsverteilung entfernt, da dies auch bedeuten würde, dass die Massenfelder in ECHAM und in ATTILA verschieden sind. In Abbildung 2.2 ist daher die zeitliche Entwicklung der Anzahldichte in den einzelnen Modellschichten über 35 Jahre hinweg dargestellt. In den ersten fünf Jahren fällt dabei die Anzahldichte in den obersten 2–3 Modellschichten ab, während sie in der mittleren Troposphäre leicht ansteigt. In den darauf folgenden Jahren bleibt die Verteilung dann relativ stabil. Wie sich dies auf den Massentransport in ATTILA auswirkt, ist in Abbildung 2.3 zu sehen. Dort ist analog zu Abbildung 2.1 die zonal gemittelte Anzahl von Luftpaketen in einer ECHAM Gitterbox nach 10 bzw. 30 Jahren gezeigt. Da alle Luftpakete die gleiche Masse haben, sind die in Abbildung 2.3 gezeigten Verteilungen proportional zur Verteilung der Masse in ATTILA und sollten im Idealfall mit der Verteilung der Masse in ECHAM (die durch die Anfangsverteilung der Luftpakete in Abbildung 2.1 repräsentiert wird) übereinstimmen. Ein Vergleich der Abbildungen 2.1 und 2.3 zeigt, dass die Verteilungen qualitativ übereinstimmen, dass aber — wie auch schon aus Abbildung 2.2 abzulesen war — in den obersten Modellschichten nach 10 Jahren zu wenig Masse vorhanden ist, während in der mittleren Troposphäre zu viel Masse vorhanden ist. Die größten Unterschiede

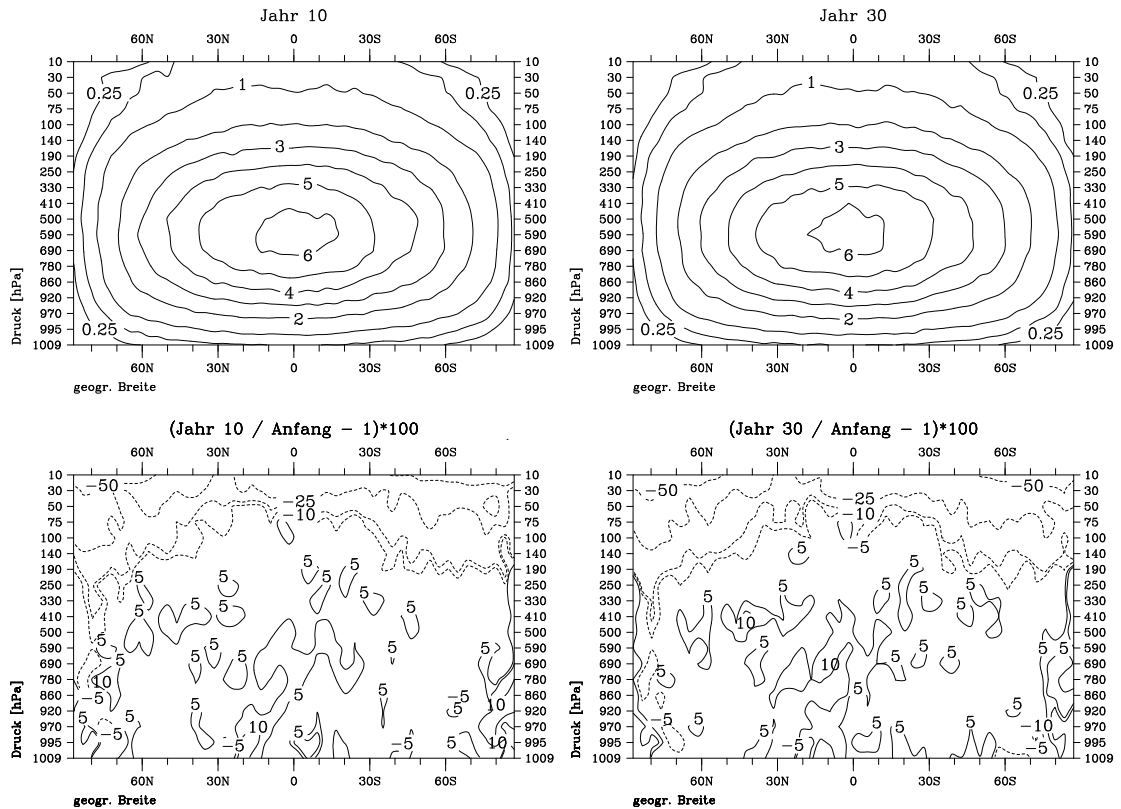


Abbildung 2.3: Oben: Zonal gemittelte Anzahl von Luftpaketen in einer ECHAM Gitterbox nach 10 bzw. 30 Jahren. Die beschrifteten Teilstriche an der Druckkoordinate geben die ungefähren Höhen der einzelnen ECHAM Schichten wieder. Isolinien sind für die Werte 0,25, 0,5, 1, 2, 3, 4, 5 und 6 dargestellt. Unten: Relativer Unterschied der obigen Verteilungen zur Anfangsverteilung in Abbildung 2.1. Isolinien sind für die Werte -50, -25, -10, -5, 5, 10, 25, 50 % dargestellt.

ergeben sich dabei in hohen Breiten oberhalb von 30 hPa, wo die Masse um bis zu 50% abnimmt. In der Troposphäre und unteren Stratosphäre hingegen unterscheiden sich die Verteilungen meist um weniger als 10%. Ferner bleibt die nach 10 Jahren erreichte Verteilung dann für mehr als 20 Jahre stabil, so dass in ATTILA keine Prozedur zur Neuinitialisierung der Trajektorien implementiert wurde, und somit eine mögliche Quelle numerischer, für nicht Lagrangesche Verfahren typischer Fehler ausgeschlossen wurde.

Bemerkung: Die Einteilung der Atmosphäre in Luftpakete gleicher Masse bringt auch Nachteile mit sich. Während in einem Eulerschen Modell die räumliche Auflösung explizit durch Vorgabe des Gitters festgelegt werden kann, ist dies in ATTILA nur indirekt über die Anzahl der Trajektorien möglich. Insbesondere hat

man keinen Einfluss auf die räumliche Struktur der Auflösung; will man in einer bestimmten Region die Auflösung erhöhen, so muss man dies entsprechend für das gesamte Modellgebiet tun. Dieser Nachteil kommt besonders dann zum Tragen, wenn die Modellatmosphäre einen großen Höhenbereich umfasst. Läge der Modellobergrenze von ECHAM z. B. bei 80 km (0.01 hPa), so befände sich lediglich eines von 1000 Luftpaketen in der gesamten Mesosphäre zwischen 50 und 80 km (1–0.01 hPa), während sich 900 in den untersten 16 km (>100 hPa) aufhielten. Bei der Entwicklung eines Lagrangeschen Transportschemas für ein Mittelatmosphärenmodell wie beispielsweise MA-ECHAM4 (Manzini und McFarlane, 1998) wäre daher zu überlegen, ob nicht der Nachteil einer regelmäßigen (und möglicherweise nur in größeren zeitlichen Abständen stattfindenden) Neuinitialisierung durch den Vorteil einer homogeneren räumlichen Auflösung aufgewogen wird, besonders dann, wenn im Mittelpunkt der mit einem solchen Modell durchgeführten Studien Vorgänge in der Stratosphäre oder Mesosphäre stehen.

2.4.4 Austausch zwischen den Luftpaketen

Wie in den vorangegangenen Abschnitten erläutert, sind in ATTILA die Spurenstoffkonzentrationen¹¹ an Punkten gegeben, die sich mit dem Wind mitbewegen. Man stellt sich diese Punkte als die Mittelpunkte von Luftpaketen gleicher Masse vor und nimmt an, dass die dort gegebenen Konzentrationen repräsentativ für das gesamte Paket sind. Mit der Zeit verzerren sich jedoch diese Luftpakete, so dass nach einer gewissen Zeit die einen Punkt umgebende Luftmasse nicht mehr mit dem ursprünglichen Luftpaket identisch ist. Um zu gewährleisten, dass die an einem Punkt gegebene Konzentration charakteristisch für die ihn umgebende Luft ist, muss man also berücksichtigen, dass sich die Zusammensetzung dieser umgebenden Luft fortlaufend ändert. Dies kann dadurch berücksichtigt werden, indem benachbarte Luftpakete kontrolliert miteinander vermischt werden.

In ATTILA wird dieser Austauschprozess dadurch realisiert, dass in jedem Zeitschritt das Massenmischungsverhältnis c eines Spurenstoffes in einem Luftpaket einer "Hintergrundkonzentration" \bar{c} durch Addition des Termes $(\bar{c} - c) \cdot d$ angenähert wird. Dabei ist d ein dimensionsloser Mischungsparameter mit Wertebereich $[0; 1]$,

¹¹Wenn in den folgenden Abschnitten von Konzentrationen die Rede ist, so sind damit immer Massenmischungsverhältnisse gemeint.

der die Stärke des Austausches kontrolliert. Die Hintergrundkonzentration \bar{c} wird als Durchschnittskonzentration der benachbarten Luftpakete berechnet. Da es numerisch relativ aufwändig ist, zu jedem Paket die nächsten Nachbarn zu bestimmen, wird in ATTILA \bar{c} als Durchschnitt über alle Pakete, die sich in der gleichen ECHAM Gitterbox befinden, berechnet. Dies hat zudem den Vorteil, dass diese Prozedur massenerhaltend ist, wie in Anhang B.1 gezeigt wird.

In Anlehnung an die Modelle STOCHEM und GRANTOUR wird für d pauschal ein Wert von 10^{-3} in der Troposphäre und ein Wert von $5 \cdot 10^{-4}$ in der Stratosphäre vorgeschrieben, wobei die Unterscheidung zwischen diesen beiden Regionen bei ungefähr 160 hPa liegt (Collins et al., 1997; Walton et al., 1988). Unter den in Anhang B.2 getroffenen Annahmen entspricht dieser Wert von d in der mittleren Troposphäre einem horizontalen Diffusionskoeffizienten von 10^3 bis 10^4 m^2s^{-1} , was sich auch mit Beobachtungen deckt (siehe z. B. Roedel, 1994, S. 271).

Dennoch bleibt die Wahl von d ein willkürlicher Akt, vor allem auch deshalb, weil damit der aktuelle Zustand der Atmosphäre, der ja die Stärke der Vermischung maßgeblich beeinflusst, unberücksichtigt bleibt. An dieser Stelle erhebt sich deshalb die Frage, inwieweit ein Modell mit einer solch einfachen Parameterisierung des Austausches zwischen den Luftpaketen den globalen Transport von Spurenstoffen realistisch beschreiben kann. Dazu betrachte man ein hypothetisches Experiment, in dem sich ein Spurenstoff in nur einem Luftpaket befindet. In diesem Fall ist der Transport dieses Spurenstoffes stark von der Vermischung der Luftpakete abhängig. Würde man z. B. keinen Austausch zwischen den Luftpaketen zulassen (d. h. $d = 0$ setzen), so würde das Modell an jeweils einer bestimmten Stelle eine Konzentration vorhersagen, die so hoch ist wie am Anfang, egal wie lange man in die Zukunft integrieren würde, was offensichtlich unrealistisch ist. Wird hingegen ein Spurenstoff nicht nur von einem Luftpaket "getragen", sondern von einer großen Anzahl von Luftpaketen wie es bei den in dieser Arbeit betrachteten Spurenstoffen der Fall ist, so wird der Transport dieses Spurenstoffes hauptsächlich von der Verteilung der Luftpakete bestimmt, während der Austausch zwischen den Luftpaketen dann eine untergeordnete Rolle spielt. Dies gilt vor allem dann, wenn benachbarte Luftpakete sowieso recht ähnliche Konzentrationen tragen, also bei Spurenstoffen mit einer relativ homogenen Verteilung.

Die obigen theoretischen Ausführungen werden auch durch die Praxis bestätigt: In

den Experimenten zum Spurenstofftransport (Kapitel 3) wurde festgestellt, dass die berechneten Verteilungen relativ unempfindlich gegenüber Änderungen von d sind. Vor allem bei kurzlebigen Stoffen wie Radon (^{222}Rn) sind die Verteilungen sehr ähnlich, was auch in Experimenten mit STOCHEM (Stevenson et al., 1998a) bestätigt wird. Der Einfluss von d auf das Transportverhalten von ATTILA ist dabei am größten bei langlebigen Spurenstoffen mit starken Gradienten in ihrer Verteilung. Da dies von den in Kapitel 3 vorgestellten Spurenstoffen am ehesten für Radiokarbon (^{14}C) zutrifft, wurde für diesen Spurenstoff eine Sensitivitätsstudie durchgeführt (siehe Abschnitt 3.4.5).

Abschließend sei hier noch als Alternative zur pauschalen Festlegung von d ein Ansatz von Smagorinsky (1963) vorgestellt, der auch im Modell GRANTOUR benutzt wird (Walton et al., 1988) und der den Diffusionskoeffizienten in Abhängigkeit von der Windscherung beschreibt. Danach ergibt sich für d

$$d = 1 - \frac{1}{1 + 2k^2 S \Delta t}, \quad (2.3)$$

wobei $k = 0.4$ eine Diffusionskonstante, S die horizontale Windscherung und Δt der Zeitschritt ist. Eine Herleitung dieser Formel wird in Anhang B.2 gegeben (siehe auch Walton et al., 1988; Smagorinsky, 1963). Hierbei ist allerdings zu bemerken, dass dieser Ansatz auf einer Reihe sehr vereinfachender Annahmen beruht; so wird z. B. die Konzentration in einem Luftpaket als Abweichung von einer Hintergrundkonzentration in Form einer horizontalen Gaußschen Funktion angesehen und die vertikale Scherung vernachlässigt (obwohl diese meist viel größer ist als die horizontale Scherung).

Obige Formulierung liefert Werte von d , die vor allem im subtropischen Strahlstrom um ca. eine Größenordnung über den fest vorgeschriebenen Werten liegen (siehe Abbildung 2.4), und somit den Transport im Modell diffusiver erscheinen lassen, was auch von Walton et al. (1988) im Modell GRANTOUR beobachtet wurde. Da es aber auf jeden Fall vermieden werden soll, in ein Lagrangesches und numerisch nichtdiffusives Modell künstlich eine zu hohe Diffusion einzuführen, wurde für die in Kapitel 3 vorgestellten Experimente, sofern nicht anderes gesagt wird, der Mischungsparameter d fest vorgeschrieben, und zwar, wie oben erläutert, durch die Werte 10^{-3} in der Troposphäre und $5 \cdot 10^{-4}$ in der Stratosphäre. Der soeben vorgestellte Ansatz wurde aber in der oben erwähnten Sensitivitätsstudie zum Transport von ^{14}C (Abschnitt 3.4.5) mitberücksichtigt.

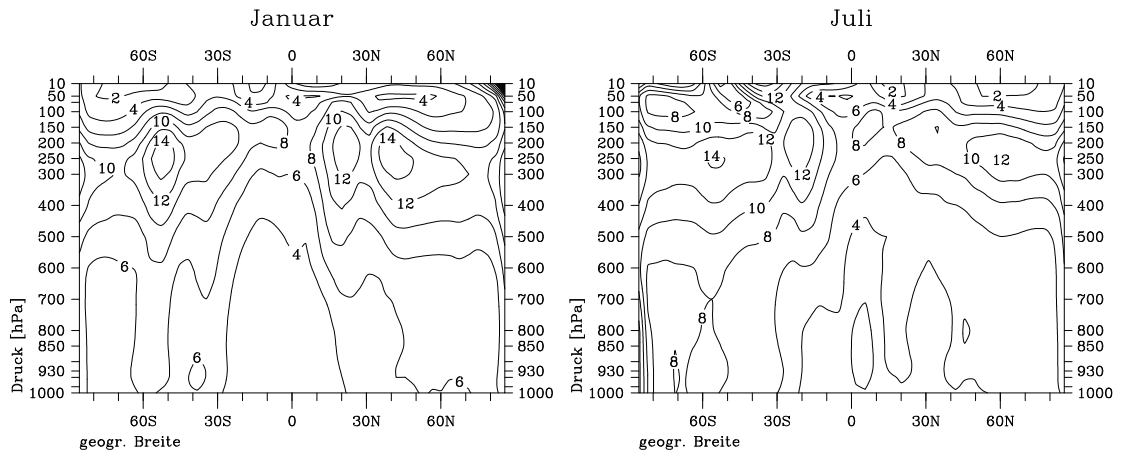


Abbildung 2.4: Mischungsparmeter d in ECHAM berechnet aus der Windscherung, zonal und über 10 Jahre gemittelt, links für Januar, rechts für Juli. Einheit: 10^{-3} .

2.4.5 Subskalige Konvektion

Eine wichtige Rolle beim Transport von Spurenstoffen spielt die subskalige Konvektion, da sie einen effektiven Mechanismus darstellt, der Spurenstoffe vom Boden in die freie Atmosphäre bis zur Tropopause verfrachtet (z. B. Stevenson et al., 1998a). Modelle wie STOCHEM, die offline laufen, müssen bei der Berechnung dieses Prozesses auf die archivierten Standardvariablen zurückgreifen, wie z. B. Wolkenbedeckungsgrad und konvektive Niederschlagsrate, die noch dazu in einer zeitlich sehr groben Auflösung vorliegen. In ATTILA kann hingegen zu jedem Zeitschritt die volle Information, die das Konvektionsschema von ECHAM (nach Tiedtke, 1989) liefert, genutzt werden. In der derzeitigen Version von ATTILA werden die Spurenstoffe sogar nach exakt demselben Verfahren wie im semi-Lagrangeschen Schema in ECHAM transportiert. Dazu werden in jedem Zeitschritt die folgenden 3 Schritte durchgeführt, die auch in Abbildung 2.5 anschaulich dargestellt sind:

1. Zuerst werden die auf den Luftpaketen gegebenen Konzentrationen auf das ECHAM Modellgitter übertragen. Die Konzentration c_{box} eines Spurenstoffes in einer Gitterbox wird berechnet als Masse des Spurenstoffes in dieser Box geteilt durch die Masse m_{box} an Luft in dieser Box. Unter Benutzung der in Abschnitt 2.4.4 berechneten durchschnittlichen Konzentration \bar{c} ergibt sich also $c_{\text{box}} = n \cdot \bar{c} \cdot m_{\text{cell}} / m_{\text{box}}$, wobei n die Anzahl der Luftpakete in der jeweiligen Gitterbox und m_{cell} die Masse eines Luftpaketes ist (vgl. Anhang B.1).

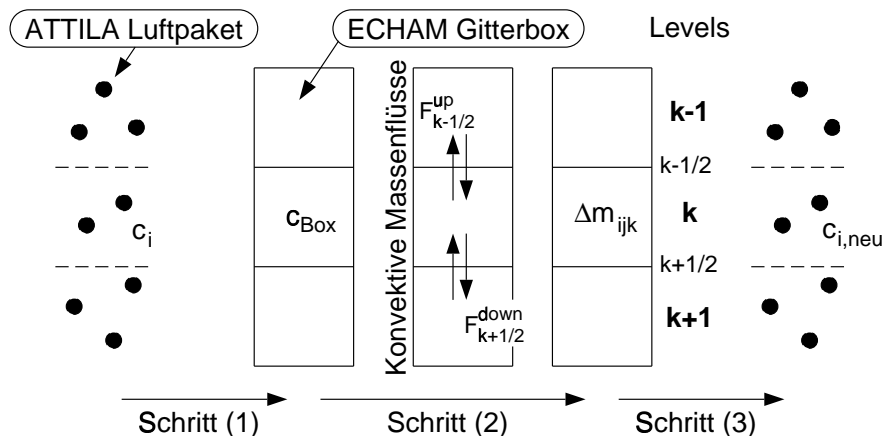


Abbildung 2.5: Schematische Illustration der subskaligen Konvektion in ATTILA, siehe Text für Details.

- Die auf dem Modellgitter gegebenen Konzentrationen c_{box} dienen — genau so wie die Verteilung eines semi-Lagrangeschen Tracers — als Input für das Konvektionsschema in ECHAM. Das Ergebnis dieser Berechnungen sind konvektive Spurenstoffmassenflüsse, die in eine Änderung der Spurenstoffmasse Δm_{ijk} für jede Gitterbox umgerechnet werden (i , j und k bezeichnen die Indizes für die Gitterboxen in zonaler, meridionaler bzw. vertikaler Richtung). Man beachte, dass das Konvektionsschema für jede Luftsäule über einem Gitterquadrat massenerhaltend ist ($\sum_k \Delta m_{ijk} = 0$), was auch die Massenerhaltung in ATTILA gewährleistet.
- Die so berechneten Tendenzen Δm_{ijk} werden wieder auf die Lagrangeschen Luftpakete zurückübertragen. Das heißt, dass im Falle fehlender Konvektion ($\Delta m_{ijk} = 0$) die Konzentrationen der Luftpakete unverändert bleiben. Gewinnt eine Gitterbox Spurenstoffmasse dazu ($\Delta m_{ijk} > 0$), so wird diese zusätzliche Masse gleichmäßig auf die Pakete in dieser Box verteilt. Verliert hingegen eine Gitterbox Spurenstoffmasse ($\Delta m_{ijk} < 0$), so verlieren alle Pakete darin auch an Spurenstoffmasse, und zwar je nach Verfügbarkeit; präziser ausgedrückt, wenn m_{alt} und $m_{neu} = m_{alt} + \Delta m_{ijk} (< m_{alt})$ die Spurenstoffmasse in einer Gitterbox vor und nach Berechnung der Konvektion bezeichnen, werden die Konzentrationen der Pakete in dieser Box mit dem Faktor $m_{neu}/m_{alt} (< 1)$ multipliziert.

Bei dieser gesamten Prozedur taucht allerdings ein Problem auf, nämlich das Problem der “leeren Gitterboxen”, d. h. Gitterboxen, in denen sich keine Luftpakete befinden. In solchen Boxen ist eigentlich eine Spurenstoffkonzentration nicht definiert, und es ist auch nicht klar, wie von Null verschiedene Tendenzen $\Delta m_{ijk} \neq 0$ behandelt werden sollen. In der derzeitigen Version von ATTILA wird eine anfängliche Konzentration von Null angenommen und dem Konvektionsschema übergeben. In Schritt (2) werden dann vor der Berechnung der Tendenzen Δm_{ijk} alle konvektiven Massenflüsse von und in solche Boxen ($F_{k\pm 1/2}^{\text{up}}$ und $F_{k\pm 1/2}^{\text{down}}$ in Abbildung 2.5) auf Null gesetzt. Dies garantiert Massenerhaltung und eine Tendenz $\Delta m_{ijk} = 0$ in den leeren Gitterboxen, verhindert aber den konvektiven Transport durch solche Boxen. Obwohl diese Methode den konvektiven Transport gewissermaßen künstlich reduziert, ist der erwartete Effekt klein, weil leere Gitterboxen hauptsächlich in Gebieten vorkommen, in denen sie relativ wenig Masse besitzen, also in hohen Breiten und in den untersten und obersten Modellschichten (vgl. Abbildung 2.1). Dort tritt aber subskalige Konvektion sehr selten auf (vgl. Abbildung 5.2).

Bemerkung: Bei der Auswertung des Radon-Experimentes (siehe Abschnitt 3.3) kann man sehen, dass der oben vorgestellte Ansatz sehr gut funktioniert. Dennoch ist er aus der Sicht der Lagrangeschen Modellierung unbefriedigend, weil die Berechnungen für jeden Spurenstoff einzeln und auf einem Gitter, das mit dem Lagrangeschen Schema nichts zu tun hat, stattfinden, während die Positionen der Pakete unverändert bleiben. Vielmehr wäre ein Ansatz wünschenswert, in dem die Konzentrationen in den Paketen unverändert bleiben und nur die (vertikale) Position der Luftpakete neu berechnet wird.

Nichtsdestotrotz ist der hier vorgestellte Ansatz ein erster Schritt zur Nutzung der vollen Information eines umfangreichen Konvektionsschemas in einem online laufenden Lagrangeschen Modell, und stellt eine deutliche Verbesserung gegenüber den relativ einfachen Abschätzungen in offline Modellen dar. Für zukünftige Weiterentwicklungen von ATTILA ist es aber überlegenswert, diesen Ansatz durch einen “rein Lagrangeschen” zu ersetzen.

Während es für den Spurenstofftransport egal ist, ob die Positionen der Luftpakete verändert werden oder in entsprechender Weise die Konzentrationen der Spurenstoffe in den Paketen, muss man bei der Auswertung der Trajektorien berücksichtigen,

dass diese durch die subskalige Konvektion nicht direkt¹² beeinflusst werden. Da der Stratosphären-Troposphären-Austausch in Kapitel 5 mit Hilfe der Trajektorien untersucht wird, wird an entsprechender Stelle noch einmal näher auf diese Problematik eingegangen (siehe Abschnitt 5.2).

An dieser Stelle mag sich der Leser vielleicht fragen, warum nicht das gleiche Konzept — nämlich die Nutzung von Daten aus einer ECHAM Parameterisierung für Berechnungen in ATTILA — für die Beschreibung des Transportes in der Grenzschicht (Abschnitt 2.4.3) angewandt wurde. In der Tat wurde dieser Ansatz anfänglich auch verfolgt, jedoch stellte sich heraus, dass dieser zu unbefriedigenden Ergebnissen führte. Eine nähere Betrachtung zeigte, dass die hauptsächliche Fehlerquelle im schon erwähnten Problem der leeren Gitterboxen lag. Der Grund hierfür liegt in der räumlichen Struktur der Auflösung von ATTILA: Da alle Luftpakete die gleiche Masse haben, wird ein Gebiet um so besser aufgelöst je mehr Masse es beinhaltet. Am Ende des Abschnittes 2.4.3 wurde bereits bemerkt, dass sich dies besonders nachteilig in einem Mittelatmosphärenmodell auswirken würde, da die Atmosphäre oberhalb von 10 hPa nur noch 1% der Gesamtmasse ausmacht. Das gleiche Problem — wenn auch nicht so ausgeprägt — ergibt sich auch für Prozesse in der Grenzschicht (siehe auch Abbildung 2.1). Bei einer Grenzschichthöhe von 1 km befinden sich z. B. über einem Gitterquadrat in mittleren Breiten lediglich 4 Luftpakete in der Grenzschicht (vgl. Anhang A.3). In der untersten Modellschicht kommt sogar nur auf jede zweite Gitterbox ein Luftpaket. Diese Betrachtungen legen nahe, was auch durch die Praxis bestätigt wird, nämlich dass bei Anwendung des gleichen Konzeptes wie oben für die Konvektion beschrieben das Problem der leeren Gitterboxen eine nicht mehr vernachlässigbare Fehlerquelle darstellt. Aus diesem Grund wurde für die Behandlung des Transportes in der Grenzschicht der in Abschnitt 2.4.3 beschriebene Ansatz von Maryon et al. (1991) benutzt, der auch in STOCHEM zur Anwendung kommt. Dieser Ansatz ist allerdings recht einfach und berücksichtigt z. B. nicht die verschiedenen Schichtungsstabilitäten in einer Grenzschicht, so dass ATTILA in der derzeitigen Version nur beschränkt für die Untersuchung von Transportvorgängen in der Grenzschicht geeignet ist. Bei den Experimenten zum Spurenstofftransport (Kapitel 3) kann man allerdings sehen, dass die von ATTILA

¹²Ein indirekter Einfluss ergibt sich natürlich über den Einfluss der Konvektion auf das Temperatur- und Windprofil.

berechneten Konzentrationen in der Grenzschicht durchaus realistisch sind. Darauf wird dann in den einzelnen Experimenten jeweils näher eingegangen.

2.4.6 Quellen und Senken

Quellen können in ATTILA in Form von Emissionen vorgeschrieben werden. Bodenemissionen werden dabei gleichmäßig auf alle Luftpakete verteilt, die sich über einem gegebenem Gitterquadrat innerhalb der Grenzschicht befinden. Dreidimensionale Emissionen werden gleichmäßig auf alle Pakete in einer gegebenen Gitterbox verteilt. Falls keine Luftpakete da sind, um die Emissionen aufnehmen zu können, werden diese gespeichert, und abgegeben, sobald ein Luftpaket vorbei kommt.

Da in den in Kapitel 3 vorgestellten Experimenten die einzige Senke der radioaktive Zerfall ist, werden in ATTILA Senken in Form von Halbwertszeiten $\tau_{1/2}$ vorgeschrieben. Die Massenmischungsverhältnisse in den Luftpaketen werden dabei in jedem Zeitschritt mit dem Faktor $\exp(-\ln 2 \cdot \Delta t / \tau_{1/2})$ multipliziert, wobei Δt der Zeitschritt ist.

2.4.7 Berechnung der Grenzschichthöhe

Die Höhe der Grenzschicht wird benötigt, um die Parameterisierung der Grenzschichtturbulenz (Abschnitt 2.4.3) und die Verteilung der Bodenemissionen (Abschnitt 2.4.6) zu berechnen. Das in ATTILA benutzte Schema zur Diagnose der Grenzschichthöhe wird auch in STOCHEM verwendet und stammt von Maryon und Best (1992), die sechs verschiedene Methoden testeten und mit Beobachtungen aus Radiosondenaufstiegen verglichen. Dieses Schema wird in Anhang C detailliert beschrieben und besteht im Wesentlichen aus zwei verschiedenen Verfahren, von denen dann jeweils dasjenige benutzt wird, das die größere Höhe liefert. Das erste, "trockenadiabatische" Verfahren berechnet die Höhe der Grenzschicht als Schnittpunkt des Temperaturprofils mit der Trockenadiabate ausgehend von einer bodennahen Temperatur. Das zweite Verfahren nimmt als Höhe der Grenzschicht die Höhe, bei der, vom Boden ausgehend, die Richardson-Zahl zum ersten Mal einen bestimmten Wert überschreitet. Die freien Parameter in diesen Verfahren wurden dabei so angepasst, dass die beobachteten Grenzschichthöhen möglichst gut wiedergegeben werden.

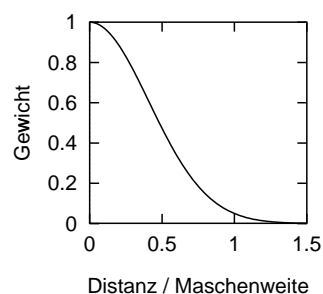
horiz. Auflösung	$\Delta\lambda$	R_{\max}	R_{σ}
T21	5.625°	10°	3.25°
T30	3.75°	6.5°	2.17°

Tabelle 2.1: Wahl der Glättungsparameter in ATTILA.

2.4.8 Modell-Output

Aus den in Abschnitt 2.4.2 genannten Gründen wurde in ATTILA ein Algorithmus implementiert, der zu jedem Zeitschritt die Konzentrationen der Spurenstoffe von den Luftpaketen auf das ECHAM Modellgitter überträgt. Dazu wird zunächst in jeder Gitterbox die durchschnittliche Konzentration über alle Pakete in dieser Box berechnet (die schon berechnete Durchschnittskonzentration \bar{c} aus Abschnitt 2.4.4 wird benutzt). Da es vorkommen kann, dass sich in einigen Gitterboxen keine Luftpakete befinden, und dort somit \bar{c} nicht definiert ist, wird diese Verteilung noch horizontal geglättet. Ähnlich wie in STOCHEM geschieht dies dadurch, dass für jede Gitterbox alle umliegenden — bis zu einer Großkreisdistanz von R_{\max} — *nichtleeren* Boxen betrachtet werden. Die neue Konzentration c_{smooth} ist dann der gewichtete Durchschnitt aller dieser Boxen, mit den Gewichten $\exp(-r_d^2/R_{\sigma}^2)$, wobei r_d die Großkreisdistanz der jeweiligen in den Durchschnitt eingehenden Box zur betrachteten Box ist, und R_{σ} ein frei wählbarer Parameter ist, der die Stärke der Glättung kontrolliert (Collins et al., 1997). In Sensitivitätsexperimenten stellte sich heraus, dass die berechneten Felder relativ unempfindlich auf die Änderung von R_{\max} und R_{σ} reagieren. Abhängig von der horizontalen Auflösung bzw. der Maschenweite $\Delta\lambda$ des Gitters wurde daher $R_{\max} \approx 1.75 \cdot \Delta\lambda$ und R_{σ} so gewählt, dass am Äquator benachbarte Boxen (d. h. $r_d = \Delta\lambda$) das Gewicht 0.05 besitzen, siehe Tabelle 2.1.

Abbildung 2.6:



Der Parameter R_{σ} ist also so gewählt, dass die Gewichte mit der Entfernung sehr schnell abnehmen, und eine Box im Vergleich zu ihren Nachbarn ein sehr viel höheres Gewicht hat (siehe Abbildung 2.6). Das heißt, dass in nichtleeren Gitterboxen die Durchschnittskonzentration \bar{c} durch die Glättung kaum verändert wird. Leeren

Gitterboxen wird hingegen im Wesentlichen die gleiche Konzentration wie die der nächstliegenden nichtleeren Box zugewiesen. Der zugrunde liegende Gedanke ist, dass leere Gitterboxen vor allem dort auftreten, wo die Masse einer Box kleiner als die Masse eines Luftpaketes ist. In solchen Gebieten sollte aber die Konzentration in einem Luftpaket auf mehrere Gitterboxen übertragen werden, um die gleiche Masse an Spurenstoff zu erhalten.

Obwohl von dem hier vorgestellten Glättungsverfahren nicht erwartet werden kann, dass es exakt die gleiche globale Spurenstoffmasse erzeugt wie in den Luftpaketen enthalten ist, funktioniert es erstaunlich gut. In sämtlichen Experimenten, die in Kapitel 3 vorgestellt werden, betrug die relative Abweichung um oder weniger als 1%. Dennoch wird in einem abschließenden Schritt das geglättete Feld global noch so skaliert, dass es die korrekte globale Masse des Spurenstoffes enthält.

2.4.9 Rechenzeitbedarf und Parallelisierbarkeit

Der Code von ATTILA umfasst 7200 Zeilen, was einer Erweiterung von ECHAM um ungefähr 15% entspricht. Die benötigte Rechenzeit erhöht sich allerdings um mehr als einen Faktor 2, weshalb ATTILA derzeit nicht als Erweiterung der operationellen Version von ECHAM geeignet ist (siehe Abbildung 2.7). Da aber die Berechnung der Advektion in ATTILA unabhängig von der Anzahl der transportierten Spurenstoffe ist, steigt die benötigte Rechenzeit pro Spurenstoff weitaus schwächer an als im semi-Lagrangeschen Schema von ECHAM. Es ist daher zu erwarten, dass bei Studien mit sehr vielen Spurenstoffen der Einsatz von ATTILA günstiger ist.

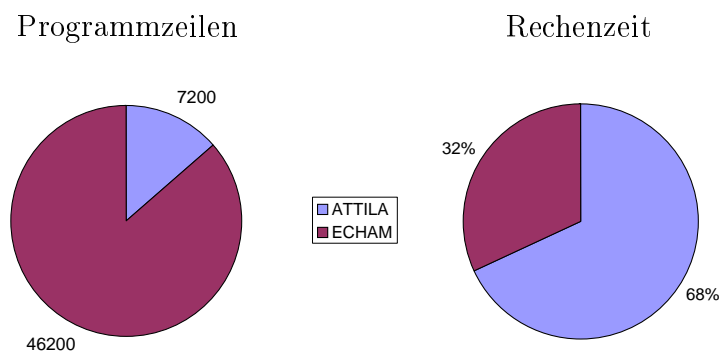


Abbildung 2.7: Programmumfang und Rechenzeit.

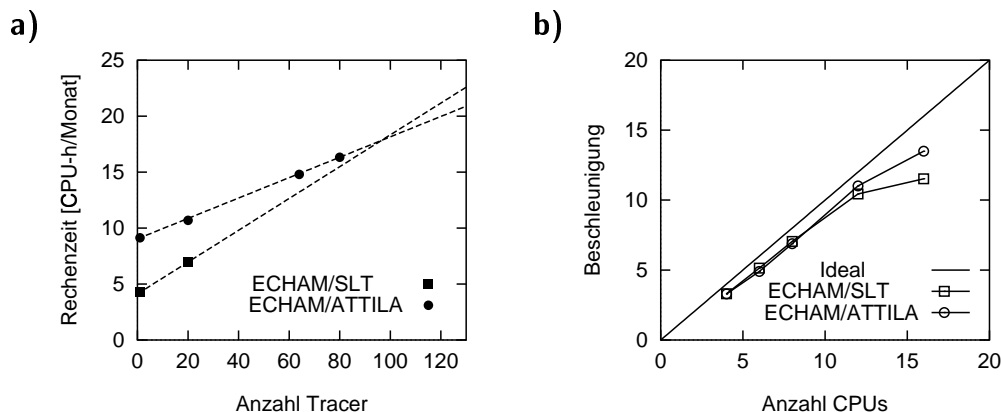


Abbildung 2.8: a) Rechenzeitbedarf auf einer CPU in Abhängigkeit von der Anzahl der transportierten Spurenstoffe [CPU-Stunde/Modellmonat]; b) In der Praxis erreichte Beschleunigungsfaktoren in Abhängigkeit von der Anzahl der angeforderten CPUs.

In Abbildung 2.8a ist der Rechenzeitbedarf auf einer CPU einer CRAY J916se in Abhängigkeit von der Anzahl der transportierten Spurenstoffe dargestellt. Daraus geht hervor, dass ATTILA ab einer Anzahl von ca. 95 Spurenstoffen effektiver ist. Dies ist durchaus eine realistische Anzahl von Spurenstoffen, wenn man bedenkt, dass z.B. STOCHEM zur expliziten Formulierung der troposphärischen Chemie ungefähr 70 Spurenstoffe verwendet (Johnson et al., 1999). Auch in der Aerosolmodellierung werden solche Zahlen erreicht, wenn Aerosole aufgeteilt nach mehreren Typ- und Größenklassen simuliert werden.

Die obige Abschätzung bezieht sich allerdings nur auf Modellläufe, die auf einer einzelnen CPU gerechnet werden. In der Praxis wird jedoch der Programmcode an geeigneten Stellen parallelisiert, und auf mehreren CPUs gleichzeitig gerechnet, um die Laufzeit des Programmes erheblich zu verkürzen. Werden für einen Lauf N CPUs benutzt, so kann man eine Verkürzung der Laufzeit um höchstens den Faktor N erreichen. Inwieweit dieser Idealfall allerdings erreicht wird, hängt sehr empfindlich von dem Anteil des Programmcodes ab, der parallelisiert werden kann. Tests ergaben, dass in ECHAM/ATTILA ungefähr 99.6% des Codes¹³ parallelisiert werden können, während es in ECHAM/SLT nur 99.1% sind. Obwohl der Unterschied geringfügig erscheint, hat er eine signifikante Auswirkung auf den Beschleunigungsfaktor, wie das Gesetz von Amdahl (siehe Anhang D) eindrucksvoll demonstriert.

¹³Bezogen auf die CPU-Zeit.

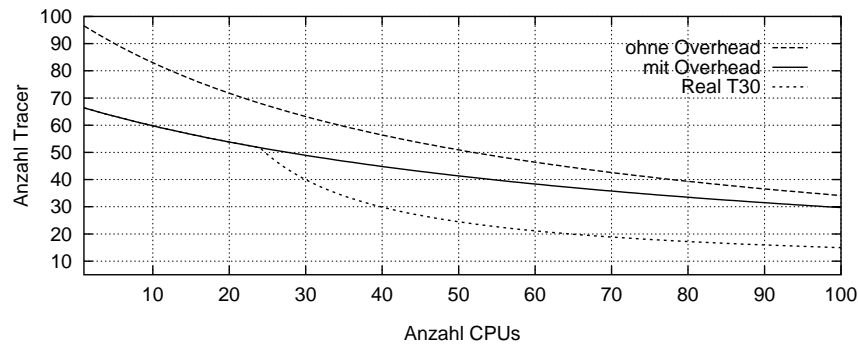


Abbildung 2.9: Anzahl der Spurenstoffe, ab der ATTILA günstiger ist, in Abhängigkeit von der Anzahl der benutzten CPUs, einmal ohne Berücksichtigung des Overheads, einmal unter Berücksichtigung eines (konstanten) Overheads von 13% für ECHAM/ATTILA und von 26% für ECHAM/SLT, und einmal unter der Annahme, dass bei einer Auflösung von T30 ab 24 CPUs in ECHAM keine weitere Parallelisierung mehr möglich ist (siehe Text).

In der Praxis werden aber auch die nach Amdahl maximal möglichen Beschleunigungsfaktoren nicht erreicht, da in der Regel “Overheadkosten” entstehen, die z. B. dadurch bedingt sind, dass die zu erledigenden Berechnungen im parallelen Teil des Codes nicht exakt gleichmäßig auf die verschiedenen CPUs verteilt werden können. Hier ist ATTILA eindeutig im Vorteil, weil die rund 190000 zu berechnenden Trajektorien (bei T30 Auflösung) sehr gleichmäßig auch auf eine große Anzahl von CPUs verteilt werden können. In ECHAM sind hingegen die Berechnungen im Gitterpunktraum — und somit auch das semi-Lagrangesche Transportschema — nach Breitenkreispaares parallelisiert, von denen es bei T30 nur 24 Stück gibt, und welche noch dazu verschiedenen Rechenzeitbedarf haben, weil z. B. in niedrigen Breiten öfter subskalige Konvektion gerechnet werden muss als in hohen Breiten.

Dies wirkt sich deutlich auf die in der Praxis erreichten Beschleunigungsfaktoren aus, die in Abbildung 2.8b dargestellt sind. Während bei 12 CPUs noch beide Modelle einen Overhead¹⁴ von ca. 4% haben, beläuft sich dieser bei 16 CPUs schon auf 26% in ECHAM¹⁵ bzw. auf 13% in ATTILA¹⁶.

Beim Rechnen auf mehreren CPUs lohnt sich also der Einsatz von ATTILA auch

¹⁴Berechnet nach dem Gesetz von Amdahl, siehe Anhang D.

¹⁵Ein wesentlicher Grund für diesen hohen Overhead dürfte der Umstand sein, dass die 24 Breitenkreispaares nicht gleichmäßig auf 16 CPUs verteilt werden können.

¹⁶In ECHAM/ATTILA sind natürlich auch Teile des Codes nach den Breitenkreisen parallelisiert, was die Erhöhung des Overheads erklärt.

schon bei einer geringeren als der oben abgeschätzten Anzahl von Spurenstoffen. In Abbildung 2.9 ist in Abhängigkeit von der Anzahl der benutzten CPUs die Anzahl der Spurenstoffe dargestellt, ab der sich der Einsatz von ATTILA rechnet. Bei 16 CPUs ist z. B. unter Berücksichtigung des oben genannten Overheads ATTILA schon ab weniger als 60 Spurenstoffen günstiger. Berücksichtigt man weiterhin, dass bei einer Auflösung von T30 ab 24 CPUs keine weitere Parallelisierung in ECHAM mehr möglich ist, so ist ATTILA bei 40 CPUs schon ab 30 Spurenstoffe günstiger. Dabei wurde davon ausgegangen, dass der Anteil des parallelen Codes in ECHAM/ATTILA, der auch auf mehr als 24 CPUs verteilbar ist, 40% beträgt, was eine untere Abschätzung für diesen Wert darstellt.

ATTILA stellt also ein alternatives Transportschema für ECHAM dar, das — abgesehen von den numerischen Vorteilen eines Lagrangeschen Schemas — um so effektiver arbeitet, je mehr Spurenstoffe transportiert werden, und je “paralleler” gerechnet wird.

3 Globaler Spurenstofftransport

ATTILA ist ein vollständig neu entwickeltes Transportschema für atmosphärische Spurenstoffe im Klimamodell ECHAM, und somit ist es unerlässlich, die Transporteigenschaften von ATTILA detailliert zu untersuchen und zu validieren, bevor es in Studien zum globalen Klima eingesetzt werden kann. Dabei kann es besonders interessant sein, anhand idealisierter Experimente das Transportverhalten des rein Lagrangeschen Schemas ATTILA mit dem des standardmäßig in ECHAM vorhandenen semi-Lagrangeschen Schemas zu vergleichen. Da die beiden Schemata ganz verschiedene numerische Konzepte verfolgen, lässt sich damit gut abschätzen, ob bestimmte Merkmale im Transportverhalten von ECHAM auf die Modellmeteorologie oder auf die numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas zurückzuführen sind.

Will man aber Aussagen über die Realitätsnähe eines Transportschemas treffen, so muss man in der Wirklichkeit vorkommende Spurenstoffe simulieren, und die berechneten Verteilungen mit Beobachtungen vergleichen. Ein Spurenstoff ist daher um so mehr für die Untersuchung des globalen Transports geeignet, je besser seine räumliche Verteilung und je genauer die relevanten Quellen und Senken bekannt sind. Darüber hinaus müssen zum Vergleich Beobachtungsdaten existieren, und je größer die räumliche und zeitliche Abdeckung dieser Daten ist, desto genauer kann die Validierung erfolgen.

Im Folgenden werden die ausgewählten Spurenstoffe vorgestellt, und erläutert, welche Aspekte des globalen Transportes damit untersucht werden können. In den darauf folgenden Abschnitten werden die einzelnen Experimente erörtert und die Ergebnisse eingehend diskutiert. Zum Abschluss wird das Transportverhalten von ATTILA auch im Vergleich zum semi-Lagrangeschen Schema zusammenfassend dargestellt und hinsichtlich der Realitätsnähe bewertet.

3.1 Durchgeführte Experimente und ihre Bedeutung

Zur Untersuchung der Transporteigenschaften eines Modells werden vorzugsweise Spurenstoffe benutzt, deren Quellen und Senken einfach zu beschreiben sind, und deren Einfluss auf die atmosphärische Dynamik (über die Strahlung) vernachlässig-

bar klein ist. Dabei bieten sich vor allem Spurenstoffe an, die chemisch sehr stabil und wasserunlöslich sind, weil dann chemische Reaktionen mit anderen Stoffen (die dann auch transportiert werden müssten) unberücksichtigt bleiben können und keine Auswaschprozesse parameterisiert werden müssen.

Abhängig von der Verteilung der Quellen und Senken und von der Lebensdauer eines Spurenstoffes sind diese jeweils geeignet, verschiedene Transportprozesse in der Atmosphäre zu untersuchen. Kurzlebige Spurenstoffe können benutzt werden, um schnelle Transportprozesse zu untersuchen, wie z. B. Konvektion, turbulente Durchmischung der Atmosphäre und schneller Transport von Quellgebieten zu quellfernen Regionen. Langlebige Spurenstoffe eignen sich hingegen zur Untersuchung von Transportprozessen auf längeren Zeitskalen, wie z. B. des Stratosphären-Troposphären-Austausches, des interhemisphärischen Transportes oder der allgemeinen Zirkulation.

Da ATTILA als universell einsetzbares Transportschema konzipiert ist, werden in diesem Kapitel sowohl kurzlebige als auch langlebige Spurenstoffe mit verschiedenen Quellen und Senken eingesetzt, um möglichst viele Aspekte des globalen Spurenstofftransportes zu beleuchten.

In mehreren internationalen Modellvergleichsstudien (Jacob et al., 1997; van Veltoven et al., 1997; Danilin et al., 1998) wurde gezeigt, dass das Modell ECHAM vor allem in der oberen Troposphäre und der unteren Stratosphäre einen diffusiveren Transport zeigt als alle anderen Modelle. Deshalb wird hier das von Jacob et al. (1997) entworfene Experiment mit einem kurzlebigen, fiktiven Spurenstoff mit einer Quelle in der oberen tropischen Troposphäre benutzt, um einen ersten Eindruck zu gewinnen, ob diese Diffusivität eher auf die Modelldynamik oder die numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Transportschemas zurückzuführen ist. Dieses Experiment war ursprünglich dazu gedacht, eine grobe Abschätzung des Transportes von relativ kurzlebigen Spezies zu erhalten, die in der oberen tropischen Troposphäre produziert werden, wie z. B. die in tropischen Gewittern blitzinduzierten Stickoxide.

Ein weiterer kurzlebiger Spurenstoff ist das radioaktive Edelgas Radon-222 (^{222}Rn), das schon in zahlreichen Studien benutzt wurde. Radon wird am Boden emittiert und ist deshalb gut geeignet, um schnelle vertikale Transportprozesse vom Boden in die freie Atmosphäre zu untersuchen. Speziell können damit die Parameterisierun-

gen der Konvektion und der Grenzschichtturbulenz in ATTILA überprüft werden. Darüber hinaus kann auch der Austausch von Luftmassen zwischen Kontinenten und Ozeanen abgeschätzt werden, da die Emissionen über den Ozeanen sehr gering sind. Als Ergänzung zu obigem “tropische Blitze”-Experiment wird auch noch der meridionale Transport in der unteren Stratosphäre von den Tropen in höhere Breiten untersucht.

Als langlebiger Spurenstoff steht das radioaktive Isotop Kohlenstoff-14 (¹⁴C) zur Verfügung. Es wird dabei nicht der natürlich produzierte Kohlenstoff-14 simuliert, sondern der während der Atomwaffentests in den 50er und frühen 60er Jahren in die Stratosphäre emittierte Kohlenstoff-14. Die Verteilung dieses Stoffes zeigt zu Beginn ein ausgeprägtes Maximum in der nördlichen Stratosphäre, so dass damit sehr gut der Abwärtstransport von der Stratosphäre in die Troposphäre und das Verhalten eines numerischen Transportschemas bei starken Gradienten untersucht werden kann. Bei dieser Gelegenheit wird auch der Einfluss der verschiedenen Diffusionsparameterisierungen in ATTILA (Abschnitt 2.4.4) auf die berechnete Verteilung diskutiert.

Zur Untersuchung des Transportes in die Gegenrichtung, d. h. vom Boden bzw. der Troposphäre in die Stratosphäre, dient das langlebige Gas Schwefelhexafluorid (SF₆), das ein rein anthropogen erzeugtes Gas ist, und erst seit kurzer Zeit an Bedeutung bei der Untersuchung des globalen Transportes gewinnt (Maiss et al., 1996; Land, 1999; Kjellström et al., 2000). Da SF₆ in der Troposphäre und Stratosphäre keine Senke besitzt und die globale Bodenkonzentration aufgrund steigender Emissionen stetig zunimmt, kann damit auch das sogenannte “Alter” der Luft in der Stratosphäre diagnostiziert werden. Diesem Thema ist allerdings ein eigenes Kapitel (Kapitel 4) gewidmet, da mit einem rein Lagrangeschen Schema wie ATTILA über die Analyse der Trajektorien eine weitere, elegante Methode zur Verfügung steht, nicht nur das Alter der Luft, sondern auch ganze Altersspektren zu berechnen.

3.2 Der fiktive Spurenstoff “NO_x aus tropischen Blitzen”

Das hier vorgestellte Experiment wurde in einer internationalen Modellvergleichsstudie im Rahmen des World Climate Research Programme (WCRP) von Jacob

et al. (1997) durchgeführt, an der auch ECHAM (in der Version ECHAM3) teilnahm. Dabei stellte sich heraus, dass das semi-Lagrangesche Schema in ECHAM den meridionalen Transport vor allem auf der Winterhalbkugel im Vergleich zu anderen Modellen stark überschätzte. Andere Studien kamen zu einem ähnlichen Ergebnis (siehe oben), und um einen ersten Anhaltspunkt darüber zu erhalten, inwieweit die numerische Diffusion des semi-Lagrangeschen Schemas dafür verantwortlich gemacht werden kann und welche potenziellen Verbesserungen durch Verwendung eines nichtdiffusiven Schemas möglich sind, wurde dieses Experiment auch mit ATTILA durchgeführt und mit den Ergebnissen des semi-Lagrangeschen Schemas verglichen.

3.2.1 Aufbau des Simulationsexperimentes

Die Quellen und Senken sind ähnlich wie im Radon-Experiment (Abschnitt 3.3), nur dass der Ort der Emission vom Boden in obere tropische Troposphäre verlegt wurde. Das heißt, die einzige Senke wird durch einen exponentiellen Zerfall mit einer Halbwertszeit von 3.8 Tagen beschrieben und die globale Emissionsrate beträgt 72 mol/a. Die Emissionen werden gleichmäßig auf drei gleich große Gebiete verteilt, die sich jeweils vertikal von 400 hPa bis 200 hPa und meridional von 10°S bis 10°N erstrecken, und im Wesentlichen über den Landmassen liegen: In zonaler Richtung erstrecken sie sich von 75°W bis 45°W, von 10°O bis 40°O und von 100°O bis 130°O. Das Experiment wurde mit einer horizontalen Auflösung von T21 im Juli-Modus gerechnet, d. h. alle Randbedingungen wie Meeresoberflächentemperatur oder Sonneneinstrahlung werden ohne Jahresgang entsprechend den Bedingungen im Juli vorgeschrieben. Nach einer Einschwingzeit von mehreren Monaten wurden weitere 20 Monate berechnet und ausgewertet.

3.2.2 Ergebnis der Simulation

Abbildung 3.1 zeigt die zonal und über 20 Juli-Monate gemittelte Verteilung des Spurenstoffes wie sie von ATTILA und dem semi-Lagrangeschen Schema berechnet wird. Wie auch schon in Jacob et al. (1997) zeigt das semi-Lagrangesche Schema eine starke horizontale Diffusion im extratropischen Tropopausenbereich, die besonders deutlich auf der Winterhalbkugel ausgeprägt ist. ATTILA hingegen produziert

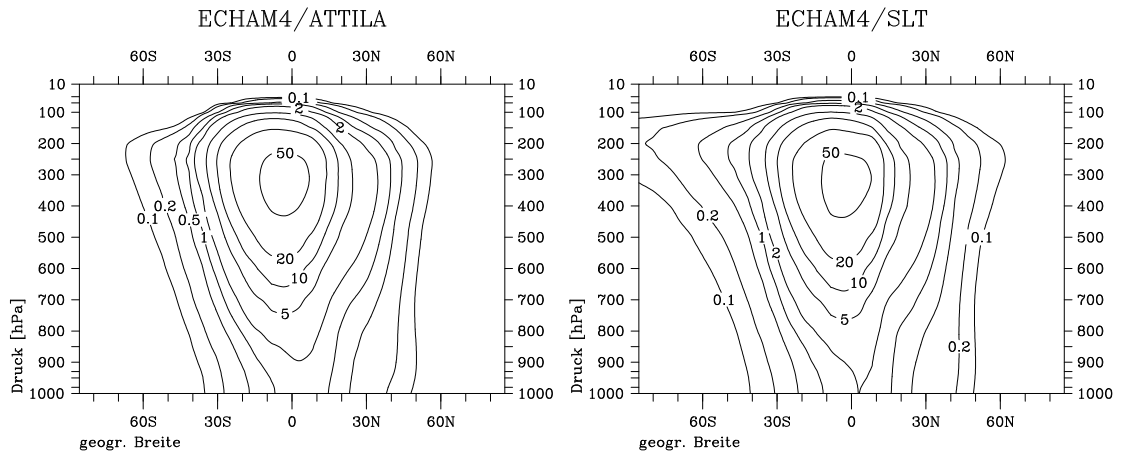


Abbildung 3.1: Zonal und über 20 Juli-Monate gemittelte Verteilung des “tropische Blitze”-Tracers, jeweils berechnet mit ATTILA und dem semi-Lagrangeschen Schema in ECHAM. Einheit: 10^{-21} mol/mol.

eine weitaus weniger diffusive Verteilung, die auch den von den meisten in Jacob et al. (1997) vorgestellten Modellen berechneten Verteilungen ähnlich ist. Dieses Experiment ist also ein erster Hinweis darauf, dass in der Tat eher die numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas als die Modellmeteorologie für die Unterschiede zu anderen Modellen verantwortlich zu machen sind, und dass mit der Verwendung von ATTILA wegen des völlig anderen numerischen Konzeptes ein gewisses Potenzial vorhanden ist, die Gründe für diese Unterschiede aufzudecken.

In den folgenden Abschnitten seien deshalb nun die Experimente mit den realen Spurenstoffen vorgestellt, die dann auch mit Beobachtungsdaten verglichen werden können. Alle folgenden Experimente wurden im Gegensatz zu obigem Experiment mit der höheren horizontalen Auflösung T30 und mit einem klimatologischen Jahresgang in den Randbedingungen gerechnet.

3.3 Simulation von ^{222}Rn

3.3.1 Quellen und Senken von ^{222}Rn

Das natürliche Isotop Radon-222 (^{222}Rn) ist ein Edelgas, das durch den radioaktiven Zerfall von Radium-226 (^{226}Ra) entsteht, welches überall in der Erdkruste vorkommt (Nazaroff, 1992). Beide Stoffe sind Mitglieder der Uran-Radium-Zerfallsreihe mit

Ausgangskern ^{238}U (z. B. Hammer und Hammer, 1985, S. 70). ^{222}Rn zerfällt mit einer Halbwertszeit von 3.8 Tagen schließlich zum langlebigen ^{210}Pb , das sich an Aerosolpartikel heftet und ausgewaschen wird. Da ^{222}Rn chemisch träge und wasserunlöslich ist (Chemical Rubber Company, 1986), ist der radioaktive Zerfall die einzige Senke von ^{222}Rn in der Atmosphäre.

Die Quelle von ^{222}Rn kann als Bodenemission beschrieben werden, da ^{222}Rn hauptsächlich durch den Austausch von bodennaher Luft über Landmassen mit Luft in den Bodenporen in die Atmosphäre gelangt. Die Stärke des Flusses hängt dabei von einer Reihe von Parametern ab, wie z. B. der Konzentration von ^{226}Ra im Boden, dem Sitz von ^{226}Ra innerhalb des Gesteins und den geophysikalischen Eigenschaften des Bodens (Nazaroff, 1992). Ferner spielen auch eine Anzahl von meteorologischen Parametern eine Rolle, wie die Bedeckung des Bodens mit Schnee und Eis, Bodenfrost (Jacob und Prather, 1990), Tendenz des Bodendruckes (Clements und Wilkening, 1974; Schery et al., 1984; Schery und Gaeddert, 1982), Bodenfeuchtigkeit und Vegetation. Die Wirkung besteht zumeist in einer Änderung der Austauschrate zwischen bodennaher Luft und Luft in den Gesteinsporen. Steigt z. B. der Bodendruck, so dringt Luft in die Poren ein und verringert den Emissionsfluss, während bei sinkendem Bodendruck genau das Gegenteil passiert. Auch Eisflächen versiegeln die Oberfläche und reduzieren somit den Emissionsfluss. Allerdings sind viele Effekte, wie z. B. der der Bodenfeuchtigkeit oder der Vegetation, noch schlecht verstanden, und werden in der Literatur kontrovers diskutiert (siehe z. B. Jacob und Prather, 1990, und darin enthaltene Verweise).

Abschätzungen des global gemittelten Emissionsflusses bewegen sich zwischen $0.75 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (Wilkening et al., 1975; Lambert et al., 1982) und $1.2 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (Turekian et al., 1977). Ein Fluss von $1.0 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ wird global bis auf 25% genau (Turekian et al., 1977; Balkanski et al., 1993), und regional bis auf einen Faktor von 2 genau (Wilkening et al., 1975; Schery et al., 1989; Graustein und Turekian, 1990; Nazaroff, 1992) angesehen. Der Emissionsfluss von Meeresoberflächen ist ungefähr um 2 Größenordnungen geringer (Wilkening und Clements, 1975), und kann daher außer bei der Bestimmung von Hintergrundkonzentrationen in einer rein marinen Grenzschicht vernachlässigt werden.

3.3.2 Aufbau des Simulationsexperimentes

Um einen Vergleich auch zu anderen Modellen zu ermöglichen, wurden die Emissionen wie in der Modellvergleichsstudie von Jacob et al. (1997) vorgeschrieben, und sind in Tabelle 3.1 zusammenfassend dargestellt. Über Landoberflächen außerhalb der Polargebiete wird eine räumlich und zeitlich konstante Emission von $1.2 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ gewählt, um einen jährlichen Gesamtfluss von 72 mol zu erhalten (Jacob et al., 1997). Über Meeresoberflächen beträgt die Emission $0.005 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, was nach Wilkening und Clements (1975) eher eine obere Abschätzung für diesen Fluss ist. Um der Tatsache Rechnung zu tragen, dass gefrorene Oberflächen kein ^{222}Rn emittieren, wird der Emissionsfluss polwärts von 70° auf Null gesetzt und beträgt zwischen 60° und 70° $0.005 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ sowohl über Land als auch über dem Meer. Dies ist natürlich eine vereinfachende Annahme, da es vor allem auf der Nordhalbkugel auch Gebiete polwärts von 60° gibt, die im Sommer nicht gefroren sind, bzw. Gebiete äquatorwärts von 60° gibt, die im Winter gefroren sind. Dieser Jahresgang in der Bodentemperatur wird ebenso vernachlässigt wie der Einfluss anderer meteorologischer Parameter auf die ^{222}Rn -Emissionen, da das Verständnis dieser Abhängigkeiten zurzeit noch sehr unvollständig ist. Als Senke wird radioaktiver Zerfall mit einer Halbwertszeit von 3.8 Tagen vorgeschrieben.

Die Simulationen wurden für 11 Modelljahre gerechnet, wobei das erste Jahr als Einschwingzeit benutzt wurde¹⁷, und die letzten 10 Jahre ausgewertet wurden. Die im Folgenden dargestellten Ergebnisse, die alle Monats- bzw. 3-Monatsmittel sind, wurden also über 10 verschiedene Jahre gemittelt und beinhalten somit auch die interne Variabilität des Modells.

¹⁷Wegen der kurzen Lebenszeit von ^{222}Rn wird ein quasi-stationärer Zustand bereits nach wenigen Wochen erreicht (Li und Chang, 1996).

Tabelle 3.1: Räumliche Verteilung und Stärke der ^{222}Rn -Emissionen am Boden. Einheit: $\text{Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

geogr. Breite	über Land	über Meer
$70^\circ\text{--}90^\circ$	0	0
$60^\circ\text{--}70^\circ$	0.005	0.005
$60^\circ\text{S--}60^\circ\text{N}$	1.2^a	0.005

^aDieser Fluss wurde so gewählt, dass die Gesamtemission 72 mol/a beträgt.

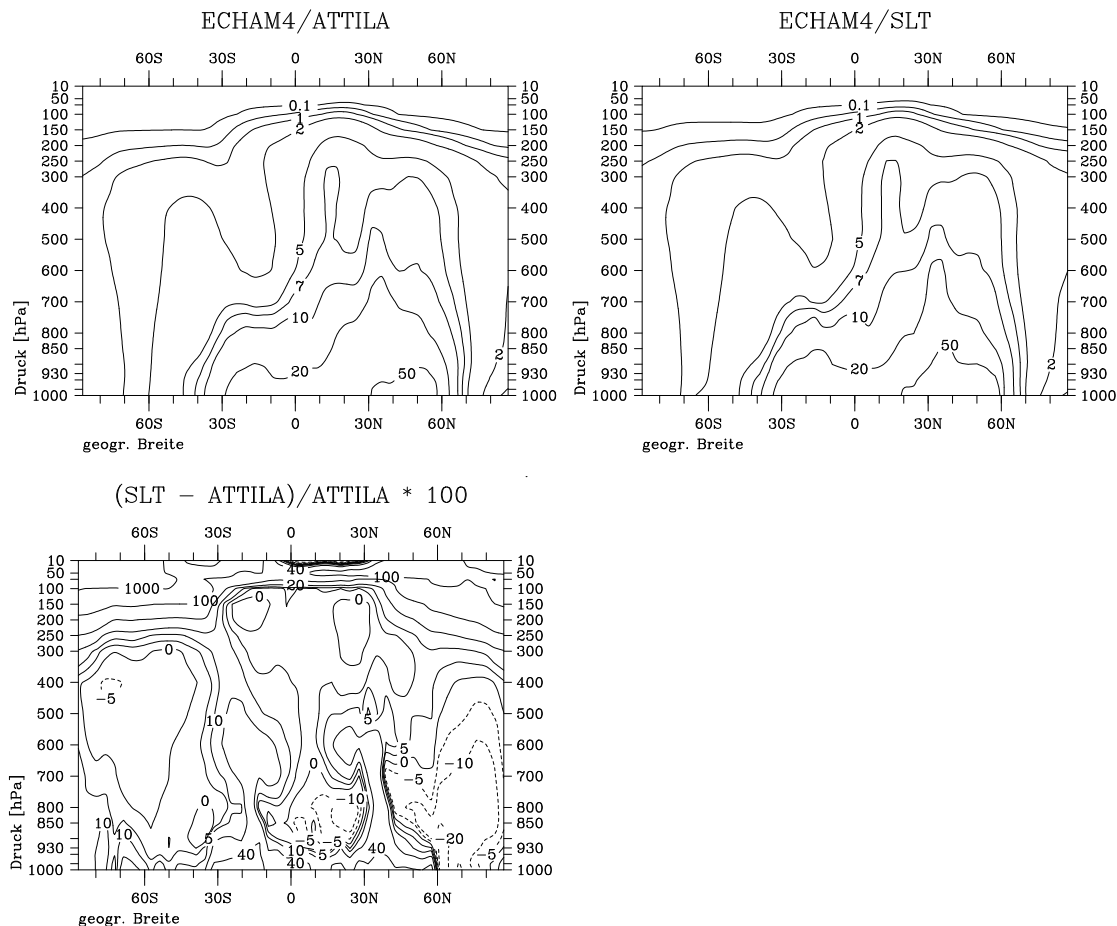


Abbildung 3.2: Oben: Zonal und über den Nordsommer gemittelte Verteilung von ^{222}Rn , jeweils berechnet mit ATTILA und dem semi-Lagrangeschen Schema in ECHAM. Isolinen: 0,1, 0,5, 1, 2, 5, 7, 10, 20, 50. Einheit: 10^{-21} mol/mol. Unten: Relativer Unterschied zwischen den beiden oberen Verteilungen. Isolinen: -40, -20, -10, -5, 0, 5, 10, 20, 40, 100, 1000. Einheit: %.

3.3.3 Vergleich von globalen Verteilungen (ATTILA vs. SLT)

Abbildung 3.2 zeigt die zonal und über den Nordsommer (JJA) gemittelte Verteilung, wie sie von ATTILA bzw. dem semi-Lagrangeschen Schema berechnet wird.¹⁸ Beide Verteilungen sind sehr ähnlich. Die höchsten Konzentrationen werden in der Grenzschicht der mittleren nördlichen Breiten erreicht, wo auch der größte Anteil der ^{222}Rn -Quelle zu finden ist. Mit zunehmender Entfernung von dieser Region

¹⁸In den Abbildungen 3.2 und 3.3 sind die ^{222}Rn -Konzentrationen in 10^{-21} mol/mol angegeben. Andere häufig verwendete Einheiten sind mBq/SCM und pCi/SCM, wobei SCM 1 m³ Luft unter Standardbedingungen (Temperatur 273,15 K, Druck 1013,25 hPa) bezeichnet. Die Umrechnung erfolgt durch 10^{-21} mol/mol = 56 mBq/SCM = 1,52 pCi/SCM.

nimmt auch die ^{222}Rn -Konzentration ab, die niedrigsten Werte finden sich in der polaren Stratosphäre. Konvektiver Aufwärtstransport über der Nordhalbkugel ist in beiden Verteilungen ebenso sichtbar wie Transport im abwärts gerichteten Zweig der Hadley-Zirkulation südlich der ITCZ, der ^{222}Rn -arme Luft von der oberen Troposphäre in tiefere Schichten verfrachtet.

In zahlreichen Studien wurde gezeigt, dass konvektiver Transport für ^{222}Rn eine wichtige Rolle spielt (z. B. Land, 1999; Stevenson et al., 1998a; Stockwell et al., 1998; Mahowald et al., 1997; Li und Chang, 1996). Mahowald et al. (1995) zeigten in einer 1-dimensionalen Studie, dass verschiedene Konvektionsparameterisierungen auch unter Benutzung derselben Meteorologie sehr verschiedene Vertikalprofile erzeugen können. Da im semi-Lagrangischen Schema konvektiver Transport nach derselben Methode erfolgt wie in ATTILA (Abschnitt 2.4.5), ist die Erwartung von ähnlichen ^{222}Rn -Verteilungen in Gebieten, wo konvektiver Transport dominiert, nicht unbegründet. Dennoch zeigen die beiden Verteilungen in der Troposphäre der mittleren nördlichen Breiten Unterschiede im Detail. Augenfällig sind z. B. die in ATTILA geringere berechneten Konzentrationen in der Grenzschicht südlich von 60°N und in der unteren und mittleren Troposphäre zwischen 30°N und 40°N . Dafür kommen im Wesentlichen zwei Gründe in Frage. Zum Einen ist im semi-Lagrangischen Schema die Grenzschichtturbulenz anders parameterisiert als in ATTILA. Im semi-Lagrangischen Schema werden vertikale turbulente Flüsse durch einen Gradientansatz beschrieben, wobei die vertikale Struktur der Atmosphäre berücksichtigt wird. In ATTILA hingegen wird unterhalb einer berechneten Grenzschichthöhe die gesamte Schicht vollständig durchmischt (Abschnitt 2.4.3), was zu einer geringeren Konzentration in der Grenzschicht führen kann. Zum Anderen findet in ATTILA, wie in Abschnitt 2.4.5 erläutert, kein konvektiver Transport in Gitterboxen statt, in denen sich keine Luftpakete befinden. Da die Gitterboxen in den unteren Modellschichten relativ wenig Masse besitzen, ist dort auch die Wahrscheinlichkeit größer, "leere" Gitterboxen anzutreffen (vgl. Abbildung 2.1). Die Auswirkungen dieses Fehlers auf die Bodenkonzentrationen werden im nächsten Abschnitt (3.3.4) genauer untersucht. Die künstliche Reduktion des konvektiven Transportes in den "leeren" Boxen verhindert aber nicht den Transport oberhalb solcher Boxen, so dass die Konzentrationen in der mittleren und oberen Troposphäre, an denen hochreichende Konvektion maßgeblich beteiligt ist, davon im Wesentlichen unberührt bleiben.

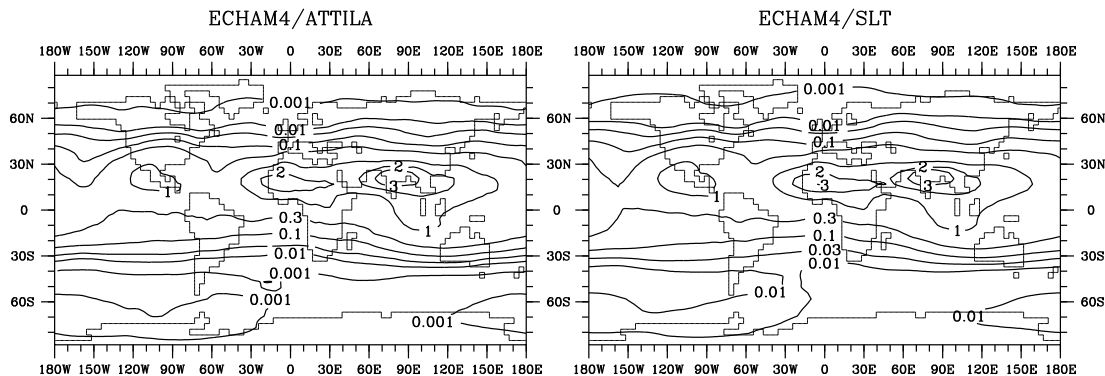


Abbildung 3.3: Mittlere Verteilung von ^{222}Rn im Juli bei 100 hPa, jeweils berechnet mit ATTILA und dem semi-Lagrangeschen Schema in ECHAM. Isolinien: 0.001, 0.01, 0.03, 0.1, 0.3, 1, 2, 3. Einheit: 10^{-21} mol/mol.

Um den Effekt der hochreichenden Konvektion genauer abzuschätzen, ist in Abbildung 3.3 die mittlere Verteilung im Juli bei 100 hPa dargestellt. In niedrigen Breiten über der innertropischen Konvergenzzone stimmen beide Verteilungen sehr gut überein. Da ^{222}Rn , wie alle anderen troposphärischen Spurenstoffe auch, die Stratosphäre hauptsächlich über die tropische Tropopause betritt, kann man schließen, dass die hochreichende Konvektion in ATTILA genauso effektiv ist wie im semi-Lagrangeschen Schema, und der durch die ‐leeren‐ Boxen verursachte Fehler hier sehr klein ist.

Außerhalb der ITCZ weisen die beiden Verteilungen allerdings erhebliche Unterschiede auf. ATTILA produziert vor allem auf der Winterhalbkugel einen viel stärkeren meridionalen Gradienten, was zu wesentlich niedrigeren Konzentrationen in den Extratropen führt. Polwärts von ungefähr 40°S sind die Konzentrationen im semi-Lagrangeschen Schema um einen Faktor 10 höher als in ATTILA. Dieses Ergebnis bestätigt auch die Berechnungen im ‐tropische Blitze‐-Experiment (Abschnitt 3.2), und ist auf die numerische Diffusion im semi-Lagrangeschen Schema zurückzuführen, die für eine Glättung der horizontalen Gradienten und in diesem Fall für eine signifikante Erhöhung der Konzentrationen in der extratropischen Stratosphäre sorgt.

3.3.4 Vergleich mit Beobachtungen

i. Flächengemittelte Bodenkonzentrationen. Lambert et al. (1982) geben einen Überblick über eine Vielzahl von ^{222}Rn -Messungen, die über das ganze Jahr hinweg durchgeführt wurden, und anhand derer sie die Erdoberfläche in 4 verschiedene Gebiete mit jeweils repräsentativen Bodenkonzentrationen einteilten. Diese Gebiete wurden wie folgt definiert: (1) Eisfreie Kontinente, (2) Atlantischer und Indischer Ozean nördlich von 20°S und Pazifischer Ozean nördlich des Äquators (“nördliche Ozeane”), (3) Atlantischer und Indischer Ozean südlich von 20°S und Pazifischer Ozean südlich des Äquators (“südliche Ozeane”, vgl. Abbildung 3.4), und (4) Antarktis. In Tabelle 3.2 ist für jede Region die mittlere beobachtete Bodenkonzentration und (in Klammern) der von Lambert et al. (1982) angegebene charakteristische Bereich, in dem die Messungen liegen, angegeben. Ferner sind die von ATTILA und dem semi-Lagrangeschen Schema berechneten, über das Jahr gemittelten Konzentrationen in der untersten Modellschicht (mit der Standardabweichung in Klammern) angegeben. Das Mittel über die eisfreien Kontinente erstreckte sich dabei über alle Land-Gitterquadrate zwischen 60°S und 60°N , also über die gleiche Region, die für die Landemissionen benutzt wurde (vgl. Tabelle 3.1). Für das Mittel über die Ozeangebiete wurden alle “Küsten”-Gitterquadrate und diesen benachbarte Gitterquadrate ausgeschlossen. Dies reduzierte die mitt-

Tabelle 3.2: Beobachtete und modellierte Bodenkonzentrationen von ^{222}Rn , gemittelt über das Jahr und über 4 verschiedene Regionen, mit Schwankungsbereich (in Klammern). Siehe Text für weitere Details. Einheit: mBq/SCM.

	Eisfreie Kontinente	Nördliche Ozeane	Südliche Ozeane	Antarktis
Beobachtung	4600 (2600–6300)	180 (110–370)	37 (18–66)	18 (3.7–150)
ECHAM4/ATTILA	5800 (4800–6800)	330 (210–450)	100 (76–124)	23 (8–38)
ECHAM4/SLT	8600 (7400–9800)	340 (230–450)	120 (100–140)	27 (12–42)

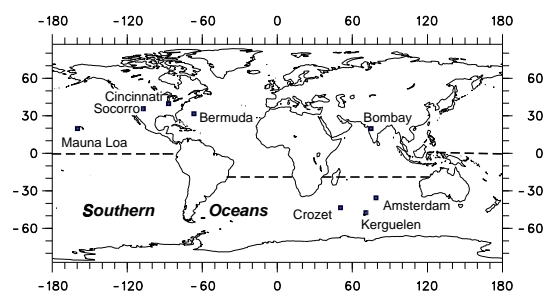
lere Konzentration um den Faktor 2 und ist wahrscheinlich repräsentativer für die größten Teile der Ozeangebiete.

Bis auf die eisfreien Kontinente stimmen die beiden Transportschemata sehr gut überein, erzeugen aber in den Ozeangebieten im Vergleich zu den Beobachtungen zu hohe Konzentrationen. Dies ist zum Teil auf einen zu hohen Emissionsfluss über den Ozeanen zurückzuführen (vgl. nächsten Abschnitt) und zum Teil auf die höheren Konzentrationen in den küstennahen Gitterquadraten. Würden die Küstenregionen bei der Mittelung noch weiträumiger ausgeschlossen, so sollten die mittleren Konzentrationen noch niedriger ausfallen. Über der Antarktis stimmen die mittleren Konzentrationen gut mit den Beobachtungen überein, aber keines der beiden Modelle erfasst die große beobachtete Variabilität.

Über den eisfreien Kontinenten hingegen ergeben sich signifikante Unterschiede. Beide Modelle berechnen zu hohe Werte, aber während ATTILA um einen Faktor 1.3 zu hoch liegt, ist es beim semi-Lagrangeschen Schema fast ein Faktor 2. Der Grund hierfür ist in den verschiedenen Parameterisierungen der Grenzschichtturbulenz zu suchen, die in ATTILA tendenziell für eine stärkere Durchmischung sorgen (siehe oben, Abschnitt 3.3.3). Es ist aber zu beachten, dass der gewählte Emissionsfluss über Land eine obere Abschätzung für den in der Literatur angegebenen Fluss darstellt (siehe Abschnitt 3.3.1). Reduzierte man diesen Fluss um den Faktor $1/3$, um zum unteren Ende der Abschätzungen zu gelangen, so würde ATTILA die Beobachtungen um 15% unterschätzen, während das semi-Lagrangesche Schema immer noch um 25% zu hoch läge.

ii. Zeitreihen an verschiedenen Stationen. Abbildung 3.5 zeigt die mittleren monatlichen Bodenkonzentrationen an acht verschiedenen Stationen (siehe Abbildung 3.4 für eine Karte der Standorte). Die vier ‐abgelegenen‐ Stationen **Crozet** (46°S , 52°O , 150 m üNN¹⁹), **Kerguelen** (49°S , 70°O , 30 m üNN), **Amsterdam Island** (38°S , 78°O , 50 m üNN) und **Mauna**

Abbildung 3.4:



¹⁹über Normalnull.

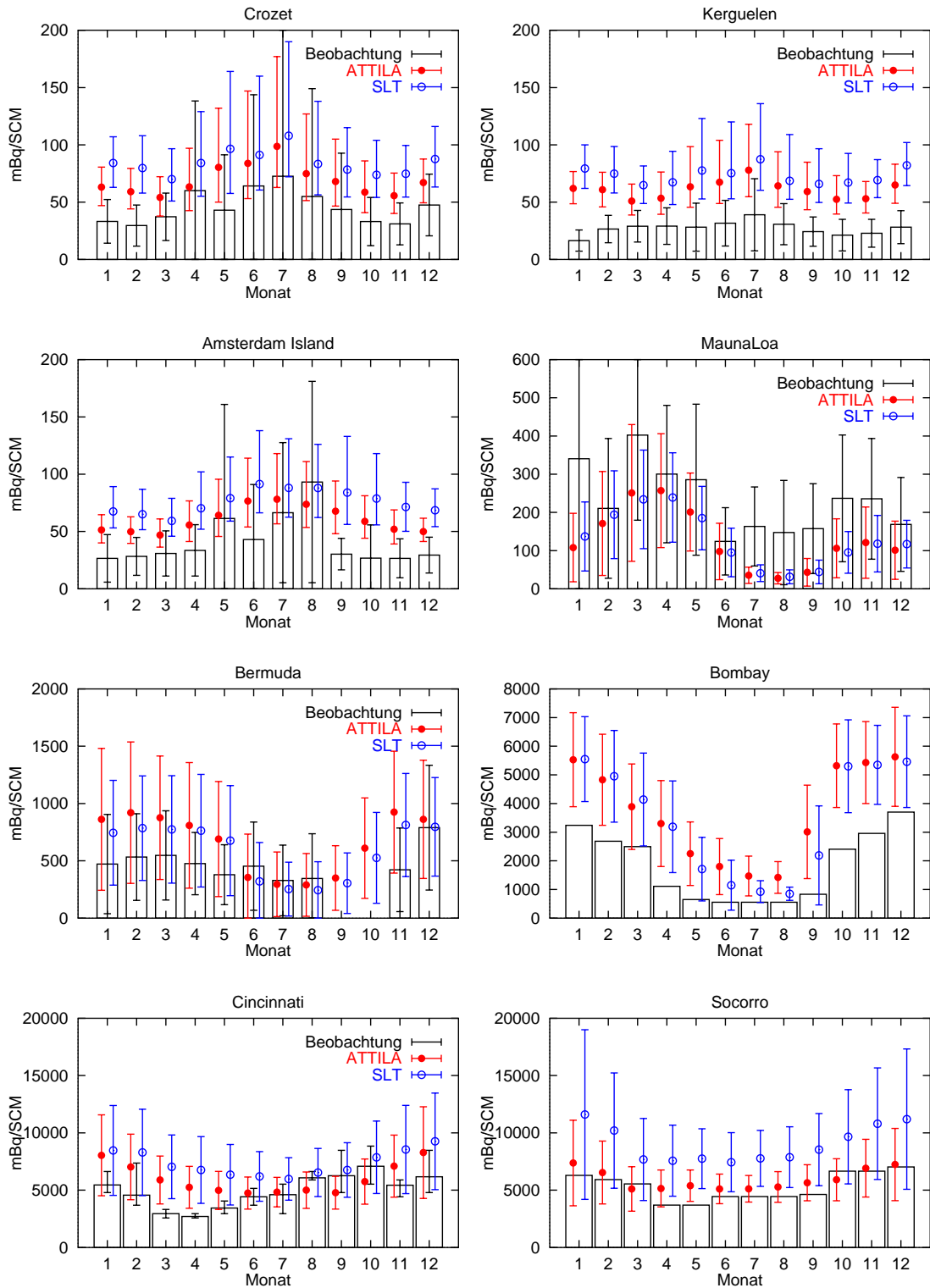


Abbildung 3.5: Bodenkonzentrationen von ^{222}Rn an verschiedenen Stationen. Bei den oberen vier (“abgelegenen”) Stationen sind die Mediane der jeweiligen Zeitreihe gezeigt und die 1. bzw. 3. Quartile (Fehlerbalken), bei den anderen Stationen die Mittelwerte und die Standardabweichung. Siehe Text für weitere Details.

Loa (20°N, 156°W, 3400 m üNN) sind weit entfernt von kontinentalen Landmassen und werden benutzt, um den Transport über weite Strecken von den Kontinenten zu diesen Stationen zu evaluieren. Die Stationen **Cincinnati** (39°N, 84°W) und **Socorro** (34°N, 107°W) hingegen sind rein kontinentale Stationen, an denen schneller vertikaler Transport durch Turbulenz und Konvektion untersucht werden kann. **Bombay** (19°N, 73°O) liegt an der Westküste Indiens und wird hauptsächlich vom Monsun beeinflusst. **Bermuda** (33°N, 65°W, 51 m üNN) kann als marine Station unter kontinentalem Einfluss angesehen werden.

Für Bermuda und die vier abgelegenen Stationen werden die gleichen Beobachtungsdaten wie in Dentener et al. (1999) benutzt, die auch eine detaillierte Beschreibung der Messungen und der angewandten Aufbereitung der Daten geben. Davon werden hier nur die wichtigsten Punkte angesprochen und im Übrigen auf Dentener et al. (1999) verwiesen.

“Abgelegene” Stationen. Radon-Konzentrationen an den Stationen **Crozet**, **Kerguelen** und **Amsterdam Island** wurden vom Französischen Centre de Faibles Radioactivités und Laboratoire de Modelisation du Climat et de l’Environnement mit einer zeitlichen Auflösung von 1 bis 2 Stunden gemessen (Lambert et al., 1970, 1982). Gleichzeitige Messungen des sehr kurzlebigen Thoron (^{220}Rn , Halbwertszeit 55 s) wurden benutzt, um Episoden herauszufiltern, die von lokalen Emissionen dominiert sind, so dass die entstehende Zeitreihe repräsentativ für den Langstreckentransport vom (süd-)afrikanischen Kontinent ist, der 2000 bis 5000 km von diesen Inseln entfernt ist (Dentener et al., 1999). Die Zeitreihen sind charakterisiert durch sehr niedrige Hintergrundkonzentrationen (ca. 60 mBq/SCM auf Crozet, 20–60 mBq/SCM auf Amsterdam Island, 10–40 mBq/SCM auf Kerguelen), die von Episoden mit hohen ^{222}Rn -Konzentrationen, sogenannten “Radon-Stürmen”, unterbrochen sind (Lambert et al., 1970). Diese Episoden sind verbunden mit schnellen Transportprozessen in der Grenzschicht und treten z. B. auf, wenn der Warmluftsektor einer Zyklone nach Kontakt mit dem afrikanischen Kontinent eine Station passiert (Polian et al., 1986). “Radon-Stürme” sind daher am stärksten im Südwinter, dauern einige Stunden bis zu einem Tag, und tragen Konzentrationen, die um eine Größenordnung oder mehr über den Hintergrundkonzentrationen liegen.

Beim Vergleich der Modellergebnisse mit den Beobachtungen fällt auf, dass beide

Modelle an allen drei Stationen die Messwerte überschätzen. Die Diskrepanz ist am stärksten auf der subantarktischen Insel Kerguelen, wo die modellierten Werte um ca. einen Faktor 2 zu hoch sind. Ein Grund dafür könnte ein zu hoch gewählter Emissionsfluss über den Ozeanen sein. Dentener et al. (1999) setzten diesen Fluss auf Null und fanden eine weitaus bessere Übereinstimmung der Hintergrundkonzentrationen. Allerdings berichten auch sie von (um einen Faktor 2) zu hohen Konzentrationen von April bis September, die von einer allgemeinen Überschätzung der Konzentrationen in den Radon-Stürmen herrühren. Dieses Resultat bestätigt sich auch hier, denn in den hier berechneten Zeitreihen auf Kerguelen tragen die Radon-Stürme Konzentrationen von 200 bis 500 mBq/SCM, die im Vergleich zu den beobachteten 100–200 mBq/SCM auch um etwa einen Faktor 2 zu hoch liegen. Dentener et al. (1999) beobachteten allerdings eine hohe Korrelation der modellierten und gemessenen Zeitreihen, so dass als Gründe für diesen Unterschied weniger Fehler im horizontalen Modelltransport in Frage kommen, sondern eher ein überschätzter Emissionsfluss über Land oder Ungenauigkeiten in der vertikalen Durchmischung die Ursache sind.

Crozet liegt näher am afrikanischen Kontinent, und Amsterdam Island näher an den Tropen, und hier stimmen die modellierten Werte besser mit den Beobachtungen überein. Die Übereinstimmung ist am besten von April bis September, wenn die Konzentrationen nicht so stark von den niedrigen Hintergrundwerten dominiert werden. Der Jahresgang der mittleren Konzentrationen (dargestellt durch den Median) wird von beiden Modellen gut reproduziert, und auch die Schwankungen innerhalb eines Monats (dargestellt durch die 1. und 3. Quartile) stimmen gut mit den Beobachtungen überein.

Auf Crozet werden im Schnitt 3 Radon-Stürme pro Winter (JJA) beobachtet, wobei die Maximalkonzentration in einem Winter zwischen 730 und 2000 mBq/SCM mit einem Median von 1300 mBq/SCM liegt (Jacob et al., 1997). Auch dies stimmt gut mit den beiden Modellen überein, die im Schnitt 2–5 Radon-Stürme pro Winter errechnen. Die maximalen Konzentrationen liegen dabei bei ATTLA zwischen 800 und 2000 mBq/SCM mit einem Median von 1500 mBq/SCM, beim semi-Lagrangeschen Schema zwischen 710 und 1700 mBq/SCM mit einem Median von 1100 mBq/SCM. Man kann also schließen, dass beide Modelle die großräumigen Transportprozesse in dieser Gegend, die im Wesentlichen von den dort herrschenden

synoptischen Bedingungen gesteuert werden (Polian et al., 1986), gut erfassen.

Es gibt allerdings zwischen den beiden Modellen einen systematischen Unterschied. ATTILA berechnet nämlich bei allen drei Stationen grundsätzlich niedrigere Bodenkonzentrationen als das semi-Lagrangesche Schema. Wie schon in den vorhergehenden Abschnitten diskutiert, kommt als Grund hierfür die Parameterisierung der Grenzschichtturbulenz in Betracht, die in ATTILA unterhalb einer berechneten Höhe die gesamte Schicht vollständig durchmischt und somit am Boden niedrigere Konzentrationen erzeugt. Zwar scheinen die von ATTILA erzeugten Werte besser mit den Beobachtungen übereinzustimmen, doch ist diese Aussage vor dem Hintergrund eines möglicherweise überschätzten Emissionsflusses (sowohl über Land als auch über den Ozeanen) vorsichtig zu genießen.

Radon-Messungen am **Mauna Loa Observatorium** (MLO) auf Hawaii (20°N, 156°W, 3400 m üNN) wurden vom amerikanischen Environmental Measurements Laboratory (EML) des Department of Energy (DOE) durchgeführt, sind elektronisch verfügbar²⁰ und in Hutter et al. (1995) beschrieben. Die Messungen bewegen sich zwischen 50 und 1000 mBq/SCM und weisen eine hohe Variabilität auf. Sie werden sowohl von großräumigem Transport als auch von lokalen Emissionen beeinflusst (Whittlestone et al., 1992, 1996). Um letztere auszuschließen werden nur die nächtlichen Messungen zwischen 0:00 und 7:00 Uhr benutzt, da das Observatorium dann meistens über der Passatwindinversion liegt. Die synoptischen Bedingungen sind auch sehr variabel und werden von den Passatwinden genauso beeinflusst wie von starken Westwinden, die ²²²Rn von Asien heran transportieren (Whittlestone et al., 1992; Kritz et al., 1990; Merrill et al., 1989).

Die Beobachtungen werden in Abbildung 3.5 mit den in 3400 m Höhe berechneten Werten bei Hawaii verglichen. Beide Modelle liefern nahezu identische Werte, aber sie unterschätzen die Messungen fast während des gesamten Jahres um einen Faktor 1.5 bis 3. Die jahreszeitliche Variabilität mit einem Maximum im Frühjahr und einem Minimum im Sommer wird allerdings von den Modellen gut getroffen.

Da auch viele andere Modelle Probleme haben, die gemessenen ²²²Rn-Konzentrationen in der mittleren und oberen Troposphäre über Hawaii zu reproduzieren (Den-
tener et al., 1999; Stevenson et al., 1998a; Jacob et al., 1997), wurden in der Literatur mehrere mögliche Gründe dafür diskutiert. Die Hauptquellen für ²²²Rn auf

²⁰<http://www.eml.doe.gov/databases/radon/>

Hawaii sind lokale Emissionen von der Insel selbst und ^{222}Rn , das von Asien mittels starker Westwinde herantransportiert wird (Whittlestone et al., 1992; Kritz et al., 1990). Geht man davon aus, dass die vorliegenden Messwerte weitgehend repräsentativ für ^{222}Rn aus entfernten Quellen sind, so ergeben sich als mögliche Gründe ein unterschätzter Emissionsfluss von ^{222}Rn über Asien, zu schwacher konvektiver Transport über Asien, oder zu langsamer horizontaler Transport in der oberen Troposphäre über dem Nordpazifik. Dentener et al. (1999) zeigten, dass durch eine Erhöhung des Emissionsflusses von ^{222}Rn über Asien (um den Faktor 3) zwar eine bessere Übereinstimmung mit den Messungen am MLO erreicht wird, aber in der oberen Troposphäre über Hawaii unrealistisch hohe ^{222}Rn -Konzentrationen entstehen. Ferner reagieren die ^{222}Rn -Konzentrationen am MLO relativ unempfindlich auf eine Erhöhung der Mischungsintensität in der Grenzschicht über Asien (Dentener et al., 1999; Stockwell et al., 1998). Dies bestätigt sich auch hier, weil ATTILA nahezu identische Werte am MLO produziert wie das semi-Lagrangesche Schema, aber die Grenzschicht stärker durchmischt. Auf dem WCRP “Workshop on Global Tracer Transport Models” im August 1995 wurde vorgeschlagen, dass die Unterschätzung der ^{222}Rn -Konzentrationen am MLO von einer inkorrekten Modellmeteorologie herrühren könnte. Das Modell des U.K. Met. Office z. B., das eine relativ starke Konvektion über Asien simulierte und dessen “Jet Stream” weiter südlich lag als in den meisten anderen Modellen, berechnete im Sommer weitaus realistischere ^{222}Rn -Konzentrationen (WCRP, 1999).

Marine Stationen unter kontinentalem Einfluss. Wie am MLO, werden ^{222}Rn -Konzentrationen bei **Tudor Hill, Bermuda** (33°N , 65°W , 28 m üNN) ebenfalls vom EML gemessen und sind elektronisch verfügbar (siehe oben). Die Konzentrationen zeigen starke Schwankungen mit niedrigsten Werten um 100 mBq/SCM und längeren Episoden mit hohen Konzentrationen um 2000 mBq/SCM. Im Winter, wenn die ITCZ weiter südlich liegt, wird das Wetter auf Bermuda hauptsächlich von den Westwinden beeinflusst, die kontinentale Luftmassen von Nordamerika herantransportieren. Im Sommer hingegen liegt Bermuda unter dem Einfluss des Azorenhochs, und die advehierten Luftmassen sind eher maritimen Ursprungs.

Die Messungen wurden an der Spitze eines 23 m hohen Turmes durchgeführt, wobei sich an dieser Stelle der zum Meer hin offene Sektor von 180° bis 330° (Azimut-

winkel) erstreckt. Um lokale Emissionen auszuschließen, wurden alle Messungen bei schwachem Landwind²¹ ausgefiltert. Auf diese Weise wurden ca. 20% der Messungen aussortiert, die meisten von ihnen im Sommer während Episoden mit stagnierendem hohem Luftdruck und schwachen Winden (Dentener et al., 1999).

Auch hier berechnen beide Modelle nahezu identische Konzentrationen, außer vielleicht im Winter, wo ATTILA leicht höhere Werte als das semi-Lagrangesche Schema liefert. Der Jahresgang mit einem Maximum im Winter und einem Minimum im Sommer wird von den Modellen gut getroffen, ebenso wie die Variabilität in einem Monat. Die Übereinstimmung der absoluten Werte ist allerdings nur im Sommer gut, von Januar bis Mai werden die Beobachtungen um ca. 50% überschätzt. Bemerkenswert ist, dass die hier berechneten Werte, die ja ein klimatologisches Mittel über 10 Modelljahre darstellen, mit den Beobachtungen ebenso gut übereinstimmen wie die von Dentener et al. (1999) berechneten Werte, die zum Einen das Modell ECHAM4 mit einer höheren Auflösung (T42) betrieben und zum Anderen dem Modell mittels der sogenannten "Nudging"-Methode (vgl. Jeuken et al., 1996) die Meteorologie des Beobachtungszeitraumes aufprägten. Dies lässt schließen, dass sowohl die Meteorologie als auch die relevanten Transportprozesse in dieser Region von ECHAM4 gut beschrieben werden.

Gesell (1983) gibt einen Überblick über ²²²Rn-Messungen an verschiedenen Stationen auf der ganzen Welt, die mindestens über ein Jahr hinweg durchgeführt wurden. Die dort vorgestellten Daten aus **Bombay**, Indien (19°N, 73°O) wurden 2-mal täglich, morgens und nachmittags, über einen Zeitraum von 10 Jahren gewonnen (Mishra et al., 1980). Deutlich sichtbar ist der Einfluss des Monsuns in Bombay: Mit Beginn des SW-Monsuns werden ab Mai sehr niedrige Konzentrationen gemessen, da ²²²Rn-arme Luft vom Indischen Ozean advehiert wird, und im Herbst wird dann wieder ein rascher Anstieg verzeichnet. Die höchsten Konzentrationen werden im Winter erreicht, wenn durch den NO-Monsun kontinentale Luftmassen nach Bombay gelangen.

Wiederum produzieren beide Modelle recht ähnliche Werte und überschätzen die Messungen systematisch um bis zu 100%. Der Jahresgang der Konzentration, besonders der rasche Anstieg im Herbst, wird aber von den Modellen sehr gut erfasst. Dies lässt schließen, dass die wesentlichen Transportprozesse in dieser vom Monsun

²¹Windrichtung zwischen 330° und 180°, Windgeschwindigkeit kleiner als 2.5 m/s.

dominierten Gegend gut erfasst werden, und die Überschätzung der Konzentrationen eher auf zu hohe Emissionsraten zurückzuführen sind.

Rein kontinentale Stationen. Gold et al. (1964) stellten ^{222}Rn -Messungen in **Cincinnati**, Ohio (39°N , 84°W) vor, die in den Jahren 1959 bis 1963 durchgeführt wurden und als monatliches Mittel für jeweils einen Morgen- und einen Nachmittagstermin vorliegen. Da die morgendlichen Werte vor allem im Spätsommer wesentlich höher sind als die Nachmittagswerte (vgl. Cox et al., 1970) und da nicht erwartet wird, dass die Modelle einen solchen scharfen Gradienten in einer dünnen Grenzschicht reproduzieren, werden hier nur die Nachmittagswerte, die um 15:00 Uhr gemessen wurden, mit den Modellwerten für 19:00 Uhr²² verglichen. Die Fehlerbalken in den Beobachtungsdaten in Abbildung 3.5 zeigen dabei den Wertebereich der einzelnen Monatsmittel an.

Beide Modelle reproduzieren die gemessenen Konzentrationen recht gut, allerdings lässt sich ein Unterschied im Jahresgang feststellen. Die modellierten Werte folgen klar dem Jahresgang der vertikalen Mischungsintensität, mit minimalen Konzentrationen im Sommer und maximalen Konzentrationen im Winter, während die beobachtete Kurve dazu verschoben erscheint, mit minimalen Konzentrationen im Frühjahr und maximalen Konzentrationen im Herbst. Da Cincinnati eine rein kontinentale Station ist, ist dieser Jahresgang höchstwahrscheinlich durch regionale Änderungen im Emissionsfluss zu erklären, die im Modell nicht berücksichtigt werden. Im Winter können Bodenfrost und Schneebedeckung den Emissionsfluss von ^{222}Rn verringern (George, 1981). Im Frühling könnten die niedrigen Konzentrationen durch eine erhöhte Bodenfeuchtigkeit verursacht sein, die die Poren im Boden verstopft und so die Ausgasung von ^{222}Rn einschränkt. Allerdings ist der Einfluss der Bodenfeuchtigkeit auf die Emissionsrate von ^{222}Rn noch sehr schlecht verstanden, und in der Literatur finden sich zum Teil widersprüchliche Resultate (Jacob und Prather, 1990).

Deshalb sei hier abschließend eine weitere Station vorgestellt, die den oben genannten Einflüssen weniger unterliegt, nämlich **Socorro**, New Mexico (34°N , 107°W). Die Messungen wurden von Wilkening (1959) über einen Zeitraum von 6 Jahren

²²Die Modelldaten wurden für die Termine 0:00 und 12:00 Uhr (Weltzeit) archiviert, was in Cincinnati der Ortszeit von 19:00 bzw. 7:00 Uhr entspricht.

durchgeführt, und wiederum werden, wie auch in Jacob und Prather (1990), nur die Werte um 15:00 Uhr zum Vergleich herangezogen. Diesmal zeigen sowohl die Beobachtungen als auch die Modellergebnisse einen Jahresgang, der von Konvektion und vertikaler Mischungsintensität kontrolliert wird. Allerdings zeigen sich hier erhebliche Unterschiede bei den absoluten Werten. Während ATTILA die Beobachtungen recht gut wiedergibt, überschätzt das semi-Lagrangesche Schema diese um bis zu 100%. Wie schon mehrfach erwähnt, liegt der Grund hierfür in den verschiedenen Parameterisierungen der Grenzschichtturbulenz in den beiden Modellen. Hier ist aber zu bemerken, dass eine Reduktion des Emissionsflusses über Land um mindestens den Faktor $1/3$ (auf $0.8 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) nötig ist, um eine Übereinstimmung des semi-Lagrangeschen Schemas mit den Beobachtungen zu erreichen. Da der reale Emissionsfluss aber nicht bekannt ist und auch über größere Gebiete gemittelt stark vom globalen Mittel abweichen kann (so dass manche Autoren sogar von einem Vergleich mit kontinentalen Stationen ganz absehen, siehe z. B. Mahowald et al., 1997), ist eine Bewertung dieser Ergebnisse schwierig. Geht man davon aus, dass der reale Fluss bei einem globalen Mittel von ungefähr $1 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ liegt, so darf man vermuten, dass die vertikale Durchmischung in ATTILA geringfügig zu stark ist, während sie im semi-Lagrangeschen Schema signifikant zu schwach ist.

iii. Vertikalprofil. Untersucht man schnelle vertikale Transportprozesse mit Hilfe eines kurzlebigen Spurenstoffes wie ^{222}Rn , so ist es wünschenswert, nicht nur Messungen von Bodenkonzentrationen wie im letzten Abschnitt zur Verfügung zu haben, sondern auch Vertikalprofile über die gesamte Troposphäre. Von ^{222}Rn gibt es allerdings kaum Messungen, die über die Grenzschicht hinausgehen. Liu et al. (1984) fassten eine Anzahl von damals in der Literatur verfügbaren Messungen verschiedenster Autoren zusammen und erstellten daraus saisonal gemittelte Profile, welche für kontinentale Standorte repräsentativ sein sollten. Vor allem das Sommerprofil wird gerne zum Vergleich mit Modellrechnungen herangezogen, aber man sollte sich bewusst sein, dass dieses Profil aus lediglich 23 Einzelprofilen errechnet wurde, die noch dazu an 7 verschiedenen Orten in Nordamerika und Osteuropa und mit verschiedenen — z. T. schlecht dokumentierten — Messmethoden gewonnen wurden. Berücksichtigt man die große Variabilität zwischen den einzelnen Messungen und den Umstand, dass ein Einzelprofil stark von lokalen Bedingungen und dem momentanen thermodynamischen Zustand der betrachteten Luftsäule abhängt, so

erscheint es fraglich, ob dieses Profil wirklich klimatologisch repräsentativ ist.

Nichtsdestotrotz soll hier das von Liu et al. (1984) vorgestellte Sommerprofil mit den Modellen verglichen werden (Abbildung 3.6a). Die Modellprofile wurden dabei über den gesamten Sommer und über die 7 Messorte gemittelt, wobei jeder Ort mit der Anzahl der dort durchgeführten Messungen gewichtet wurde.

Oberhalb von 9 km erzeugen die beiden Modelle fast identische Konzentrationen und stimmen auch gut mit den Beobachtungen überein. Der vertikale Transport in die obere Troposphäre (hauptsächlich durch hochreichende Konvektion) ist also in ATTILA genauso effektiv wie im semi-Lagrangeschen Schema und scheint auch durch die Beobachtungen bestätigt zu sein. Die Übereinstimmung zwischen den beiden Modellen setzt sich auch noch in tiefere Schichten bis 6 km fort, sie unterschätzen aber die Messungen in diesem Höhenbereich (von 3 bis 8 km). Allerdings liegen beide Modelle noch innerhalb der von Liu et al. (1984) angegebenen Standardabweichung vom gemittelten Profil. Unterhalb von 3 km ist die Übereinstimmung wieder besser, aber beide Modelle überschätzen die Beobachtungen. ATTILA zeigt dabei eine stärkere Durchmischung der untersten Schichten und niedrigere, scheinbar realistischere Bodenkonzentrationen, aber keines der beiden Modelle reproduziert den beobachteten starken Gradienten in der Grenzschicht.

Kritz et al. (1998) nutzten im Sommer 1994 reguläre Flüge des Kuiper Airborne Observatory (KAO), um eine repräsentative Sammlung von ^{222}Rn -Messungen in der freien Troposphäre zu erhalten, die an einem Ort und innerhalb eines kurzen Zeitraumes für die Validierung von 3-D Modellen gewonnen wurden. Die Flüge fanden vom 3. Juni bis 16. August 1994 rund um Moffett Field, Kalifornien (37.4°N , 122.0°W) statt, und es wurden jeweils während der Steigflüge insgesamt 11 Einzelprofile mit einer vertikalen Auflösung von ca. 1 km gemessen. Im Gegensatz zu den Daten von Liu et al. (1984) haben diese Profile den Vorteil, dass sie mit ein und derselben, gut dokumentierten Vorrichtung gemessen wurden, und die Qualität der Daten sorgfältig geprüft wurde (Kritz et al., 1998).

Moffett Field liegt nur 40 km von der Pazifikküste entfernt, so dass ein Vergleich mit Modellrechnungen in der unteren Troposphäre nur bedingt möglich ist, da dort die ^{222}Rn -Konzentrationen einen starken horizontalen Gradienten aufweisen, und kleine Unterschiede im horizontalen Gitter große Änderungen in den ^{222}Rn -Werten nach sich ziehen können. In höheren Schichten ist ein Vergleich besser möglich

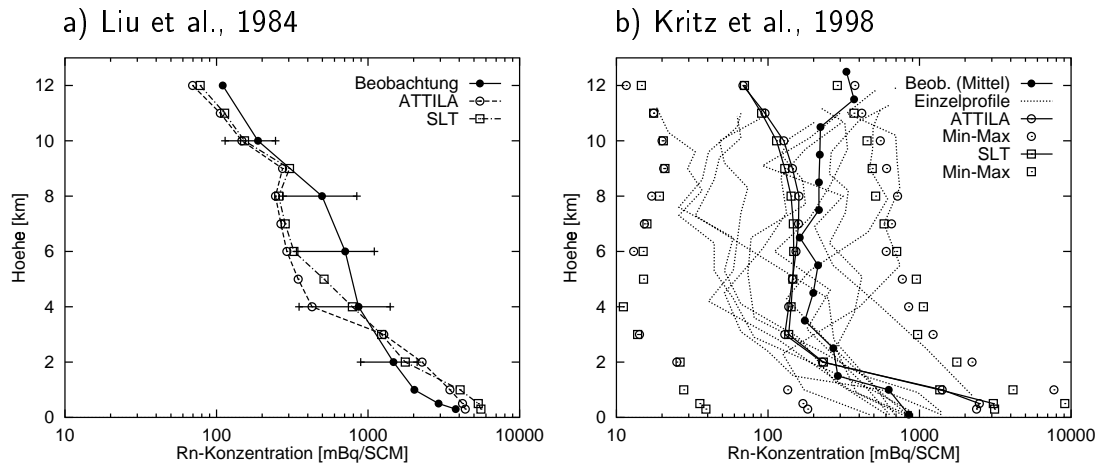


Abbildung 3.6: a) Das von Liu et al. (1984) berechnete, über 7 kontinentale Standorte gemittelte ^{222}Rn -Profil im Sommer mit den einzelnen Standardabweichungen (Fehlerbalken), und die über den Sommer und die gleichen Standorte gemittelten Profile von ATTLA und dem semi-Lagrangischen Schema in ECHAM. b) Die von Kritz et al. (1998) gemessenen 11 Einzelprofile um Moffett Field, Kalifornien, das daraus berechnete mittlere Profil, und die entsprechenden Profile von ATTLA und dem semi-Lagrangischen Schema. Die mit “Min-Max” bezeichneten Symbole geben den Wertebereich der berechneten (jeweils über 12 Stunden gemittelten) Einzelwerte im betrachteten Zeitraum an. Einheit: mBq/SCM.

und repräsentativ für den Transport über weite Strecken, da dort ^{222}Rn aus Asien dominiert, wie durch Modellrechnungen gezeigt wurde (Stockwell et al., 1998).

In Abbildung 3.6b sind die 11 gemessenen Einzelprofile, ein daraus berechnetes mittleres Profil und die über den Sommer gemittelten Profile von ATTLA und dem semi-Lagrangischen Schema dargestellt. Wiederum erzeugen beide Modelle — abgesehen von der Grenzschicht — fast identische Profile. Im Gegensatz zu dem in Abbildung 3.6a gezeigten Profil erzeugt ATTLA hier geringfügig höhere Konzentrationen in der oberen Troposphäre als das semi-Lagrangische Schema. Im Vergleich zum beobachteten mittleren Profil scheinen allerdings beide Modelle zu niedrig zu liegen. Berücksichtigt man aber die — aus den Einzelprofilen ersichtliche — hohe Variabilität, die auch in den Modellen von ähnlicher Größenordnung ist, so kann die Übereinstimmung der Modelle mit den Beobachtungen durchaus als zufriedenstellend angesehen werden.

3.3.5 Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

Da ATTILA ein völlig neu entwickeltes Advektionsschema für ECHAM ist, wurde dieses Experiment mit ^{222}Rn dazu benutzt, um das Transportverhalten des neu geschaffenen Codes zu untersuchen und ausführlich zu evaluieren. Sowohl ATTILA als auch das standardmäßige semi-Lagrangesche Advektionsschema in ECHAM benutzen die gleichen Eingabedaten, nämlich die von ECHAM erzeugte Meteorologie, weshalb es von sich aus schon interessant ist, diese beiden Modelle zu vergleichen, weil man dadurch den Einfluss der numerischen Eigenschaften eines Schemas auf die berechneten Lösungen untersuchen kann. Ein zusätzlicher Vergleich mit Beobachtungsdaten gibt dann Aufschluss über die Realitätsnähe der produzierten Ergebnisse. Da ^{222}Rn relativ kurzlebig ist und hauptsächlich über Land emittiert wird, lassen sich damit schnelle vertikale Transportprozesse wie Grenzschichtturbulenz oder Konvektion untersuchen, aber auch der Transport über weite Strecken von den Kontinenten zu “abgelegenen” Gebieten.

Im Allgemeinen kann gesagt werden, dass sich beide Modelle gut miteinander vergleichen und sie in vielen Fällen nahezu identische Resultate erzeugen. Auch die Konvektion, die ja in ATTILA auf dem gleichen Verfahren beruht wie im semi-Lagrangeschen Schema, ist in beiden Modellen gleich effektiv. Dies lässt darauf schließen, dass das in Abschnitt 2.4.5 besprochene “Problem der leeren Gitterboxen” in der Tat wenig Einfluss auf die Ergebnisse hat. Allenfalls in der unteren Troposphäre deuten einige Resultate auf einen sichtbaren Einfluss dieses Fehlers hin (vgl. Abbildung 3.2 und 3.6a).

Es gibt allerdings auch zwei Punkte, in denen sich die beiden Modelle wesentlich unterscheiden. Zum Einen ist in ATTILA die Grenzschichtturbulenz anders parameterisiert als im semi-Lagrangeschen Schema. Unterhalb einer berechneten Grenzschichthöhe wird in ATTILA eine vollständige Durchmischung innerhalb eines Zeitschrittes angenommen, was in den meisten Fällen niedrigere Bodenkonzentrationen, vor allem über Land, zur Folge hat.

Zum Anderen liegt ein wichtiger Unterschied in den verschiedenen numerischen Eigenschaften der beiden Modelle. Ein rein Lagrangesches Schema ist numerisch nichtdiffusiv (was einer der Gründe für die Entwicklung von ATTILA war), und diese Eigenschaft kann deutlich in der horizontalen Verteilung von ^{222}Rn , z. B. bei

100 hPa, gesehen werden (vgl. Abbildung 3.3). Vor allem in den Extratropen der Winterhalbkugel liefert ATTILA hier Konzentrationen, die im Vergleich zum semi-Lagrangeschen Schema um eine Größenordnung niedriger sind. Dies kann als eine wesentliche Verbesserung gewertet werden, da sich das semi-Lagrangesche Schema in mehreren Modellvergleichsstudien als sehr diffusiv erwies (vgl. Abschnitt 3.1).

Beim Vergleich der Bodenkonzentrationen mit den Beobachtungen scheinen die niedrigeren Werte von ATTILA realistischer zu sein. Allerdings kann aus einem allgemeinen Vergleich mit den Beobachtungen geschlossen werden, dass der gewählte Emissionsfluss von ^{222}Rn , sowohl über Land als auch über den Ozeanen, möglicherweise zu hoch gewählt wurde. Eine Reduktion des globalen Flusses auf einen niedrigeren, vielleicht realistischeren Wert würde dann die Werte des semi-Lagrangeschen Schemas näher zu den Beobachtungen bringen und eine geringfügige Unterschätzung in ATTILA zur Folge haben. Allerdings überschätzt das semi-Lagrangesche Schema die Bodenkonzentrationen sowohl im Mittel über die Kontinente (vgl. Tabelle 3.2) als auch an einzelnen Stationen (vgl. Abbildung 3.5, Socorro) sogar noch, wenn der globale Fluss um $1/3$ auf die untere Abschätzung von $0.8 \text{ Atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ reduziert wird. Während also in ATTILA die Mischung der Grenzschicht etwas zu stark zu sein scheint, ist sie im semi-Lagrangeschen Schema signifikant zu schwach.

Ansonsten liefern beide Modelle im Vergleich zu den Beobachtungsdaten weitgehend realistische Resultate. Viele Eigenschaften des Transportes, wie z. B. der Jahresgang an den meisten Bodenstationen, die Häufigkeit und Stärke von “Radon-Stürmen” auf Crozet oder die vertikale Verteilung von ^{222}Rn in der Troposphäre, werden von beiden Modellen gut wiedergegeben. Die vorhandenen Diskrepanzen, wie z. B. die Überschätzung der ^{222}Rn -Konzentrationen auf den Inseln im Indischen Ozean oder die Unterschätzung am Mauna Loa Observatorium auf Hawaii, können teilweise mit einem möglicherweise zu hohen Emissionsfluss erklärt werden oder sind auch bei anderen Modellen zu sehen, wie z. B. in der Modellvergleichsstudie von Jacob et al. (1997) oder in Mahowald et al. (1997).

3.4 Simulation von ^{14}C aus Atomwaffentests

3.4.1 Quellen und Senken von ^{14}C

Das Kohlenstoffisotop ^{14}C ist eine radioaktive Substanz, die natürlicherweise durch von kosmischer Strahlung induzierte Kernreaktionen produziert wird. Hochenergetische Partikel (in der Größenordnung MeV bis GeV) reagieren dabei mit molekularem Stickstoff oder Sauerstoff, und bilden unter anderem ^{14}C , welches sich sehr schnell zu $^{14}\text{CO}_2$ umwandelt und dann chemisch inaktiv ist (Jackman et al., 1991; Lal und Peters, 1962). Aufgrund der langen Lebenszeit (Halbwertszeit 5730 Jahre) gilt ^{14}C als weitgehend homogen verteilt mit einer beobachteten Hintergrundkonzentration von $357 \cdot 10^{-18}$ mol/mol (Telegadas, 1971) und einer von der lokalen Intensität der kosmischen Strahlung abhängigen Schwankung von ca. 10% um diesen Wert (Jackman et al., 1991). Abschätzungen zur globalen Produktionsrate sind mit großen Unsicherheiten behaftet und bewegen sich um $3 \cdot 10^{26}$ Atome pro Jahr (Lingenfelter und Ramaty, 1970; Lal und Peters, 1967).

In den 50er und frühen 60er Jahren wurde jedoch durch die oberirdischen Atomwaffentests der ^{14}C -Gehalt in der Atmosphäre wesentlich erhöht, so dass auf der Nordhalbkugel 1963 der Hintergrundwert in der Stratosphäre um das 10fache und am Boden um das Doppelte übertroffen wurde (Johnston, 1989; Nydal und Lövseth, 1983). Nach dem Atomtestmoratorium von 1963 nahm der ^{14}C -Gehalt wieder kontinuierlich ab, da $^{14}\text{CO}_2$ genau wie $^{12}\text{CO}_2$ im globalen Kohlenstoffkreislauf eingebunden ist, und von den Ozeanen und der terrestrischen Biosphäre aufgenommen wird.

In dem im Folgenden vorgestellten Experiment wird ausschließlich das durch die Atomwaffentests verursachte, *zusätzliche* ^{14}C simuliert. Im weiteren Kontext ist also mit ^{14}C bzw. $^{14}\text{CO}_2$ nur das "Atombomben- ^{14}C " ohne das natürlich produzierte ^{14}C gemeint.

$^{14}\text{CO}_2$ kann auch näherungsweise als Tracer für die Emissionen einer Überschallflotte von Flugzeugen in der Stratosphäre dienen (Shia et al., 1993), da die Quellverteilungen ungefähr übereinstimmen. Im Unterschied zu dem hier simulierten, quasi instantan freigesetzten ^{14}C aus Atomwaffentests erfolgen jedoch die Emissionen einer Flugzeugflotte kontinuierlich, was die Übertragbarkeit der Ergebnisse reduziert.

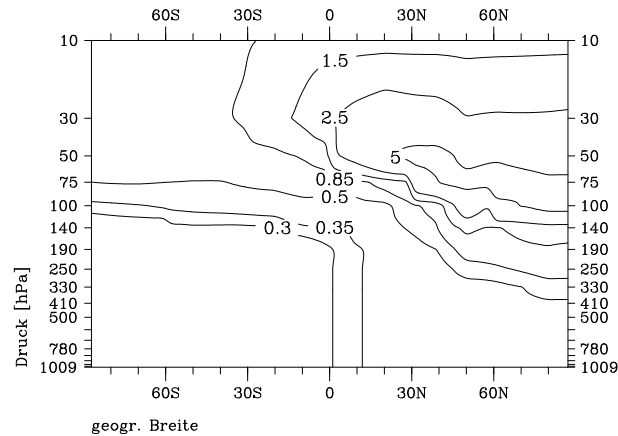


Abbildung 3.7: Meridionalschnitt der Anfangsverteilung von $^{14}\text{CO}_2$ aus Atomwaffentests für den Oktober 1963. Isolinien: 0.3, 0.35, 0.5, 0.85, 1.5, 2.5, 5. Einheit: 10^{-15} mol/mol.

3.4.2 Aufbau des Simulationsexperimentes

i. Anfangsverteilung. Basierend auf den Messungen der U.S. Atomic Energy Commission (Telegadas, 1971; Telegadas et al., 1972) konstruierte Johnston (1989) einen ^{14}C -Initialisierungsdatensatz, der speziell für die Anwendung in atmosphärischen Modellen gedacht war (z. B. Jackman et al., 1991; Shia et al., 1993, 1989). Dieser Datensatz wurde für den Oktober 1963 erstellt und ist zonalsymmetrisch, da er für den Einsatz in 2-dimensionalen Modellen gedacht war. Diese Annahme ist jedoch unproblematisch, da zu diesem Zeitpunkt die letzten Testserien neun Monate zurücklagen und die einzelnen Einträge schon zonal gleichmäßig verteilt waren (Johnston, 1989). Der Datensatz deckt die Atmosphäre vom Boden bis zu einer Höhe von 50 km mit einer vertikalen Auflösung von 1 km und einer meridionalen Auflösung von 10° ab, und wurde von Kjellström et al. (2000) auf das ECHAM Modellgitter interpoliert (Abbildung 3.7). Da die Messungen, auf denen dieser Datensatz beruht, nicht global gleichverteilt sind, mussten an vielen Punkten die Werte aus den Nachbarwerten interpoliert bzw. extrapoliert werden, was die Genauigkeit reduziert (Johnston, 1989). Der Hauptteil von ^{14}C aus Atomwaffentests wurde in der Stratosphäre über der Nordhalbkugel freigesetzt (Manning et al., 1990), und dementsprechend finden sich dort die höchsten Konzentrationen mit über $5 \cdot 10^{-15}$ mol/mol. In Richtung Südpol und zum Boden hin nehmen sie um eine Größenordnung ab; in der Troposphäre der Südhalbkugel herrschen mit weniger als $0.3 \cdot 10^{-15}$ mol/mol die niedrigsten Konzentrationen.

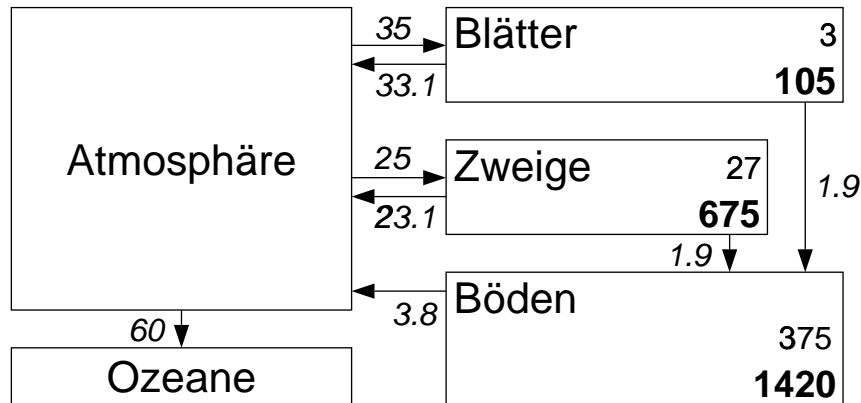


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung des Kohlenstoffkreislaufes. Die Pfeile bezeichnen die ^{12}C -Flüsse [Pg/a] zwischen Atmosphäre, Ozean und terrestrischer Biosphäre. In den 3 Teilreservoirs ist die Speicherkapazität (unten, fett) [Pg] und die Umwälzzeit (oben) [a] angegeben (nach Land, 1999).

ii. **Behandlung des Kohlenstoffkreislaufes.** ^{14}C ist mit einer Halbwertszeit von 5730 Jahren sehr langlebig, weshalb der radioaktive Zerfall in dem hier betrachteten Zeitraum vernachlässigt werden kann. Die weitaus wichtigere Senke stellt die Einbindung von $^{14}\text{CO}_2$ in den globalen Kohlenstoffkreislauf dar. Die Aufnahme von Kohlenstoff in die Ozeane hängt dabei im Wesentlichen vom Kohlenstoffgehalt in der Atmosphäre und in der Oberflächenwasserschicht und von Transport- und Mischungsprozessen in tiefere Schichten ab (Oeschger et al., 1975). Der Kohlenstoffkreislauf über Land ist dagegen schwieriger zu beschreiben. Als wesentliche Prozesse sind hier die Aufnahme und Abgabe von Kohlenstoff durch Photosynthese bzw. Atmung, Organverluste der Pflanzen wie Blattabwurf, und die Speicherung bzw. der Abbau im Boden zu nennen. In Abbildung 3.8 sind die im Modell berücksichtigten ^{12}C -Flüsse schematisch dargestellt (vgl. auch Kjellström et al., 2000; Land, 1999).

Über den Ozeanen wird ein konstanter Fluss von 60 Pg(C)/a angenommen.²³ Die terrestrische Biosphäre wird in Anlehnung an Hesshaimer et al. (1994) und Siegenthaler und Oeschger (1987) in drei Teilreservoirs aufgeteilt: Das kleinste Reservoir beinhaltet Blätter, kleine Äste und feine Wurzeln, und kann 105 Pg Kohlenstoff speichern. Das mittlere Reservoir besteht aus Zweigen, Stämmen und großen Wurzeln, und speichert 675 Pg. In diesen beiden Reservoirs wird der gesamte Kohlenstoffgehalt innerhalb von 3 bzw. 27 Jahren einmal umgewälzt. Das größte

²³1 Pg = 10^{15} g = 1 Gt.

Reservoir sind die Böden, die 1420 Pg Kohlenstoff speichern können und das langsam verrottende Material der ersten beiden Reservoirs enthalten. Der Fluss von den ersten beiden Reservoirs in den Boden wird dabei als gleich groß angenommen. Die Umwälzzeit für das Bodenreservoir beträgt 375 Jahre. Der Gesamtfluss von der Atmosphäre in die ersten beiden Reservoirs beträgt wie auch über den Ozeanen 60 Pg(C)/a. Der aktuelle ^{14}C -Fluss errechnet sich dann in jedem Zeitschritt aus dem in Abbildung 3.8 angegebenen ^{12}C -Fluss mal dem Verhältnis von ^{14}C zu ^{12}C in dem entsprechenden Reservoir.²⁴

Die obige Beschreibung des globalen Kohlenstoffkreislaufes ist zwar nur ein stark vereinfachtes Modell (vgl. z. B. Sellers et al., 1997), jedoch sind etwaige Ungenauigkeiten in diesem Experiment nicht als sehr kritisch anzusehen, da der Schwerpunkt dieser Untersuchung auf dem Transportverhalten der beiden Modelle in der oberen Troposphäre und Stratosphäre liegt. In dem hier betrachteten Zeitraum übt aber ein Prozess am Boden wie der Kohlenstoffkreislauf relativ wenig Einfluss auf die Konzentrationen im Tropopausenbereich aus (Jackman et al., 1991; Rind et al., 1999).

3.4.3 Ergebnis der Simulation

Der globale $^{14}\text{CO}_2$ -Gehalt in der Modellatmosphäre nimmt bei ATTILA über den Zeitraum von Oktober 1963 bis Dezember 1972 mit einer Anpassungszeit²⁵ von 8.2 Jahren ab (Abbildung 3.9). Dieser Wert liegt zwischen dem Wert von 7 Jahren, der von Kjellström et al. (2000) mit dem semi-Lagrangeschen Schema in ECHAM4 berechnet wurde, und dem Wert von 9.4 Jahren, der von Land (1999) ebenfalls mit dem semi-Lagrangeschen Schema berechnet wurde. Land (1999) benutzte allerdings die vertikal höher aufgelöste Version ECHAM4.L39(DLR) mit 39 Schichten zwischen der Erdoberfläche und 10 hPa (Land et al., 1999).

Der troposphärische $^{14}\text{CO}_2$ -Gehalt nimmt zu Beginn der Simulation zu, da $^{14}\text{CO}_2$ -

²⁴In der Atmosphäre ist dabei der ^{14}C -Gehalt in der untersten Modellschicht ausschlaggebend, wobei für 1963 eine ^{12}C -Konzentration von 310 ppmv angenommen wird. Der anfängliche ^{14}C -Gehalt in den drei Reservoirs ist Null.

²⁵Die im Folgenden erwähnten Anpassungszeiten τ wurden mittels logarithmischer Regression bestimmt. Die Steigung der Regressionsgeraden ist dabei $-\tau^{-1}$, wenn der natürliche Logarithmus (zur Basis e) zugrunde gelegt wird.

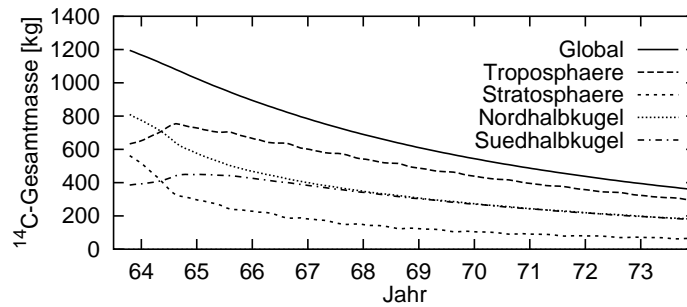


Abbildung 3.9: Zeitliche Entwicklung des $^{14}\text{CO}_2$ -Gehaltes in der gesamten Atmosphäre, in der Troposphäre, Stratosphäre, und in der Nord- bzw. Südhalbkugel. Einheit: kg.

reiche Luft aus der Stratosphäre in die Troposphäre transportiert wird. Aber bereits nach einem Jahr ist die Senke am Boden stärker als der stratosphärische Eintrag, und der troposphärische $^{14}\text{CO}_2$ -Gehalt nimmt ab.

Der stratosphärische $^{14}\text{CO}_2$ -Gehalt ist gekennzeichnet durch einen starken Abfall im ersten Jahr der Simulation, während dessen ein Großteil des stratosphärischen $^{14}\text{CO}_2$, der sich hauptsächlich in der unteren Stratosphäre befindet, in die Troposphäre entweicht, und einen sich anschließenden schwächeren Abfall. Dieses Verhalten zeigen auch die Beobachtungsdaten, aus denen Johnston (1989) eine Anpassungszeit des stratosphärischen $^{14}\text{CO}_2$ von 2.3 Jahren von Januar 1963 bis Oktober 1964, und eine Anpassungszeit von 5.7 Jahren von Januar 1965 bis Juli 1966 berechnete. In ATTILA betragen die entsprechenden Anpassungszeiten 1.5 Jahre für den Zeitraum von Oktober 1963 bis Oktober 1964 und 4 Jahre für letzteren Zeitraum (siehe auch Tabelle 3.3 für eine Übersicht der beobachteten und berechneten Anpassungszeiten). Der starke Abfall im ersten Jahr der Simulation ist im semi-Lagrangeschen Schema sogar etwas betonter. Kjellström et al. (2000) und Land (1999) berechneten hier Anpassungszeiten von 1.3 bzw. 1.2 Jahren. Der Unterschied zwischen ATTILA und dem semi-Lagrangeschen Schema wird noch deutlicher, wenn man nur die ersten drei Monate des Modelllaufes betrachtet, in denen scharfe vertikale Gradienten der $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration in der unteren Stratosphäre auftreten. Für den Zeitraum von Oktober bis Dezember 1963 erhält man in ATTILA eine Anpassungszeit von 2.5 Jahren, während das semi-Lagrangesche Schema in ECHAM4.L39(DLR) eine Anpassungszeit von 1.6 Jahren produziert (Land, 1999). Der Abwärtsfluss von der Stratosphäre in die Troposphäre ist also in den ersten 3 Monaten in ATTILA kleiner als im semi-Lagrangeschen Schema.

Betrachtet man hingegen einen späteren Zeitraum, z. B. von Januar 1965 bis Juli 1966, so ergibt sich in ATTILA eine niedrigere Anpassungszeit (4 Jahre) als im semi-Lagrangeschen Schema (5.2 Jahre, Kjellström et al., 2000). Dies lässt schließen, dass in ATTILA der vertikale Transport in den oberen Modellschichten allgemein schneller ist als im semi-Lagrangeschen Schema, während bei starken Gradienten die numerische Diffusion im semi-Lagrangeschen Schema dominiert und den vertikalen Transport dann stark "beschleunigt". Für eine detailliertere Untersuchung dieser Merkmale ist es daher sinnvoll, vertikale Profile von $^{14}\text{CO}_2$ zu betrachten.

3.4.4 Vergleich mit Vertikalprofilen

Im Zeitraum von 1959 bis Juli 1966 wurden bei Ballonaufstiegen bei 70°N , 31°N , 9°N und 42°S Messungen von $^{14}\text{CO}_2$ in verschiedenen Höhen durchgeführt (Johnston, 1989; Hagemann et al., 1965). Die beobachteten Profile werden in Abbildung 3.10 mit den berechneten, zonal gemittelten Profilen verglichen. Hierbei wurden für ATTILA zwei verschiedene Profile berechnet: Ein Profil (in Abbildung 3.10 mit AT-G bezeichnet) stellt die mit Hilfe der in Abschnitt 2.4.8 beschriebenen Methode berechneten Konzentrationen dar, die, wie auch die Berechnungen des semi-Lagrangeschen Schemas, auf dem ECHAM Modellgitter vorliegen. Im Falle des Transportes von (strahlungs-)aktiven Spurenstoffen würde ECHAM bei einer Rückkopplung diese Werte sehen, weshalb auch bei allen übrigen Experimenten ATTILA auf diese Weise ausgewertet wurde (vgl. Abschnitt 2.4.2). Ein Lagrangesches Modell ist jedoch nicht an die Benutzung eines bestimmten Gitters gebunden. Weil die

Tabelle 3.3: Anpassungszeiten für den $^{14}\text{CO}_2$ -Gehalt, für verschiedene Zeiträume und Gebiete, und beobachtet sowie berechnet von verschiedenen Modellen. Einheit: a.

Zeitraum	Region	Beobachtung	ATTILA	L19/SLT	L39/SLT
10/63–12/72	Global		8.2	7	9.4
1/63–10/64	Stratosphäre	2.3			
10/63–10/64	Stratosphäre		1.5	1.3	1.2
10/63–12/63	Stratosphäre		2.5		1.6
1/65–7/66	Stratosphäre	5.7	4	5.2	

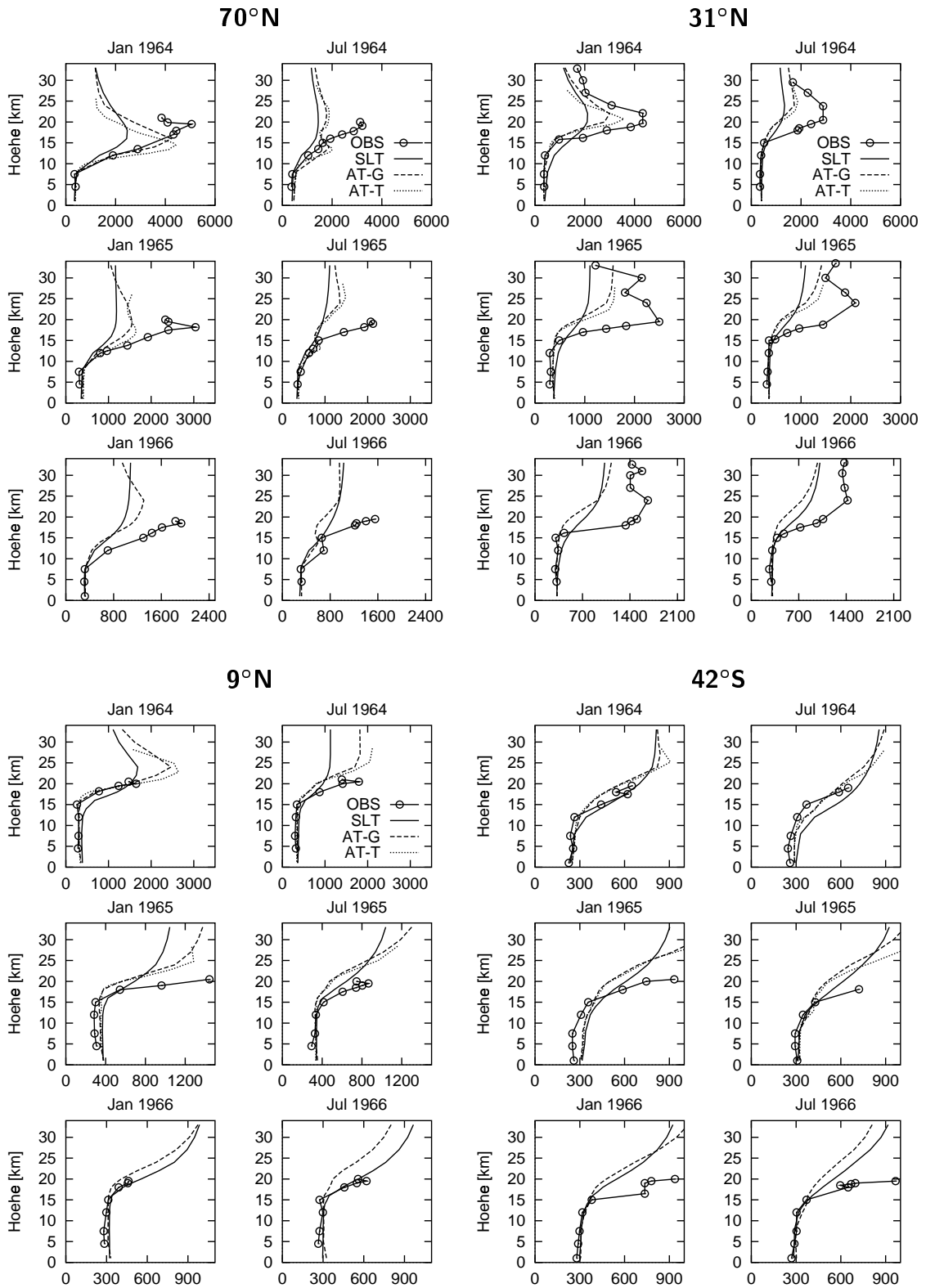


Abbildung 3.10: Beobachtete und berechnete Vertikalprofile bei 70°N , 31°N , 9°N und 42°S . Für ATTILA wurden, wie im Text beschrieben, zwei verschiedene Profile berechnet. Einheit: 10^{-18} mol/mol.

vertikale Auflösung von ECHAM in der Stratosphäre verglichen mit der Variabilität der beobachteten Profile relativ grob ist (das Maximum in der Anfangsverteilung bei 31°N ist z. B. vertikal lediglich durch 5 Schichten aufgelöst), wurde ein zweites Profil direkt aus den Trajektorien berechnet (AT-T). Dabei wurden die Konzentrationen sämtlicher Luftpakete, die sich am entsprechenden Breitengrad befinden, auf ein vertikales Gitter mit einer Auflösung von 10 hPa übertragen. In den meisten Fällen stimmen die beiden Profile ziemlich gut überein, aber wenn sie verschieden sind, dann passt das zweite Profil besser zu den Beobachtungen (außer bei 70°N, siehe unten). Am deutlichsten kann man dies bei 31°N sehen, wo zu Beginn der Simulation das ausgeprägte Maximum in der Stratosphäre am besten durch das zweite Profil reproduziert wird.

Allen Profilen ist gemeinsam, dass ATTILA die Stärke der stratosphärischen "Peaks" in den ersten drei Monaten besser reproduziert und während der gesamten Simulation steilere Gradienten erhält als das semi-Lagrangesche Schema. Durch das Glätten der Gradienten produziert das semi-Lagrangesche Schema höhere Konzentrationen in der Troposphäre und unteren Stratosphäre (außer bei 70°N, siehe unten) und erzeugt somit einen überhöhten Abwärtsfluss von der Stratosphäre in die Troposphäre (vgl. Kjellström et al., 2000). Es ist zu bemerken, dass das semi-Lagrangesche Schema dieses Verhalten auch bei der vertikal höher auflösenden Version ECHAM4.L39(DLR) zeigt (Land, 1999). Die vertikale Auflösung scheint also für diesen Effekt nur eine untergeordnete Rolle zu spielen, zumindest solange man nicht zu noch höheren Auflösungen geht. Diese Erfahrung wurde auch von Rind et al. (1999) gemacht, die ebenfalls den Transport von ^{14}C in einem Zirkulationsmodell mit verschiedenen vertikalen Auflösungen untersuchten. Da ATTILA mit den Beobachtungen im Tropopausenbereich sehr gut übereinstimmt (bei 31°N) oder zumindest eine weniger starke Abweichung zeigt (bei 9°N und 42°S), ist zu schließen, dass für den überschätzten Abwärtsfluss weniger eine zu starke Meridionalzirkulation in ECHAM4 verantwortlich ist, sondern vielmehr die numerische Diffusion im semi-Lagrangeschen Schema.

Bei 70°N hingegen ergibt sich ein anderes Bild. Während ATTILA hier die Stärke des stratosphärischen Maximums zu Beginn der Simulation sehr gut wiedergibt, unterschätzt es die (geographische) Höhe des Maximums um mindestens 3 km. Dies führt zu einer Überschätzung der Konzentrationen in der Troposphäre und unteren

Stratosphäre, die im zweiten (AT-T) Profil sogar stärker ist, während nach 15 Monaten die berechneten Profile mit den Beobachtungen wieder übereinstimmen. Für dieses Phänomen kommen im Wesentlichen zwei Gründe in Frage: Erstens liegt das Maximum in einer Region, in der die Anzahldichte der Luftpakete relativ gering ist (vgl. Abbildung 2.1). Wenn also nur wenig Luftpakete dieses Maximum repräsentieren, reicht es aus, wenn noch weniger Luftpakete (zufällig) nach unten transportiert werden, um die Konzentrationen unrealistisch zu erhöhen. Allerdings produzierte ein Modelllauf mit einer 3fachen Anzahl von Luftpaketen nahezu identische Profile (ohne Abbildung), so dass eine zu geringe Anzahldichte von Paketen in diesem Gebiet wahrscheinlich nicht der Grund ist. Zweitens liegt das Maximum in einer Region, die bereits von der Polarwirbeldynamik beeinflusst wird. Da der Polarwirbel in der Nordhemisphäre sehr variabel ist (Waugh und Randel, 1999; Grewe et al., 1998) und dem Modell die beobachtete Dynamik nicht aufgezwungen wurde, kann auch eine unrealistisch starke Abwärtsbewegung im betrachteten Modellwinter (die in dem ausgeglätteten Profil des semi-Lagrangeschen Schemas nicht mehr sichtbar ist, vgl. nächsten Abschnitt) dafür verantwortlich sein. Weitere Simulationen mit verschiedenen Anfangsbedingungen in der Modelldynamik würden hier Klarheit schaffen.

Ein weiterer Unterschied zwischen ATTILA und dem semi-Lagrangeschen Schema ergibt sich in den oberen Modellschichten. In den meisten Fällen unterschätzen beide Modelle die Konzentrationen oberhalb von 15 km, wobei ATTILA näher an den Beobachtungen liegt. Im Laufe der Zeit nehmen allerdings die von ATTILA berechneten Konzentrationen in diesem Höhenbereich schneller ab als im semi-Lagrangeschen Schema, so dass sie im Jahr 1966 sogar niedriger sind als im semi-Lagrangeschen Schema. Während also der vertikale Transport in den obersten Modellschichten im semi-Lagrangeschen Schema zu langsam ist (vgl. Kjellström et al., 2000), scheint dieser in ATTILA zu schnell zu sein.

3.4.5 Einfluss der Diffusionsparameterisierung auf die Ergebnisse

Wie in Abschnitt 2.4.4 beschrieben, wird in ATTILA subskalige Diffusion durch einen Austausch zwischen benachbarten Luftpaketen beschrieben, der durch den Parameter d kontrolliert wird. Dabei kann d — wie auch in STOCHEM — pauschal vorgeschrieben werden oder nach einem Ansatz von Walton et al. (1988) und Sma-

gorinsky (1963) aus der Windscherung berechnet werden. Dabei berichten Walton et al. (1988), dass dieser Ansatz Werte von d liefert, die ungefähr um eine Größenordnung über den Werten von d liegen, die aus repräsentativen Werten für den horizontalen Diffusionskoeffizienten hergeleitet wurden (vgl. Anhang B.2). Da sich eine erhöhte Diffusion am deutlichsten bei langlebigen Spurenstoffen mit einer inhomogenen Verteilung bemerkbar macht, wurde das hier beschriebene ^{14}C -Experiment mit verschiedenen Diffusionsparameterisierungen in ATTILA durchgeführt. Tabelle 3.4 gibt eine Übersicht über die verschiedenen Festlegungen von d in den verschiedenen Experimenten. In den Experimenten AT-2 und AT-3 wurde d ungefähr auf die Werte festgelegt, die auch die Formel von Smagorinsky (1963) liefert (vgl. Abbildung 2.4) und die im Experiment AT-S benutzt werden. Im Vergleich zu AT-2 wird d in AT-4 und AT-1 um eine Größenordnung erhöht bzw. erniedrigt. Dabei stellt AT-1 die Standardeinstellung in ATTILA dar. Zum Vergleich wurde auch ein Modelllauf mit abgeschalteter Diffusion (AT-0) durchgeführt.

In Abbildung 3.11 sind die von den verschiedenen Modellkonfigurationen berechneten Vertikalprofile bei 70°N und 31°N im Vergleich zu den Beobachtungen und dem semi-Lagrangeschen Schema (SLT) gezeigt. Erwartungsgemäß stimmen die Profile AT-2, AT-3 und AT-S ungefähr überein, zeigen aber im Vergleich zu den Beobachtungen eine zu starke Diffusion. In AT-4 ist die Diffusion eindeutig zu hoch, während die beiden Profile AT-0 und AT-1 weitgehend übereinstimmen und die Beobachtungen am besten reproduzieren. Ferner ist im Profil bei 70°N (Januar 1964) auch gut zu sehen, wie erhöhte Diffusion die im vorhergehenden Abschnitt besprochene zu starke Abwärtsbewegung bei 70°N kaschieren kann. Eine Unterschätzung der (geographischen) Höhe des Maximums ist nur in den beiden Profilen AT-0 und AT-1 zu erkennen, während dies bei allen anderen Profilen einschließlich dem des

Tabelle 3.4: Wahl des Diffusionsparameters d in den verschiedenen Experimenten. Im Experiment AT-S wird d zu jedem Zeitschritt, wie in Kapitel 2.4.4 beschrieben, neu berechnet. Einheit: 1.

	AT-0	AT-1	AT-2	AT-3	AT-4	AT-S
Troposphäre	0.0	0.001	0.01	0.02	0.1	var.
Stratosphäre	0.0	0.0005	0.005	0.01	0.05	var.

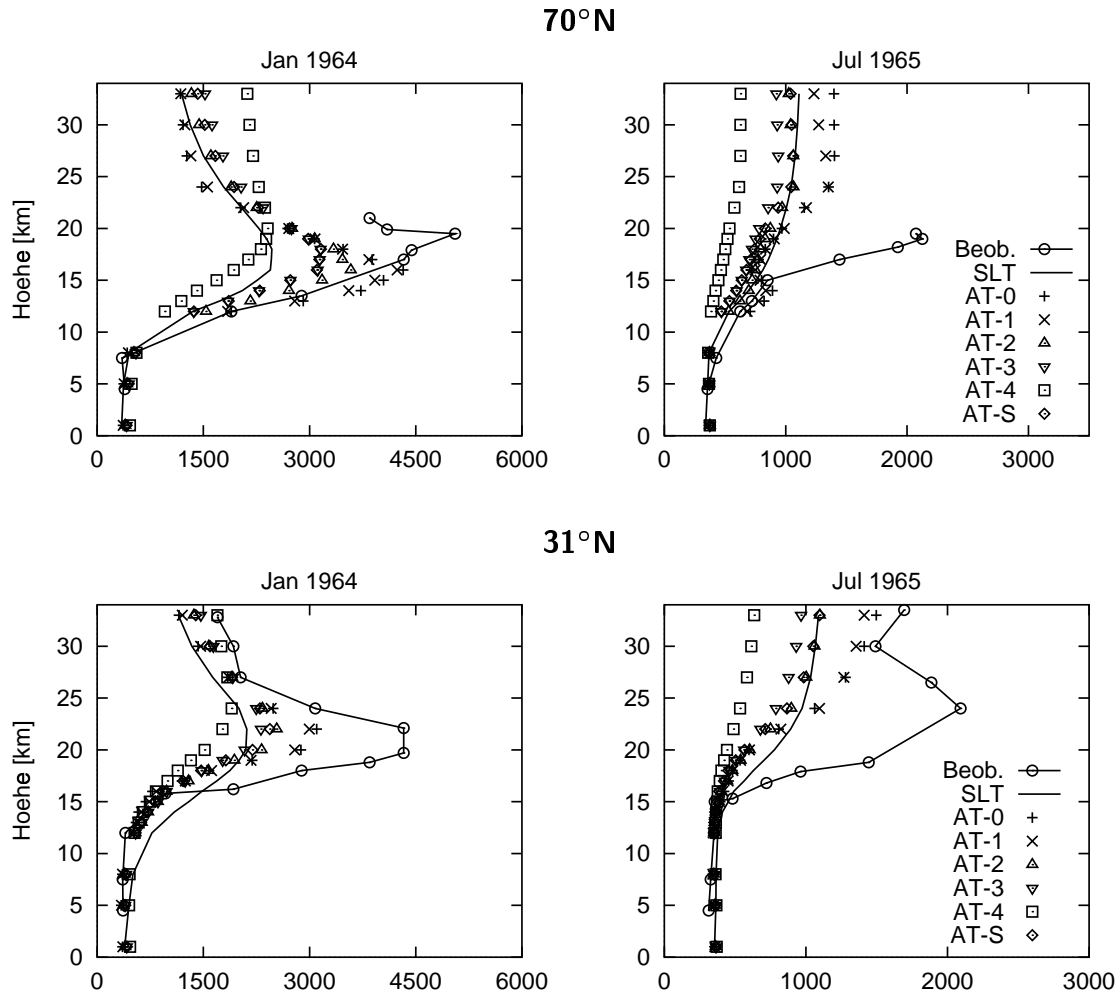


Abbildung 3.11: Vertikalprofile von $^{14}\text{CO}_2$ bei verschiedenen Diffusionskoeffizienten. Beschreibung der Profile in Tabelle 3.4. Einheit: 10^{-18} mol/mol.

semi-Lagrangeschen Schemas nicht zu sehen ist.

Es ist außerdem zu bemerken, dass die Diffusion in ATTILA eine andere Qualität hat als die des semi-Lagrangeschen Schemas. Im Profil vom Januar 1964 bei 31°N ist zu sehen, dass sogar das diffusivste Profil AT-4 von ATTILA unterhalb von 15 km gut mit den Beobachtungen übereinstimmt und im Gegensatz zum semi-Lagrangeschen Schema keinen überhöhten Abwärtstransport von der Stratosphäre in die Troposphäre zeigt. Dies zeigt, dass man nicht einfach pauschal “zu starke Vermischung” oder “Diffusion” für bestimmte Fehler verantwortlich machen kann, sondern die spezifischen numerischen Eigenschaften eines Schemas eine wesentliche Rolle spielen. Im Falle des semi-Lagrangeschen Schemas ist es das kubische Interpolationsverfahren, das nicht nur Informationen aus den direkt benachbarten

Gitterpunkten benutzt und so eine schnellere Propagation des Signals ermöglicht (Williamson und Rasch, 1994, 1989).

3.4.6 Zusammenfassung der Ergebnisse

Das hier vorgestellte Experiment zeichnet sich vor allem dadurch aus, dass es sich bei "Atombomben- ^{14}C " um einen sehr langlebigen Spurenstoff handelt, der zu Beginn der Simulation stark inhomogen, mit einem ausgeprägten Maximum in der nördlichen Stratosphäre, verteilt ist. Das semi-Lagrangesche Schema dämpft dieses Maximum im Vergleich zu den Beobachtungen zu stark ab, und produziert gleichzeitig einen zu hohen Abwärtsfluss von der Stratosphäre in die Troposphäre, wofür im Wesentlichen drei Gründe in Frage kommen: (1) Eine relativ grobe vertikale Auflösung im betrachteten Höhenbereich, (2) eine zu starke Meridionalzirkulation in ECHAM4 und (3) numerische Diffusion im Transportschema. Eine Erhöhung der vertikalen Auflösung brachte kaum eine Verbesserung (Land, 1999), so dass diese eine untergeordnete Rolle zu spielen scheint, zumindest solange man nicht zu noch höheren Auflösungen geht (vgl. auch Rind et al., 1999).

ATTILA produziert dagegen in fast allen Aspekten realistischere Profile als das semi-Lagrangesche Schema, so dass man hier von einer echten Verbesserung sprechen kann. Vor allem die Stärke des stratosphärischen Maximums wird von ATTILA in guter Übereinstimmung mit den Beobachtungen wiedergegeben, die vertikalen Gradienten werden besser erhalten, und dementsprechend zeigt sich hier auch kein überhöhter Abwärtsfluss durch die Tropopause. Da beide Transportschemata dieselbe Modelldynamik sehen, ist dies im Wesentlichen darauf zurückzuführen, dass ATTILA ein rein Lagrangesches — und somit numerisch nichtdiffusives — Transportschema ist. Gleichzeitig kann man schließen, dass die Ursache für den überschätzten Abwärtstransport im semi-Lagrangeschen Schema nicht in einer zu starken Meridionalzirkulation in ECHAM4, sondern hauptsächlich in den numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas liegt.

In den obersten Modellschichten zeigt ATTILA einen schnelleren vertikalen Transport als das semi-Lagrangesche Schema, der zwar zu Beginn der Simulation gut mit den Beobachtungen übereinstimmt, aber ab ungefähr dem Jahr 1966 stärker von diesen abweicht als das semi-Lagrangesche Schema. Eine Beurteilung ist hier

schwierig, da die obersten Schichten in ECHAM als “Dämpfungsschicht” fungieren, um eine künstliche Reflexion von Wellen am Modelloberrand zu verhindern (Roeckner et al., 1996) und somit eine “unphysikalische” Komponente enthalten. Die geringe Anzahldichte der Luftpakete in den obersten Schichten (vgl. Abbildung 2.1) spielt auch eine Rolle, wenn auch keine dominante, da eine Simulation mit 3facher Anzahl nur teilweise Verbesserungen brachte.

Eine Sensitivitätsstudie zeigte, dass die in ATTILA gewählte Parameterisierung der Diffusion (zusammen mit der Modellversion mit abgeschalteter Diffusion) die beste Übereinstimmung mit den Beobachtungen erzeugte. Dabei ist bemerkenswert, dass eine Erhöhung der Diffusion in ATTILA nicht den gleichen Effekt wie im semi-Lagrangeschen Schema, nämlich eine Erhöhung des Abwärtsflusses, zur Folge hat, was bedeutet, dass dieser Effekt in den spezifischen numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas begründet liegt.

Neben der expliziten Kontrolle der Diffusion bietet ein Lagrangesches Schema noch einen weiteren Vorteil: Es ist nämlich nicht an ein bestimmtes Gitter gebunden und gibt dem Benutzer die Möglichkeit, speziell an bestimmte Probleme oder Fragestellungen angepasste Verfahren zur Auswertung der Daten zu benutzen. In diesem Fall wurde die relativ grobe vertikale Auflösung des ECHAM Modellgitters in der Stratosphäre umgangen, indem die Vertikalprofile direkt aus den Konzentrationen in den Luftpaketen berechnet wurden, was eine nochmalige Verbesserung, vor allem zu Beginn der Simulation, brachte. Wie diese Freiheit auch für andere Probleme sinnvoll genutzt werden kann, wird im nächsten Kapitel bei der Berechnung des Alters der Luft (Kapitel 4) und in Kapitel 5 bei der Berechnung des Stratosphären-Troposphären-Austausches gezeigt werden.

3.5 Simulation von SF₆

3.5.1 Quellen und Senken

Schwefelhexafluorid (SF₆) ist ein industriell produziertes Gas ohne natürliche Quellen²⁶, und somit rein anthropogenen Ursprungs. Es zeichnet sich durch eine ho-

²⁶In bestimmten Gesteinsarten wurden zwar Spuren von SF₆ gefunden, jedoch ist der dadurch verursachte Fluss von SF₆ in die Atmosphäre vernachlässigbar klein (Harnisch und Eisenhauer, 1998).

he Isolierfähigkeit und durch gute Löscheigenschaften aus, weshalb der Hauptteil (80%) des produzierten SF₆ von der Elektroindustrie in gasisolierten Schaltungen verwendet wird (Ko et al., 1993; Levin und Hesshaimer, 1996). Dort sind auch die Hauptemissionen zu suchen, weil durch Lecks oder bei Reparatur- und Wartungsarbeiten SF₆ in die Atmosphäre entweicht. Neuere Verfahren sehen allerdings die Wiederverwertung von SF₆ bei Wartungsarbeiten vor, was die Emissionen reduziert (Ko et al., 1993). In Deutschland waren z. B. 1995 die elektrischen Anlagen wegen ihrer hohen Dichtigkeit nur zu einem geringen Teil (5%) an den SF₆-Emissionen beteiligt, die Hauptquellen waren hier Emissionen aus alten Schallschutzfenstern und Autoreifen (Mahrenholz, 1997).

SF₆ ist äußerst langlebig und hat in der Troposphäre und Stratosphäre keine bekannten Senken. Für den Abbau in der Meso- und Thermosphäre kommen mehrere Möglichkeiten, wie Reaktionen mit O(¹D), OH und H, Absorption von sehr kurzwelliger Strahlung ($\lambda < 130$ nm) oder Reaktionen mit freien Elektronen in Betracht, die aber zum großen Teil noch unverstanden sind. Ravishankara et al. (1993) schätzten die Lebenszeit von SF₆ mit 3200 Jahren ab, Morris et al. (1995) geben eine untere Abschätzung von 800 Jahren an. Aufgrund der hohen Lebensdauer nimmt der SF₆-Gehalt in der Atmosphäre stetig zu. Messungen am Boden zeigen einen nahezu ungebrochenen quadratischen Anstieg der Konzentrationen an, was auf einen linearen Anstieg in den Emissionen schließen lässt (Maiss und Levin, 1994; Maiss et al., 1996; Geller et al., 1997).

SF₆ ist eines der stärksten bekannten Treibhausgase mit einem GWP²⁷ von ca. 22000 bei einem Zeithorizont von 100 Jahren (Ko et al., 1993). Dennoch leistet es zurzeit keinen signifikanten Beitrag zum anthropogenen Treibhauseffekt, weil der SF₆-Gehalt in der Atmosphäre sehr gering (< 4 pptv) ist (Ko et al., 1993; Rinsland et al., 1990).

Wegen der langen Lebensdauer, einer ausschließlich anthropogenen Quelle am Boden und einer relativ einfachen Messbarkeit (Geller et al., 1997; Rinsland et al., 1990) ist SF₆ ein idealer Spurenstoff, um Transportprozesse von der Troposphäre in die Stratosphäre und das sogenannte "Alter" der Luft (siehe Kapitel 4) zu un-

²⁷Globales Erwärmungspotenzial: Index für das Treibhauspotenzial eines Gases bezogen auf CO₂, kombiniertes Maß für die Lebensdauer eines Gases und seine Fähigkeit die Infrarotstrahlung der Erde zu absorbieren (IPCC, 1990, S. iii-364).

tersuchen.

3.5.2 Aufbau des Simulationsexperimentes

Maiss et al. (1996) präsentierten Messungen der Bodenkonzentrationen von SF₆ an verschiedenen Stationen und leiteten mit Hilfe eines einfachen 2-Boxen-Modells den zeitlichen Verlauf der globalen Emissionsrate und der mittleren hemisphärischen Bodenkonzentrationen her. Dabei zeigte sich, dass sich die Messungen am besten mit einem quadratischen Anstieg der Bodenkonzentrationen und dementsprechend einem linearen Anstieg der globalen Emissionen beschreiben lassen. Die freien Parameter des Modells wurden dabei durch Anpassung der Lösungskurven an die Beobachtungen ermittelt. Hierbei ergab sich für die globale Emissionsrate

$$E(t) = 0.2 \cdot (t - 1966) \quad [\text{Gg/a}],$$

wobei t die Zeit in Jahren seit Christi Geburt²⁸ angibt. Wie in dem Modellvergleichsprojekt TransCom (Denning et al., 1999) werden auch hier die SF₆-Emissionen geographisch anhand des Stromverbrauchs der einzelnen Länder (Vereinte Nationen, 1994) und innerhalb der Länder anhand der Bevölkerungsdichte (Tobler, 1995) verteilt. Dieser Datensatz wurde auf das ECHAM-Gitter übertragen (Kjellström et al., 2000) und ist in Abbildung 3.12 gezeigt. Ungefähr 95% der Emissionen sind dabei auf der Nordhalbkugel zu finden.

Das Experiment wurde mit den Randbedingungen am 1. Oktober 1970 gestartet und über 25 Modelljahre gerechnet. Es wurde keine Senke für SF₆ angenommen, und die Emissionen wurden jeden Monat neu jeweils für den 15. des Monats wie oben beschrieben berechnet und während des Monats konstant gehalten. Gemäß den Berechnungen von Maiss et al. (1996) wurden hemisphärische Anfangskonzentrationen von 0.112 bzw. 0.0654 pptv für die Nord- bzw. Südhalbkugel benutzt.

3.5.3 Ergebnisse der Simulation und Diskussion

i. Stationsmessungen. Maiss et al. (1996) präsentierten Langzeitmessungen der Bodenkonzentration von SF₆ an den vier Stationen **Neumayer** (Antarktis, 71°S, 8°W, 42 m üNN), **Cape Grim** (Tasmanien, 41°S, 145°O, 94 m üNN), **Izaña**

²⁸ $t = 1992.0$ entspricht z. B. dem 1. Januar 1992, 0:00 Uhr.

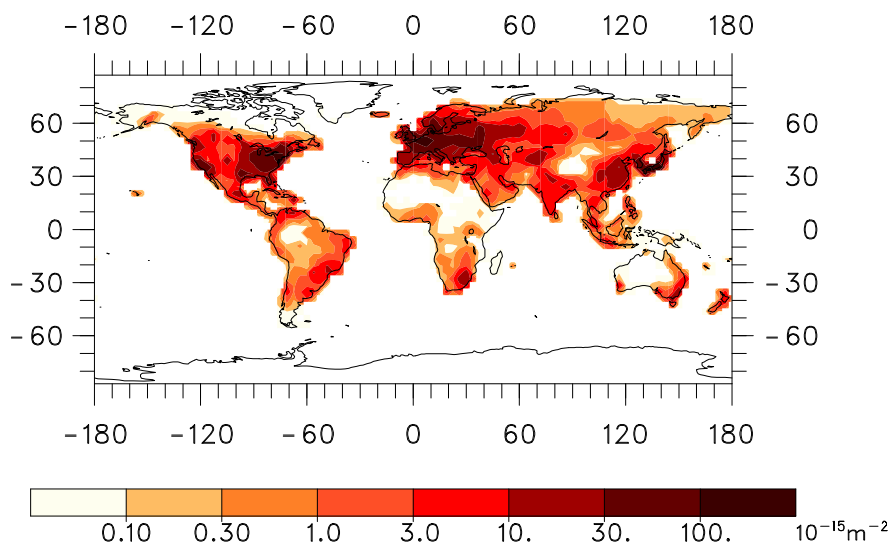


Abbildung 3.12: Geographische Verteilung der SF₆-Emissionsdichte. Die aktuelle Emission ergibt sich durch Multiplikation der Emissionsdichte mit der globalen Emissionsrate. Einheit: 10⁻¹⁵ m⁻².

(Teneriffa, Kanarische Inseln, 28°N, 16°W, 2367 m üNN) und **Alert** (Kanada, 82°N, 63°W, 187 m üNN), und gelegentliche Messungen an der Station **Fraserdale** (Kanada, 50°N, 82°W, 200 m üNN). Diese sind in Abbildung 3.13a mit den von ATTILA berechneten, global bzw. hemisphärisch gemittelten Bodenkonzentrationen verglichen. Die berechneten Konzentrationen stimmen über den gesamten Zeitraum sehr gut mit den Beobachtungen überein und sind fast identisch mit den von Maiss et al. (1996) berechneten Regressionsparabeln, die ebenfalls in Abbildung 3.13a gezeigt sind. Die gute Übereinstimmung bleibt auch erhalten, wenn die Beobachtungen mit den modellierten Zeitreihen an den jeweiligen Stationen verglichen werden. Abbildung 3.13b zeigt diese für den Zeitraum von 1990 bis 1995 an den Stationen Fraserdale, Izaña und Neumayer. Abgesehen von einer erhöhten Variabilität in den modellierten Zeitreihen werden die Beobachtungen gut wiedergegeben. Auch sind die in Fraserdale berechneten Konzentrationen konsistent höher als in Izaña, was durch die Messungen bestätigt wird.

ii. Meridionale Profile über dem Atlantik und Pazifik. Im Rahmen des Bromine Latitudinal Air-Sea Transect 1994 (BLAST 1994) Projektes wurden vom NOAA Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory zwei meridionale Profile von SF₆ an Bord eines Schiffes in hoher zeitlicher Auflösung gemessen. Die bei-

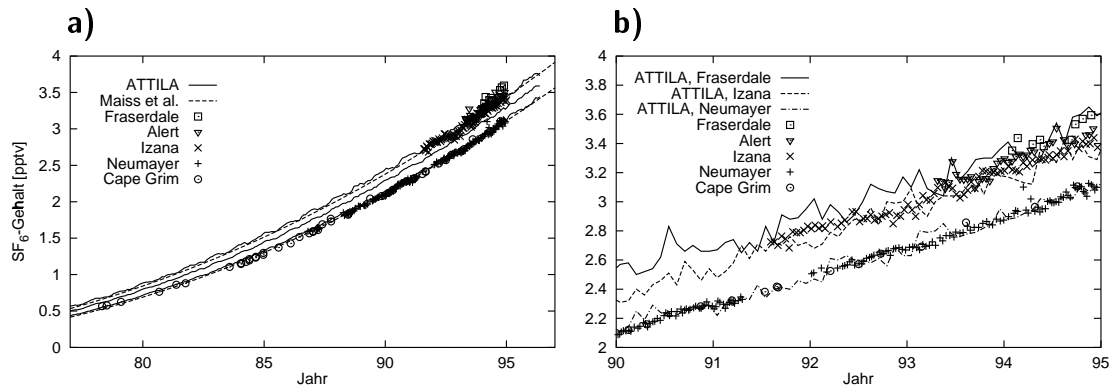


Abbildung 3.13: Modellierte und beobachtete Bodenkonzentrationen von SF₆. a) Für ATTLA sind drei Kurven gezeigt, die global (Mitte) und für die Nord- bzw. Südhalbkugel (oben bzw. unten) gemittelte Bodenkonzentration. Die beiden gestrichelten Kurven sind die von Maiss et al. (1996) berechneten Parabeln für die mittlere Bodenkonzentration auf der Nord- bzw. Südhalbkugel. b) Ausschnitt aus Abbildung a) für den Zeitraum 1990–1995, wobei die Beobachtungen mit den an den jeweiligen Stationen modellierten Zeitreihen verglichen sind. Einheit: pptv.

den Fahrten fanden im Februar und November 1994 statt und waren jeweils Nord-Süd-Durchquerungen des Ostpazifiks bzw. des Atlantiks. Dabei wurden über 1500 Messungen mit einer zeitlichen Auflösung von ungefähr einer Stunde durchgeführt. Diese sind in Geller et al. (1997) beschrieben und elektronisch verfügbar²⁹. In Abbildung 3.14 sind die gemessenen Profile mit den von ATTLA und dem semi-Lagrangeschen Schema berechneten, über den jeweiligen Monat gemittelten Profilen verglichen.

Dabei fällt auf, dass das semi-Lagrangesche Schema wie auch schon im ²²²Rn-Experiment grundsätzlich höhere Bodenkonzentrationen berechnet als ATTLA. Auch in diesem Fall stimmen die von ATTLA berechneten Werte besser mit den Messungen überein, so dass auf eine zu schwache vertikale Durchmischung im semi-Lagrangeschen Schema zu schließen ist. Ferner ist die Variabilität in ATTLA deutlich größer als im semi-Lagrangeschen Schema. Verglichen mit den Beobachtungen scheint die Variabilität in ATTLA realistischer zu sein, doch kann diese Übereinstimmung auch zufälliger Natur sein, weil sich in der untersten Modellschicht relativ wenig Luftpakete befinden (vgl. Abbildung 2.1). Bedingt durch die höheren

²⁹<ftp://ftp.cmdl.noaa.gov/noah/sf6/>

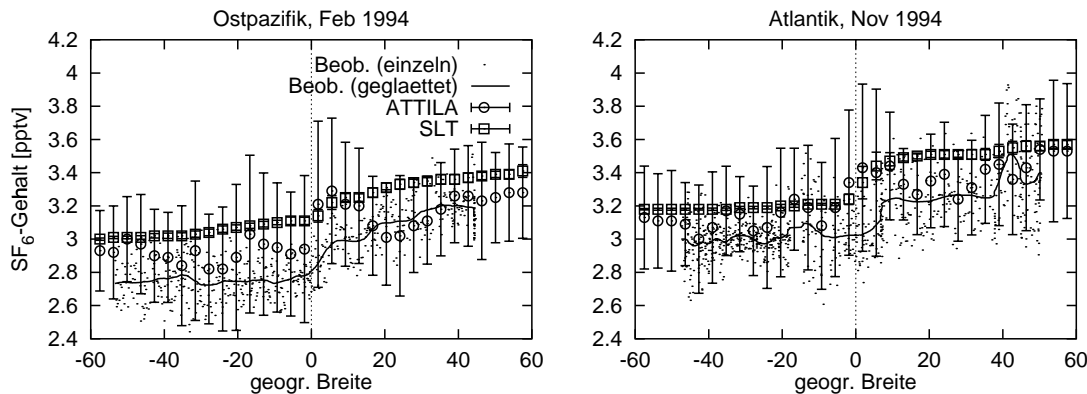


Abbildung 3.14: Beobachtete und berechnete Meridionalprofile der SF_6 -Bodenkonzentration. Die modellierten Profile sind für die Längengrade 161°W (Pazifik) und 30°W (Atlantik) gezeigt, wobei die Fehlerbalken die Standardabweichung der einzelnen (über 12 Stunden gemittelten) Werte vom Monatsmittel anzeigen. Einheit: pptv.

Schwankungen ist in ATTLILA auch der Sprung von niedrigen südhemisphärischen Konzentrationen zu höheren Werten auf der Nordhemisphäre nicht so deutlich sichtbar wie in den Messungen oder im Atlantikprofil des semi-Lagrangeschen Schemas. Im Großen und Ganzen werden jedoch die Messungen recht gut wiedergegeben.

iii. Vertikalprofil. In Abbildung 3.15 sind die von Harnisch et al. (1996) bei Ballonaufstiegen gemessenen Vertikalprofile zusammen mit den modellierten Profilen dargestellt. Die Messungen fanden dabei an den Orten **Hyderabad** (Indien, 17°N , 78°O), **Aire sur l'Adour** (Frankreich, 44°N , 1°W) und **Kiruna** (Schweden, 68°N , 21°O) in den Jahren 1987, 1992, 1993 und 1995 statt.

Wie im ^{14}C -Experiment fällt auch hier auf, dass die berechneten Profile unterhalb von ca. 15 km recht gut mit den Beobachtungen übereinstimmen, und oberhalb davon die beiden Transportschemata ein entgegengesetztes Verhalten zeigen. Während in ATTLILA der vertikale Transport in der Stratosphäre zu schnell ist und die Beobachtungen überschätzt werden, ist im semi-Lagrangeschen Schema genau das Gegenteil der Fall. Besondere Aufmerksamkeit verdienen dabei die Profile bei Kiruna: Jedes Transportschema produziert hier sowohl im Frühjahr 1992 als auch im Frühjahr 1995 jeweils die gleiche vertikale Profilform, wobei das spätere Profil lediglich bedingt durch den 3-jährigen Abstand zu höheren Werten hin verschoben ist. Die Beurteilung, welche der beiden Profilformen die Beobachtungen besser re-

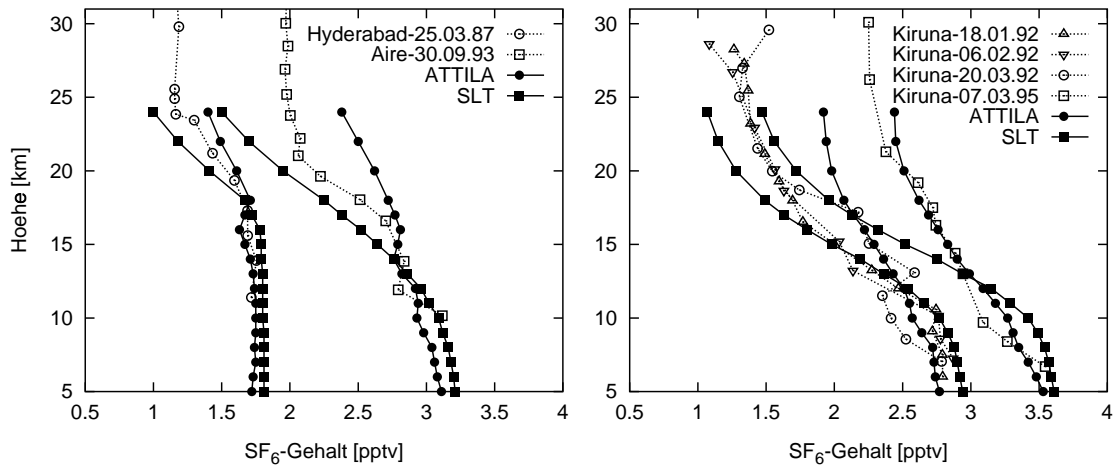


Abbildung 3.15: Beobachtete und berechnete Vertikalprofile von SF₆. Die modellierten Profile sind dabei über den jeweiligen Monat gemittelt (das Profil für Kiruna 1992 ist über die Monate Januar bis März gemittelt). Einheit: pptv.

präsentiert, ist hierbei schwierig. Die Profile im Jahr 1992 wurden im Wesentlichen innerhalb des Polarwirbels gemessen (Harnisch et al., 1996) und werden besser durch das semi-Lagrangesche Profil repräsentiert, während das Profil im Jahr 1995 außerhalb des Polarwirbels gemessen wurde und besser durch das Lagrangesche Profil repräsentiert wird. Eine Analyse der potentiellen Vorticity in ECHAM ergab, dass sich im betrachteten Zeitraum Kiruna meistens innerhalb (oder am Rand) des Polarwirbels befand (ohne Abbildung; zur Analyse des Polarwirbelrands in ECHAM siehe auch Grewe, 1997, Kap. 6), so dass in diesem Fall das semi-Lagrangesche Profil die Messungen besser wiedergibt. Allerdings scheint der Unterschied zwischen den beiden Profilen eher von grundsätzlicher Natur zu sein, da dieser auch in niedrigeren Breiten und im ¹⁴C-Experiment zu sehen ist. Hierzu ist noch zu bemerken, dass der Bereich oberhalb von 15 km lediglich durch 5 Modellschichten aufgelöst ist, wobei die obersten 3 Schichten (ca. > 19 km) als Dämpfungszone am Modellrand fungieren und der Transport dort mit unphysikalischen Effekten belastet ist. Unterhalb dieser Zone ist aber die Übereinstimmung mit den Beobachtungen gut. Eine weitergehende Untersuchung der stratosphärischen SF₆-Konzentrationen und eine Diskussion der möglichen Gründe für die Abweichungen von den Beobachtungen wird im nächsten Kapitel bei der Behandlung des Alters der Luft stattfinden.

3.6 Zusammenfassung der Experimente

In den vorangegangenen Abschnitten wurden vier Experimente mit passiven Spurenstoffen vorgestellt, nämlich ein fiktiver Spurenstoff, der in grober Näherung Stickoxide aus tropischen Blitzen repräsentieren soll, ^{222}Rn , ^{14}C aus den Atomwaffentests der 50er und 60er Jahre und SF_6 . Alle Experimente wurden mit dem Zirkulationsmodell ECHAM4 gerechnet, und zwar sowohl mit dem standardmäßig in ECHAM enthaltenen, semi-Lagrangeschen Transportschema als auch mit dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten, rein Lagrangeschen Transportschema ATTILA. Ein Vergleich dieser beiden Transportschemata ist besonders aufschlussreich, weil Unterschiede in den berechneten Spurenstoffverteilungen dann ausschließlich auf die verschiedenen numerischen Eigenschaften der beiden Schemata zurückzuführen sind, und so Informationen über die Modelldynamik gewonnen werden können. Um aber den Kontakt zur Wirklichkeit nicht zu verlieren, wurden hauptsächlich reale Spurenstoffe mit relativ gut bekannten Quellen und Senken benutzt, so dass auch eine Bewertung der Ergebnisse und der Unterschiede zwischen den beiden Transportschemata erfolgen kann.

Die vorgestellten Experimente dienen also zwei Zwecken: Erstens soll damit das völlig neu entwickelte, aus einem recht umfangreichen Programmcode (> 7000 Zeilen) bestehende Transportschema ATTILA validiert und hinsichtlich der Realitätsnähe bewertet werden. Zweitens kann durch den Vergleich zweier so unterschiedlicher Transportschemata abgeschätzt werden, ob Abweichungen von den Beobachtungen im Transportverhalten von ECHAM durch die numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas verursacht sind, oder ob die Ursachen in der Modellzirkulation selber liegen. Solche Informationen sind besonders bei der Planung von Verbesserungen und der Weiterentwicklung von ECHAM hilfreich.

Wo liegen nun die Unterschiede zwischen dem semi-Lagrangeschen Schema und ATTILA? Der wichtigste Unterschied ist zweifellos die numerische Diffusion. Das semi-Lagrangesche Schema in ECHAM erwies sich auch im Vergleich zu zahlreichen anderen Modellen als sehr diffusiv (vgl. Abschnitt 3.1), während ein rein Lagrangesches Transportschema überhaupt keine numerische Diffusion aufweist. Hier sind also auch die größten Unterschiede zu erwarten. Darüber hinaus ist in ATTILA die Grenzschichtturbulenz anders parameterisiert als im semi-Lagrangeschen Schema,

was sich hauptsächlich auf die bodennahen Konzentrationen auswirkt. Ferner muss auch die Parameterisierung der subskaligen Konvektion betrachtet werden. Diese ist zwar in beiden Schemata gleich parameterisiert, aber es ist nicht ohne weiteres möglich, eine gitterpunktsbasierte Parameterisierung auf ein trajektorienbasiertes Transportschema zu übertragen (vgl. Kapitel 2.4.5).

Das ^{222}Rn -Experiment zeigte, dass der vertikale Transport von der Grenzschicht in die freie Atmosphäre bei beiden Transportschemata gleich effektiv ist, und auch ein Vergleich der Vertikalprofile mit Beobachtungen ergab, dass beide Modelle ein realistisches Verhalten zeigen. Lediglich bei den bodennahen Konzentrationen erzeugten beide Modelle abweichende Resultate. Die Grenzschichtparameterisierung in ATTILA tendiert zu einer stärkeren Durchmischung der Grenzschicht und somit zu niedrigeren Bodenkonzentrationen als das semi-Lagrangesche Schema. Die Werte von ATTILA stimmen dabei besser mit den Beobachtungen überein. Zwar kann diese Aussage für das ^{222}Rn -Experiment nicht endgültig getroffen werden, weil möglicherweise die globale Emissionsrate von ^{222}Rn zu hoch gewählt wurde, doch findet man dieses Ergebnis auch im SF_6 -Experiment, wo die Emissionen besser bekannt sind.

Ein weiterer wichtiger Unterschied ergibt sich im meridionalen Transport in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. Sowohl das "tropische Blitze"- als auch das ^{222}Rn -Experiment zeigten, dass in ATTILA der Transport von den Tropen zu höheren Breiten weitaus schwächer ist als im semi-Lagrangeschen Schema. Zwar sind hier keine Beobachtungsdaten zum Vergleich verfügbar, doch stimmen die von ATTILA berechneten Verteilungen besser mit einer Vielzahl anderer Modelle überein, die an Modellvergleichsstudien teilnahmen (vgl. Danilin et al., 1998; van Velthoven et al., 1997; Jacob et al., 1997). Daraus ist zu schließen, dass die mittlere Meridionalzirkulation in ECHAM durchaus mit der anderer Modelle zu vergleichen ist, und der scheinbar schnellere Transport durch die numerische Diffusion des semi-Lagrangeschen Schemas hervorgerufen wird.

Ebenso verhält es sich im ^{14}C -Experiment bezüglich des Abwärtsflusses durch die subtropische Tropopause: Das semi-Lagrangesche Schema erzeugt bei 30°N einen im Vergleich zu den Beobachtungen zu starken Fluss von der Stratosphäre in die Troposphäre. ATTILA hingegen kann die anfänglich starken vertikalen Gradienten besser erhalten und zeigt vor allem unterhalb von 15 km eine gute Überein-

stimmung mit den Beobachtungen, so dass man nicht auf eine zu starke Meridionalzirkulation in ECHAM schließen kann. Dabei ist es bemerkenswert, dass eine Erhöhung des Austausches zwischen den Luftpaketen in ATTILA (die ähnlich einer erhöhten Diffusion wirkt) zwar bewirkt, dass das ausgeprägte Maximum in ca. 20 km Höhe schneller ausgeglättet wird, aber keine unrealistische Erhöhung der ^{14}C -Konzentrationen unterhalb von 15 km verursacht. Diese Erhöhung unterhalb von 15 km und somit auch der zu starke Abwärtsfluss durch die subtropische Tropopause ist also eine ganz spezifische Eigenschaft des semi-Lagrangeschen Schemas. Zusammenfassend kann gesagt werden, dass das neu entwickelte Transportschema ATTILA zufriedenstellende Resultate liefert. In vielen Fällen produziert es ähnliche Werte wie das semi-Lagrangesche Schema, jedoch konnten auch in einigen Aspekten, wie oben erläutert, Verbesserungen erzielt werden, die im Wesentlichen darauf gründen, dass ATTILA als rein Lagrangesches Transportschema numerisch nicht-diffusiv ist. Demgegenüber steht ein um den Faktor 2.5 erhöhter Rechenzeitbedarf, der den Einsatz von ATTILA nur bei einer größeren Anzahl zu transportierender Spurenstoffe rentabel macht (vgl. Abschnitt 2.4.9).

Ein zusätzlicher Vorteil von ATTILA liegt in einer höheren Flexibilität bei der Datenauswertung: Da zur Berechnung des Transportes eine Vielzahl von Trajektorien berechnet werden, liefert ATTILA mehr Informationen als ein herkömmliches Transportschema (was den erhöhten Rechenzeitbedarf plausibel macht). Im ^{14}C -Experiment wurde bereits gezeigt, wie man durch individuelle Auswertung der Trajektorien zu besseren Ergebnissen gelangen kann. Damit sind die Möglichkeiten aber noch nicht erschöpft: In den nächsten beiden Kapiteln soll nun gezeigt werden, wie man durch geeignete Analyse der von ATTILA berechneten Trajektorien Informationen zu globalen Transportvorgängen — wie z. B. zur Altersstruktur der Stratosphäre (Kapitel 4) oder zum Stratosphären-Troposphären-Austausch (Kapitel 5) — gewinnen kann, die Eulerschen bzw. semi-Lagrangeschen Transportmodellen nicht oder nur auf sehr unanschauliche Art und Weise zugänglich sind.

4 Das Alter der stratosphärischen Luft

4.1 Hintergrund

Ein beliebtes Maß zur Charakterisierung des Transportes in der Stratosphäre ist das sogenannte “Alter” der stratosphärischen Luft. Darunter versteht man die Zeit, die vergangen ist, seit ein stratosphärisches Luftpaket zum letzten Mal mit der Troposphäre in Kontakt gekommen ist. Da troposphärische Luft hauptsächlich an der tropischen Tropopause in die Stratosphäre gelangt (z. B. Holton, 1990; Brewer, 1949; oder Kapitel 5), ist man versucht, das Alter eines Luftpaketes mit der Transportzeit von der tropischen Tropopause bis zum Ort des Paketes zu identifizieren. Allerdings vermischt sich ein Luftpaket in der Stratosphäre sehr schnell mit anderen Paketen, so dass es am Zielort aus vielen verschiedenen Komponenten besteht, die alle auf verschiedenen Wegen dorthin gelangt sind und somit verschiedenes Alter haben. Es ist daher passender, von einem Altersspektrum an einem bestimmten Ort in der Stratosphäre zu sprechen, wobei dann das mittlere Alter Γ das erste Moment (der Erwartungswert) dieser Verteilung ist. Hall und Plumb (1994) legten die mathematischen Grundlagen für diese Theorie und zeigten auch, wie durch Spurenstoffmessungen das mittlere Alter berechnet werden kann. Für einen Spurenstoff, der keine Senke in der Stratosphäre besitzt und dessen Konzentration an der Tropopause über einen hinreichend langen Zeitraum linear angestiegen ist, ist nämlich das mittlere Alter $\Gamma(\vec{r})$ an einem bestimmten Ort in der Stratosphäre genau die Zeit, mit der die Spurenstoffkonzentration an diesem Ort der Konzentration an der tropischen Tropopause hinterher hinkt (vgl. Anhang E). Es gilt also

$$c(\vec{r}, t) = c_{\text{TP}}(t - \Gamma(\vec{r})),$$

wobei c die Spurenstoffkonzentration und c_{TP} die Spurenstoffkonzentration an der tropischen Tropopause bezeichnet. Da ein Spurenstoff meistens am Boden besser dokumentiert ist als an der Tropopause, benutzt man zur Berechnung des Alters meist den zeitlichen Verlauf der über eine bestimmte Region \mathcal{R} gemittelten Konzentration $c_{\mathcal{R}}$. Dazu muss man dann die Zeit $\delta\Gamma$ kennen, die ein Signal von der Region \mathcal{R} bis zur tropischen Tropopause benötigt, um aus der Beziehung

$$c(\vec{r}, t) = c_{\mathcal{R}}(t - \Gamma(\vec{r}) - \delta\Gamma)$$

Messungen der Spurenstoffkonzentration in der Stratosphäre in das mittlere Alter umzurechnen.

SF_6 erfüllt näherungsweise die oben genannten Bedingungen für einen solchen “chronologischen Tracer”. Die Konzentrationen am Boden sind gut dokumentiert (Maiss et al., 1996; vgl. Abbildung 3.13), allerdings ist der Anstieg nicht linear, sondern leicht quadratisch. Dadurch wird das mittlere Alter unterschätzt. Volk et al. (1997) zeigten unter bestimmten Annahmen über das zweite Moment des Altersspektrums, dass der dadurch gemachte Fehler erst bei Luftmassen ab einem Alter von 3 bis 4 Jahren signifikant ist und bei einem Alter von 6 Jahren ungefähr ein halbes Jahr beträgt. In Anhang E werden einige theoretische Grundlagen zum Alter der Luft zusammenfassend erläutert, und mittels Lagrangeschen Berechnungen eine Fehlerabschätzung durchgeführt. Dabei kommt man sogar auf geringere Werte als Volk et al. (1997).

Der Vorteil eines Lagrangeschen Transportschemas ist, dass man das Alter der Luft nicht über den Umweg einer Spurenstoffsimulation berechnen muss, sondern sogar das gesamte Altersspektrum — welches Messungen nicht zugänglich ist — dadurch gewinnt, indem man jedes Luftpaket mit einer “Uhr” versieht, die immer dann zurückgestellt wird, wenn das Luftpaket in der Troposphäre ist (vgl. Kida, 1983). Im Gegensatz dazu ist die Berechnung des Altersspektrums in einem Eulerschen Modell sehr unanschaulich und nur mit Hilfe der Theorie in Anhang E zu verstehen, da man hierzu einen Spurenstoff mit einer Randbedingung in Form einer δ -Funktion simulieren muss (vgl. Hall et al., 1999; Hall und Waugh, 1997). Eine solche Randbedingung impliziert ferner starke Gradienten, die besonders bei Eulerschen und semi-Lagrangeschen Transportschemata zu numerischen Fehlern führen.

In den folgenden Abschnitten wird daher das mittlere Alter sowohl indirekt (mit Hilfe von SF_6) als auch direkt (mit Hilfe von Trajektorien) berechnet und miteinander verglichen. Ferner werden Altersspektren präsentiert, und gezeigt, wie sich damit neue Informationen über den Transport in der Stratosphäre gewinnen lassen.

4.2 Das Alter der Luft aus SF_6 -Simulationen

Abbildung 4.1 zeigt das zonal gemittelte Alter der Stratosphäre für die Monate Januar, April, Juli und Oktober. Dabei wurden die von ATTILA simulierten, zo-

nal und über den jeweiligen Monat gemittelten SF_6 -Konzentrationen des Modelljahres 20 benutzt, und anhand der Regressionsparabel aus Anhang E.3.1 (Gleichung E.10) der Zeitunterschied zur global gemittelten Bodenkonzentration berechnet. Die im Folgenden präsentierten Altersangaben beziehen sich also sämtlich auf die global gemittelte Bodenkonzentration und nicht auf die Konzentration an der tropischen Tropopause. Um das stratosphärische Alter der Luft zu erhalten, muss man von den angegebenen Werten ungefähr ein halbes Jahr abziehen, weil in ATTILA die SF_6 -Konzentration bei 110 hPa in den Tropen der globalen Bodenkonzentration um ca. 0.4 Jahre hinterher hinkt.

Erwartungsgemäß ist die Luft in der unteren Stratosphäre in den Tropen am jüngsten und wird zu höheren Breiten bzw. Höhen hin älter. Gut sichtbar ist auch die Ausbildung des Polarwirbels auf der jeweiligen Winterhalbkugel, die sich — bedingt durch das Absinken SF_6 -armer Luft — in einem höheren Alter manifestiert. Speziell auf der Südhalbkugel bildet sich im Frühling ein sehr starker meridionaler Altersgradient zwischen 40°S und 50°S aus, der auf eine effektive Transportbarriere schließen lässt. Das sehr hohe Alter oberhalb von 30 hPa in polaren Breiten ist allerdings eher ein künstliches Ergebnis, das höchstwahrscheinlich auf die geringe Anzahl von Luftpaketen in dieser Region (vgl. Abbildung 2.1) und den Glättungsalgorithmus (Abschnitt 2.4.8) zurückzuführen ist (vgl. nächsten Abschnitt, Abbildung 4.2).

4.3 Das Alter der Luft aus Trajektorienrechnungen

In einem rein Lagrangeschen Transportschema bietet sich noch eine weitere Methode, das Alter der Luft zu berechnen, an, die dem Problem auf kanonische Art und Weise begegnet. Dazu versieht man jede Trajektorie mit einer Uhr, die jedesmal zurückgestellt wird, wenn sich das Luftpaket in einer bestimmten Region, wie z. B. der Grenzschicht oder der Tropopause, befindet. Die Verteilung der Transportzeiten — und somit auch das Altersspektrum — kann dann an einem Ort in der Stratosphäre direkt abgelesen werden, ohne zusätzliche Annahmen (wie z. B. ein linearer Anstieg der troposphärischen Konzentration im Falle von SF_6) treffen zu müssen.

In Abbildung 4.2 ist das auf diese Weise berechnete mittlere Alter der Luft für die vier Jahreszeiten gezeigt, wobei die Uhren jeweils in der planetaren Grenzschicht zurückgestellt wurden. Damit sind die berechneten Werte in Abbildung 4.2 und 4.1

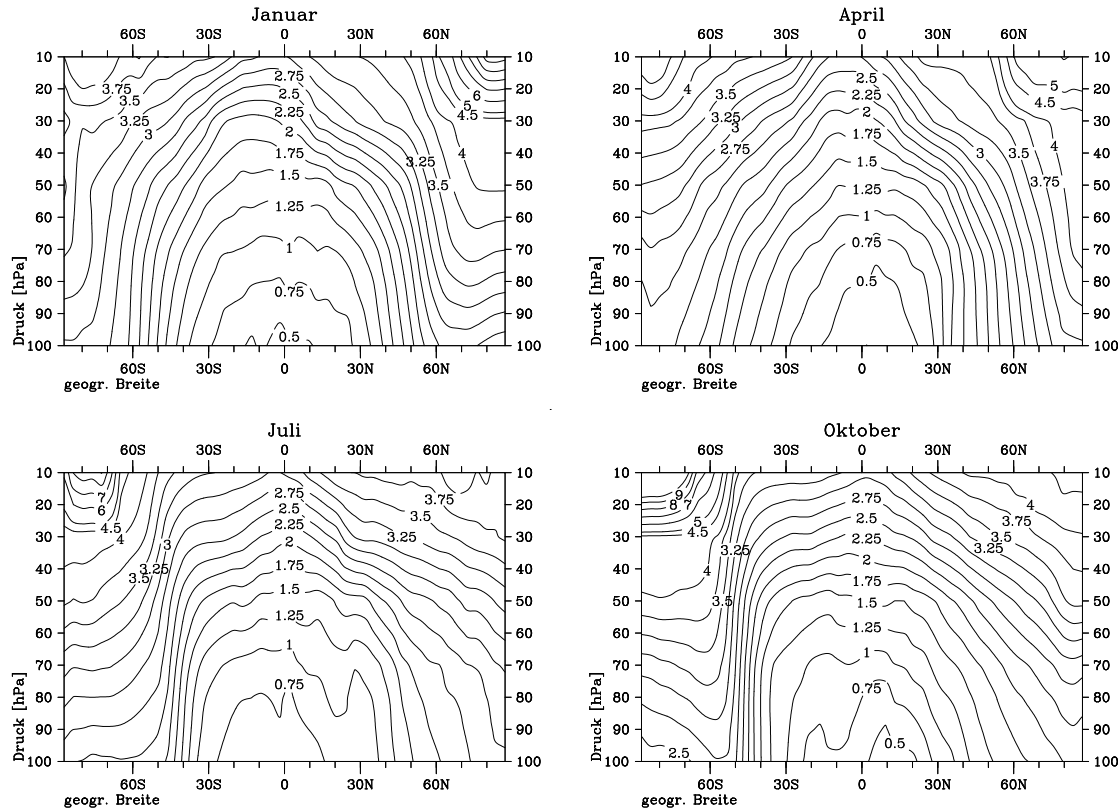


Abbildung 4.1: Das mittlere Alter der Luft (in Jahren) für die Monate Januar, April, Juli und Oktober. Der Berechnung zugrunde gelegt wurden die zonal gemittelten SF_6 -Konzentrationen des Modelljahres 20 (1989) und die Regressionsparabel der globalen Bodenkonzentration, siehe Text. Der Isolinienabstand beträgt 0.25 a (bis 4 a) bzw. 1 a (ab 5 a).

vergleichbar. Eine weitere Rechnung, bei der die Uhren jeweils an der isentropen Fläche $\theta=380\text{ K}$ zurückgestellt wurden³⁰, ergab nahezu exakt dieselben Verteilungen, nur mit um 3 Monate geringeren Werten (ohne Abbildung). Dies bedeutet, dass die Verteilung der Transportzeiten von der planetaren Grenzschicht zur tropischen Tropopause keine sehr große Variabilität aufweist und ein scharfes Maximum bei ungefähr 0.25 a besitzt³¹ (siehe Abbildung 4.3).

³⁰Diese Fläche fällt in den Tropen mit der Tropopause zusammen, und liegt in den Extratropen über der Tropopause, siehe Kapitel 5.

³¹Die berechneten Werte für das mittlere Alter sind eigentlich die Erwartungswerte einer Faltung des Altersspektrums mit der Verteilung der Transportzeiten von der Grenzschicht zur tropischen Tropopause, die sich nur dann um eine Konstante vom mittleren Alter unterscheiden, wenn letztere Verteilung eine δ -Funktion ist.

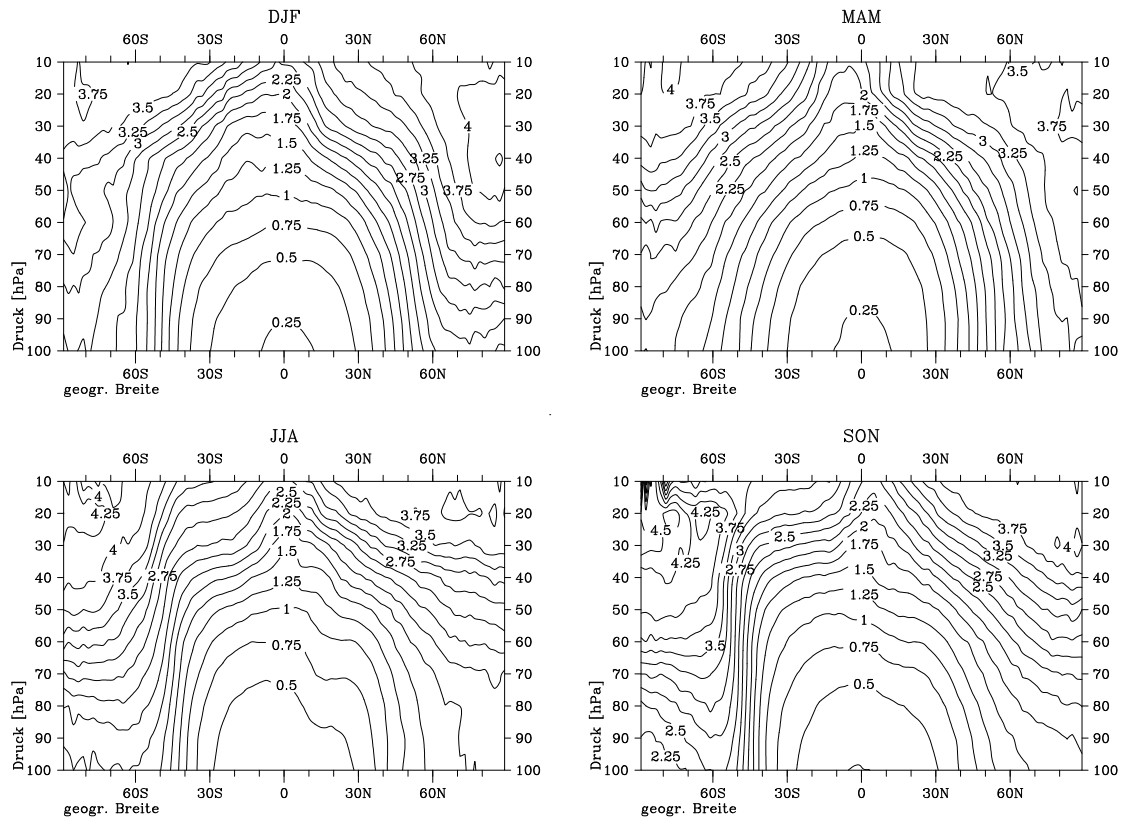


Abbildung 4.2: Mittleres Alter der Luft für die vier Jahreszeiten, berechnet aus der Transportzeit von der planetaren Grenzschicht zum jeweiligen Ort, siehe Text für Details. Einheit: a.

Da hier nicht — wie sonst in der Literatur üblich — Rückwärtstrajektorien, sondern Vorwärtstrajektorien gerechnet wurden, war eine gewisse Vorlaufzeit nötig, bis alle Uhren initialisiert waren. In diesem Falle wurden aus einem Lauf von ATTILA über 25 Jahre die letzten 10 Jahre ausgewertet, wobei die Daten auf ein Gitter mit einer vertikalen Auflösung von 10 hPa und einer meridionalen Auflösung von 2° übertragen wurden.

Die berechneten Verteilungen in Abbildung 4.2 und 4.1 sind sich weitgehend ähnlich, wobei der augenfälligste Unterschied in polaren Breiten oberhalb von 30 hPa zu finden ist. Die aus den SF_6 -Konzentrationen berechneten, sehr hohen Werte auf der jeweiligen Winterhalbkugel werden von den Trajektorienberechnungen nicht wiedergegeben, was die These erhärtet, dass dies ein künstliches Ergebnis ist (siehe oben). Desweiteren fällt auf, dass die Trajektorienmethode geringfügig niedrigere Werte liefert. Dies lässt sich dadurch erklären, dass beide Altersverteilungen

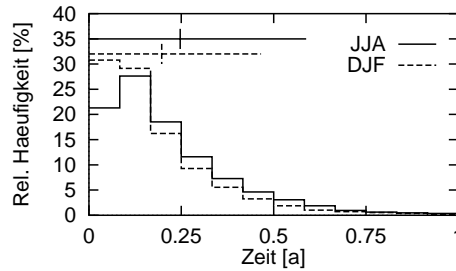


Abbildung 4.3: Verteilung der Zeit seit Verlassen der planetaren Grenzschicht (“Altersspektrum bzgl. Erdoberfläche”) am Äquator bei 100 hPa (tropische Tropopause) für den Sommer bzw. Winter. Die waagrechten und senkrechten Linien geben jeweils den Mittelwert \pm eine Standardabweichung an. Es wurden Trajektorien aus 10 Modelljahren ausgewertet, und die Transportzeiten in 1 Monat große Klassen eingeteilt.

bezüglich der Erdoberfläche berechnet wurden, und die Laufzeit $\delta\Gamma$ (vgl. Anhang E) vom Boden zur tropischen Tropopause für die beiden Methoden unterschiedlich ist: Der Unterschied im mittleren Alter ist nämlich bereits an der tropischen Tropopause sichtbar. Der Grund für den Unterschied in $\delta\Gamma$ liegt darin, dass bei der Trajektorienmethode $\delta\Gamma$ direkt die mittlere Transportzeit von der Grenzschicht zur tropischen Tropopause darstellt (Abbildung 4.3), während bei der SF_6 -Methode $\delta\Gamma$ aus den SF_6 -Konzentrationen abgeleitet wird. Die SF_6 -Konzentrationen am Boden hängen aber empfindlich von der gewählten Grenzschichtparameterisierung ab (vgl. Kapitel 3.3).

Die Trajektorienmethode liefert also das Alter, das den Modelltransport am realistischsten beschreibt, da man die Transportzeiten ohne zusätzliche Annahmen direkt ablesen kann.

4.4 Vergleich mit Beobachtungen und Diskussion

Da das mittlere Alter der Luft nicht direkt gemessen werden kann, muss es aus Messungen von geeigneten Spurenstoffen berechnet werden. Hierzu eignen sich besonders CO_2 (Bischof et al., 1985; Schmidt und Khedim, 1991) und SF_6 . Dabei werden entweder Vertikalprofile bei Ballonaufstiegen gemessen (Harnisch et al., 1996, 1998; Patra et al., 1997; Strunk et al., 2000) oder auf In-situ-Messungen vom Flugzeug aus zurückgegriffen (Elkins et al., 1996; Boering et al., 1996). Ein allgemeiner Vergleich der Messungen mit den Modellergebnissen zeigt, dass das be-

obachtete Alter generell vom Modell unterschätzt wird. In 20 km Höhe ist dabei die Übereinstimmung noch recht gut: Tabelle 4.1 zeigt die von Park et al. (1999) zusammenfassend dargestellten Beobachtungen, die aus einem Meridionalprofil in 19–20 km Höhe und mehreren Vertikalprofilen bestehen. Das Modell gibt zwar den beobachteten, schärferen meridionalen Gradienten im Frühjahr auf der Südhalbkugel (SON) wieder, allerdings befindet sich dieser im Modell zwischen 40°S und 50°S (Abbildung 4.2, SON), während er sich in den Beobachtungen zwischen 15°S und 30°S befindet. In ECHAM4 ist also die beobachtete subtropische Transportbarriere zu schwach ausgeprägt.

In größeren Höhen ist die Unterschätzung des Alters deutlicher. Vor allem im Polarwirbel werden sehr niedrige SF₆-Konzentrationen und somit ein sehr hohes Alter beobachtet, was vom Modell nicht reproduziert wird. Die niedrige Lage der obersten Modellschicht bei ungefähr 30 km in ECHAM scheint dabei eher eine untergeordnete Rolle zu spielen, da auch die Mittelatmosphären-Version von ECHAM (MA-ECHAM), dessen Oberrand bei ca. 80 km liegt, maximal ein Alter von 4.5 a produziert (Manzini und Feichter, 1999). Allerdings weisen neuere Studien darauf hin, dass das zu junge Alter in MA-ECHAM durch die Benutzung des semi-Lagrangeschen Transportschemas bedingt sein könnte. Eluszkiewicz et al. (2000) berechneten das Alter der Luft mit dem Mittelatmosphärenmodell SKY-HI unter Verwendung von verschiedenen Transportschemata, darunter das semi-Lagrangesche Schema von Williamson und Rasch (1994), das auch in ECHAM4 benutzt wird, und zwei Versionen eines rein Lagrangeschen Transportschemas. Da-

Tabelle 4.1: a) Meridionalprofil des Alters der Luft in 19–20 km Höhe, gemessen im Oktober–November 1994. b) Zusammenfassung verschiedener gemessener Vertikalprofile des Alters. Quelle: Park et al. (1999).

a)

Breite	60°S	30°S	20°S	10°S	0°	10°N	20°N	30°N	50°N
Alter [a]	3.5–5	3.5	2–3	0.5–1.5	0.5	0.5–1.25	1.5–2.5	2–3	3–3.75

b)

Höhe	Tropen	mittlere Breiten	hohe Breiten	Polarwirbel
20 km	0.5–1.5	2.5–3.5	4.0–4.5	5.5–6.5
24 km	2.25–3.25	4.5–5.0	4.5–5.0	6.5–8.5

bei stellte sich heraus, dass das berechnete Alter der Luft empfindlich von der Wahl des Transportschemas abhängt und dass mit großer Wahrscheinlichkeit die numerische Diffusion eines Transportschemas für die Berechnung eines zu jungen Alters verantwortlich gemacht werden kann. Insbesondere erzeugte das semi-Lagrangesche Schema die weitaus jüngsten und im Vergleich zu Beobachtungen unrealistischsten Altersverteilungen, während mit weniger diffusiven Transportschemata durchaus realistische Ergebnisse erzielt werden konnten. In diesem Licht betrachtet scheint es durchaus möglich zu sein, dass die Verwendung von ATTILA (oder eines anderen, weniger diffusiven Transportschemas) in MA-ECHAM ein höheres Alter produziert.

Ein weiterer möglicher Grund für das hohe beobachtete Alter ist eine Senke von SF_6 in der Mesosphäre. Die niedrigen SF_6 -Konzentrationen vor allem in der absinkenden Luft im Polarwirbel wären dann nicht durch ein hohes Alter, sondern durch den Abbau von SF_6 in der Mesosphäre zu erklären. Hall und Waugh (1998) berechneten mit zwei Mittelatmosphärenmodellen den Transport von SF_6 unter Berücksichtigung mehrerer realistischer Senken oberhalb von 60 km und zeigten, dass dadurch das Alter signifikant überschätzt wird. In Abhängigkeit von der Höhe beträgt der Fehler bei 68°S bis zu 18% in 20 km Höhe bzw. bis zu 65% in 30 km Höhe.

Diese These wird auch durch Beobachtungen gestützt. Harnisch et al. (1998) berechneten das Alter der Luft aus CO_2 - und SF_6 -Messungen, und stellten fest, dass das mittels SF_6 berechnete Alter um bis zu 3 Jahre größer ist als das CO_2 -Alter. Strunk et al. (2000) stellten hingegen eine weitgehende Konsistenz zwischen SF_6 - und CO_2 -Alter fest. Lediglich ein Messpunkt (Juni 1997, 44°N, 20 hPa) zeigte ein deutlich höheres SF_6 -Alter, wobei durch gleichzeitige H_2 -Messungen nachgewiesen werden konnte, dass es sich hierbei um mesosphärische Luft handelte, d. h. um Luft, in der SF_6 abgebaut werden konnte.

Ein Vergleich mit anderen Modellen ist nicht minder schwierig. Zwischen den einzelnen Modellen gibt es erhebliche Unterschiede sowohl in der Struktur des Alters als auch in den absoluten Werten, wie im NASA-Report "Models and Measurements Intercomparison II" (Park et al., 1999; Hall et al., 1999) deutlich wird. Den Modellen ist lediglich gemeinsam, dass sie sämtlich — verglichen mit SF_6 -Messungen — das Alter der Luft unterschätzen. Dies ist ein weiterer Hinweis auf eine signifikante Senke von SF_6 in der Mesosphäre.

Die Unsicherheiten bezüglich SF_6 und die große Variabilität zwischen den Modellen machen eine Beurteilung schwierig, so dass hier nur abschließend zu bemerken bleibt, dass ECHAM/ATTILA zumindest zu den Modellen gehört, die unter Berücksichtigung aller (CO_2 und SF_6) Messungen und möglicher Fehler ein relativ realistisches Alter der Luft liefern.

4.5 Altersspektren

Die Berechnung des Alters der Luft mittels Trajektorien liefert nicht nur das mittlere Alter der Luft, sondern auch — wie schon in Abschnitt 4.3 erwähnt — das gesamte Altersspektrum an einem Ort, welches einfach aus der Verteilung der Transportzeiten abgelesen werden kann. In Abbildung 4.4 sei deshalb exemplarisch das zonal gemittelte Altersspektrum bei 50 hPa für die vier Jahreszeiten dargestellt. Dabei wurden wiederum die Transportzeiten seit Verlassen der planetaren Grenzschicht aus 10 Modelljahren ausgewertet.

Unabhängig vom Breitengrad ist den Altersspektren gemeinsam, dass sie asymmetrisch sind, wobei der Modalwert³² kleiner als das mittlere Alter ist. In den Tropen ist dabei das Altersspektrum sehr schmal mit einem ausgeprägten Maximum bei 0.5–0.75 Jahren (Modalwert), während das mittlere Alter ca. 1 Jahr beträgt. Zu höheren Breiten hin wird das Spektrum breiter. Diese Ergebnisse stimmen qualitativ sowohl mit Eulerschen Berechnungen (siehe z.B. Hall et al., 1999; Hall und Waugh, 1997; Hall und Plumb, 1994) als auch mit früheren Lagrangeschen Berechnungen des Altersspektrums (Kida, 1983) überein.

Ferner ist auch — wie schon in Abbildung 4.2 — die Ausbildung eines starken meridionalen Gradienten im mittleren Alter auf der Winterhalbkugel sehr gut sichtbar, die mit einer Erhöhung des Alters im Polarwirbel einhergeht. Die Luft in polaren Breiten auf der Winterhalbkugel ist dabei ungefähr um 1 Jahr älter als die entsprechende Luft am Sommerpol. Bei genauerer Betrachtung der Altersstruktur im Polarwirbel erkennt man, dass das Altersspektrum dort nicht wie in den Tropen durch ein einzelnes Maximum (mit anschließendem “Schwanz”) charakterisiert ist, sondern durch mehrere ausgeprägte Maxima im Abstand von einem Jahr. Dieses

³²Das ist der Wert im Spektrum mit der größten Häufigkeit (vgl. Bosch, 1996, S.19).

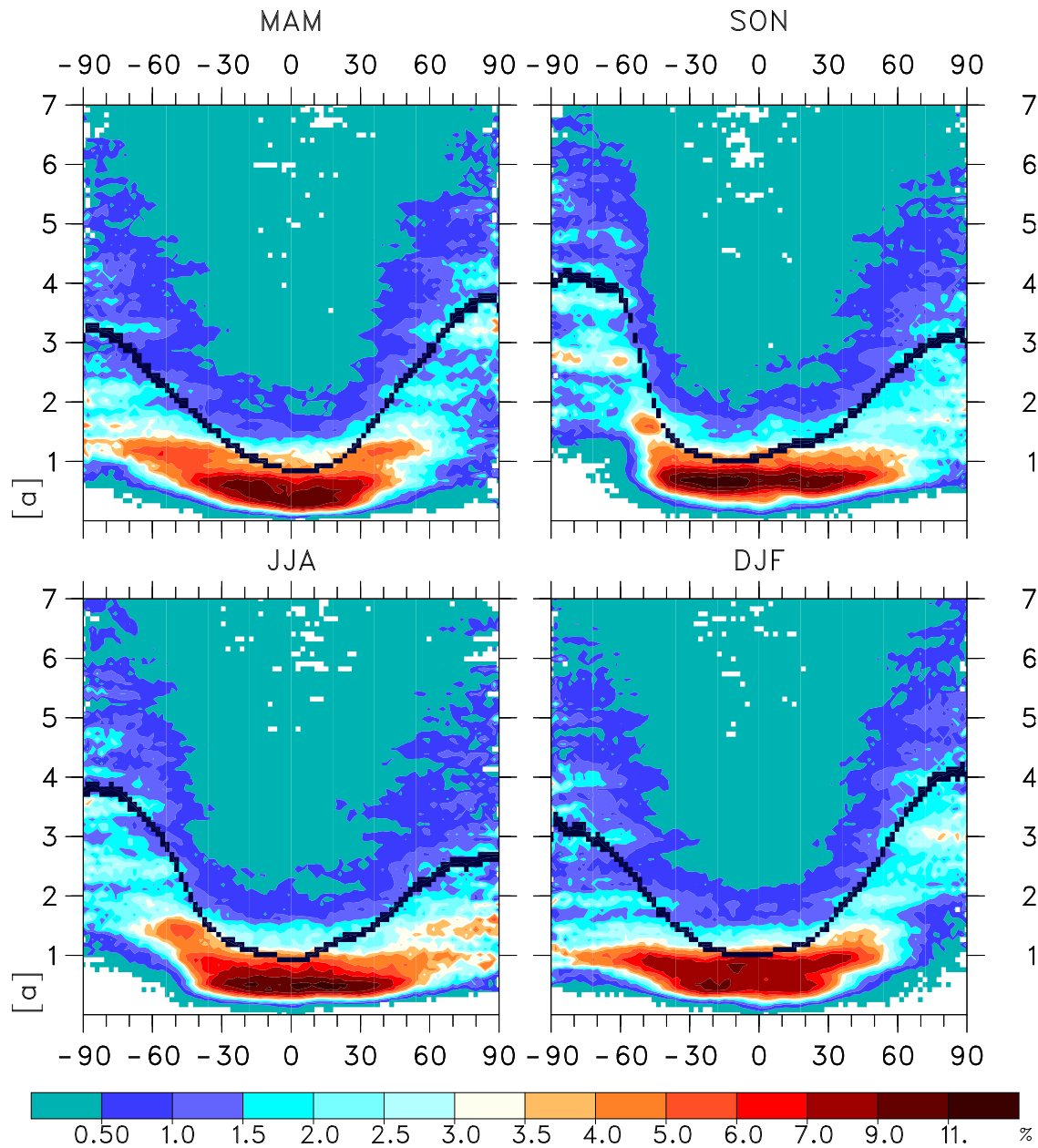


Abbildung 4.4: Zonal gemittelte Altersspektren bei 50 hPa für die vier Jahreszeiten. Dabei wurden die Transportzeiten seit Verlassen der Grenzschicht von 10 Modelljahren ausgewertet. Die y -Achse bezeichnet das Alter (bzw. die Zeit seit Verlassen der Grenzschicht) und die Farbskala gibt den Anteil der Trajektorien am jeweiligen Breitenkreis an, die das entsprechende Alter besitzen. Die schwarze Linie bezeichnet den Erwartungswert der jeweiligen Spektren und entspricht dem mittleren Alter bei 50 hPa aus Abbildung 4.2.

Phänomen soll nun im Folgenden genauer untersucht werden, wobei der deutlicheren Ausprägung wegen lediglich die Südhalbkugel betrachtet wird.

4.6 Altersstruktur und Dynamik der polaren Stratosphäre

In Abbildung 4.5 sind die von 70°S bis 90°S gemittelten Altersspektren für den Höhenbereich von 300 hPa bis 10 hPa dargestellt. Diese Abbildung enthüllt einige Eigenschaften der Polarwirbeldynamik: Zunächst ist festzustellen, dass das multimodale Altersspektrum (mit mehreren Maxima im Abstand von 1 Jahr) über einen großen Höhenbereich Bestand hat. Ferner ähneln sich die Spektren für April, Juli und Oktober recht gut, wobei sie lediglich um den entsprechenden Zeitraum verschoben sind (die Maxima befinden sich im April bei 2.25 a, 3.25 a, usw., während sie sich im Oktober bei 2.75 a, 3.75 a, usw., befinden). Dies lässt darauf schließen, dass die betrachtete Region (polwärts von 70°S) über den größten Teil des Jahres relativ isoliert ist. Der größte Austausch findet dabei im Januar bei der Umstellung von der Winter- zur Sommerzirkulation statt (vgl. Abbildung 4.8), wobei unterhalb von 40 hPa hauptsächlich 1 Jahr alte Luftmassen in die Polregion gelangen, während es oberhalb von 40 hPa hauptsächlich 2 Jahre alte Luftmassen sind (vergleiche die Abbildungen 4.5, Oktober und Januar). Danach ändern sich die Altersspektren für den Rest des Jahres nur noch geringfügig.

Um den zeitlichen Verlauf des Alters besser zu verdeutlichen, sind in Abbildung 4.6 die Altersspektren für 25 hPa und 50 hPa (70°S–90°S) gegen die Zeit geplottet. Auch hier ergibt sich ein deutliches Bild: Die Altersspektren ändern sich im Laufe des Jahres kaum, so dass die Maxima des Spektrums im Diagramm als parallele Linien im Abstand von einem Jahr erscheinen, die während eines Jahres gerade um ein Jahr steigen. Dies bedeutet, dass die betrachtete Region für den größten Teil des Jahres isoliert ist und kein Austausch stattfindet. Auch ist der Zeitraum des Jahres, in dem Austausch stattfindet, deutlich aus Abbildung 4.6 ersichtlich. Es ist nur für eine kurze Zeit, nämlich im Dezember und Januar, dass "junge" Luftmassen in polare Breiten gelangen. Diese sind bei 50 hPa ca. 1 Jahr und bei 25 hPa ca. 2 Jahre alt. Gleichzeitig verlassen ältere Luftmassen die betrachtete Region, was an der Abschwächung der Maxima bei den höheren Werten (3 Jahre und älter) zu erkennen ist. Erstaunlicherweise kehren aber im April (bei 50 hPa) Luftmassen mit

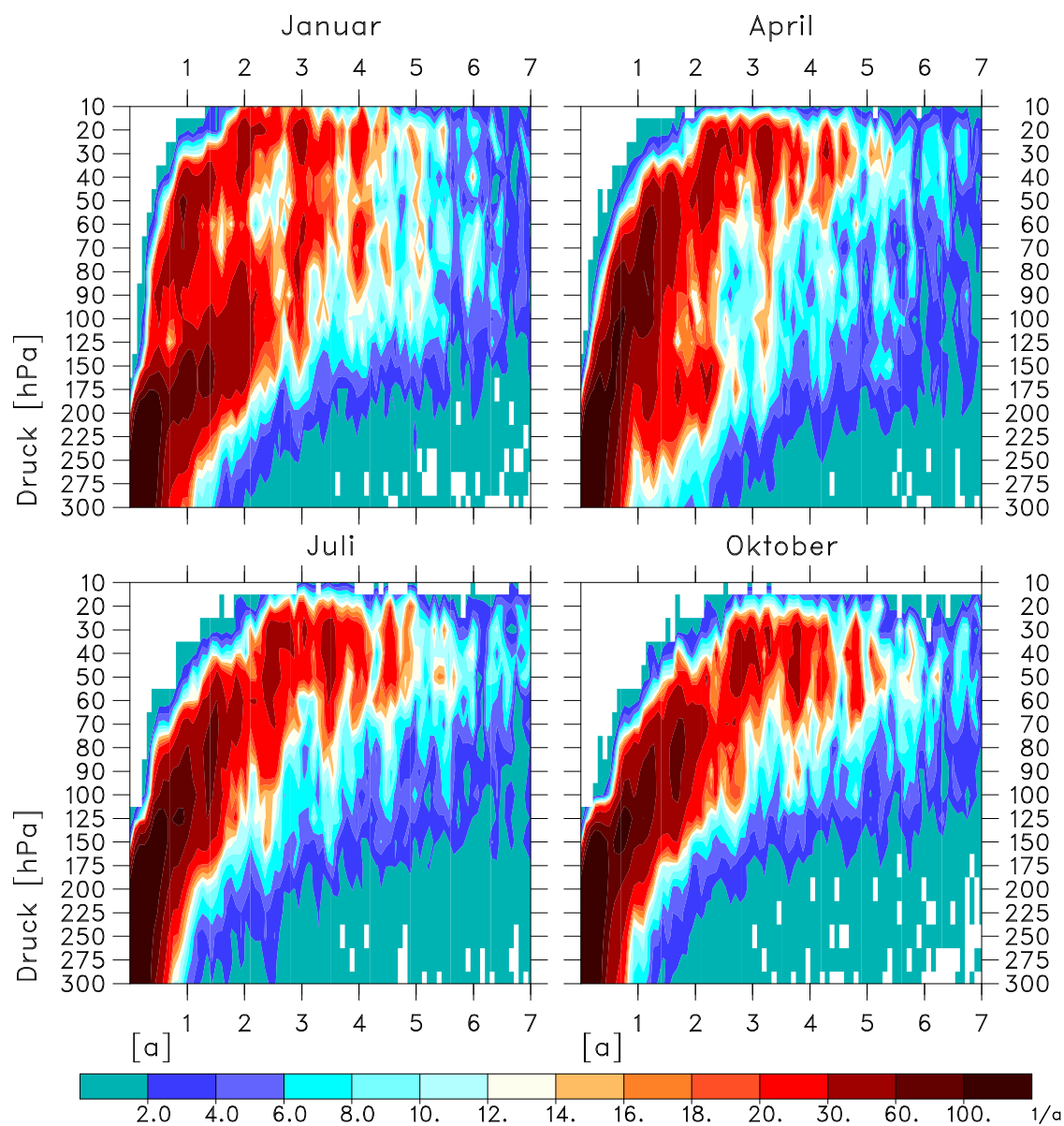


Abbildung 4.5: Von 70°S bis 90°S gemittelteltes Altersspektrum im Höhenbereich von 300 bis 10 hPa, für die Monate Januar, April, Juli, Oktober. Anders als in Abbildung 4.4 ist das Altersspektrum hier entlang der x -Achse aufgetragen und ist nicht normiert. Die Farbskala gibt die Anzahl der in einem Jahr mit dem entsprechenden Alter gefundenen Trajektorien an.

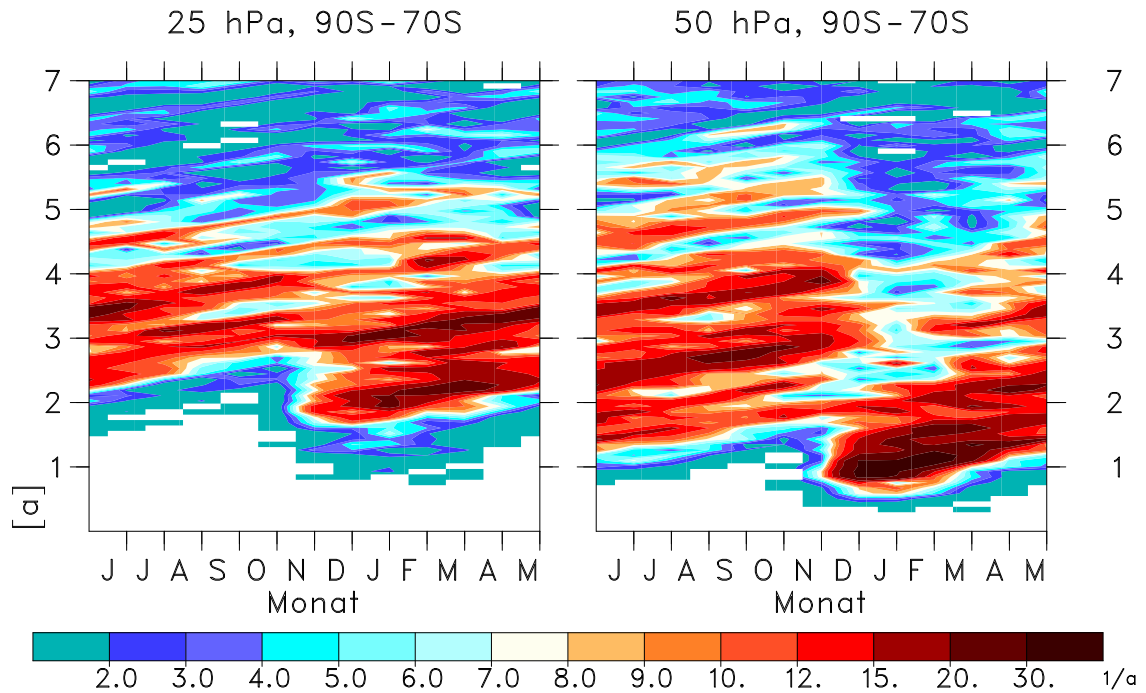


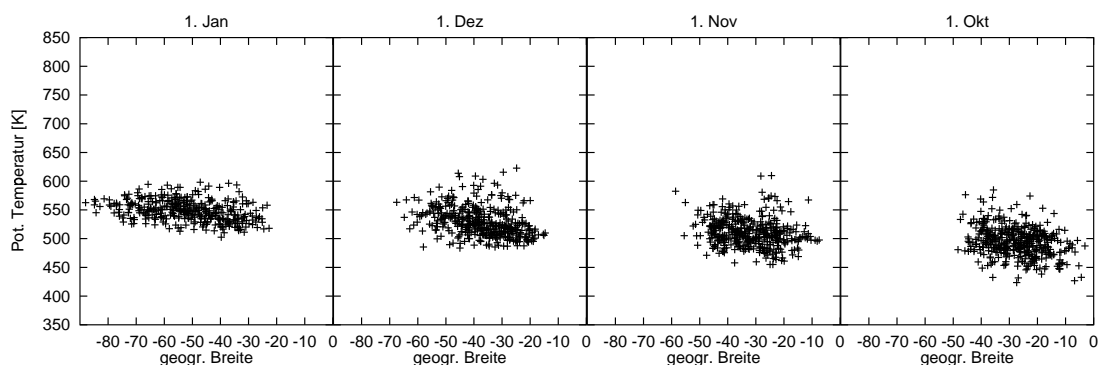
Abbildung 4.6: Zeitliche Entwicklung innerhalb eines Jahres des von 70°S bis 90°S gemittelten Altersspektrums in 25 hPa und 50 hPa Höhe. Wie in Abbildung 4.5 sind die Altersspektrums nicht normiert und geben die absolute Häufigkeit (Anzahl der in der entsprechenden Region gefundenen Trajektorien) an.

dem gleichen Alter zurück, wobei noch nicht klar ist, ob es sich hierbei um dieselben Luftmassen handelt, die 3 Monate vorher die betrachtete Region verlassen haben. Es ergeben sich also im Wesentlichen drei Fragen, die im Folgenden (für 50 hPa) mittels Trajektorienanalyse geklärt werden sollen:

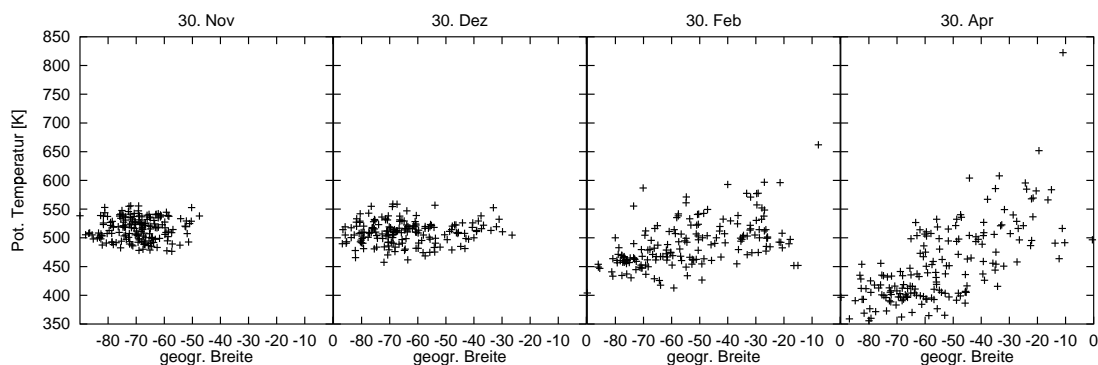
1. Woher kommen die jungen, ca. 1 Jahr alten Luftmassen im Dezember?
2. Wohin gehen die älteren Luftmassen, die im gleichen Zeitraum die betrachtete Region verlassen?
3. Woher kommen die ca. 3.25 und 4.25 Jahre alten Luftmassen im April, und handelt es sich um dieselben, die im Dezember die betrachtete Region verlassen haben?

Zur Klärung der ersten Frage sind in Abbildung 4.7a Rückwärtstrajektorien ab Januar allerer Luftpakete dargestellt, die sich im Laufe des Januar in 70°S–90°S

a) Rückwärtstrajektorien von 50 hPa, Jan, 1 a



b) Vorwärtstrajektorien von 50 hPa, Nov, 2 a 10 mo



c) Rückwärtstrajektorien von 50 hPa, Apr, 3 a 3 mo

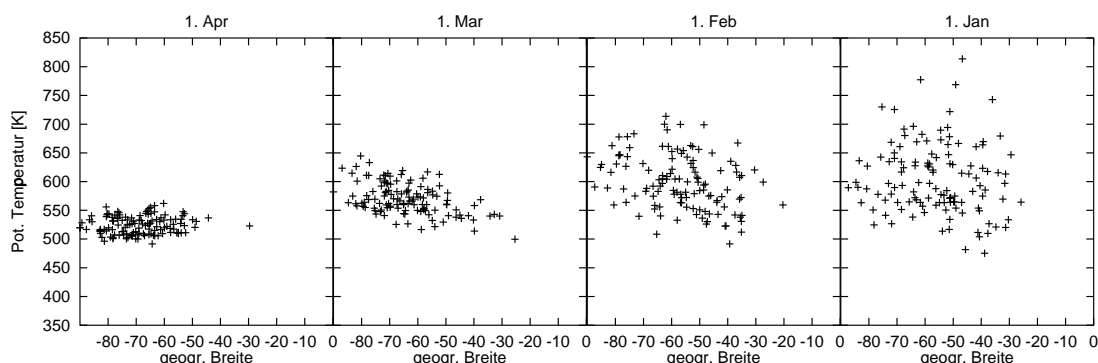


Abbildung 4.7: Trajektorien vom und zum Polarwirbel. Zur besseren Unterscheidung von diabatischen und isentropen Transportvorgängen wurde die potentielle Temperatur als vertikale Koordinate gewählt. Geplottet sind jeweils die Positionen von Luftpaketen (aus 10 Modelljahren) zu verschiedenen Zeitpunkten, die zu einem bestimmten Zeitpunkt die in der jeweiligen Überschrift angegebenen Bedingungen erfüllen. Dabei ist z. B. Abbildung c) so zu interpretieren, dass die Positionen von den Luftpaketen gezeigt sind, die sich im Laufe des April zu mindestens einem Zeitpunkt bei 70°S – 90°S und 50 hPa (± 5 hPa) befanden und dabei ein Alter (Zeit seit Verlassen der Grenzschicht) von 3 Jahren und 3 Monaten (± 2 Monate) hatten. Dabei sind die Positionen für den 1. April, 1. März, 1. Februar und 1. Januar gezeigt. Einer Höhe von 50 hPa entspricht ungefähr eine potentielle Temperatur von 500 bis 550 K.

und 50 hPa (± 5 hPa) befinden und deren Alter³³ zu diesem Zeitpunkt 1 Jahr (± 2 Monate) beträgt. Daraus ist klar ersichtlich, dass diese Luftmassen aus niedrigen Breiten stammen, die dort zunächst diabatisch aufsteigen und anschließend quasi-horizontal (isentrop) zu höheren Breiten transportiert werden. Entsprechendes gilt auch für 25 hPa, wo die jüngsten (hier 2 Jahre alten) Luftmassen auf dem gleichen Weg in polare Breiten gelangen (ohne Abbildung). Zur gleichen Zeit verlassen bei 50 hPa die älteren Luftmassen die betrachtete Region. Abbildung 4.7b zeigt, dass diese Luftmassen weniger zu niedrigen Breiten hin transportiert werden, sondern im Wesentlichen in hohen und mittleren Breiten bleiben und durch diabatisches Absinken im Spätsommer und Herbst aus der betrachteten Region entfernt werden (was Frage 2 beantwortet). Die Luftmassen gleichen Alters, die kurz darauf (im März/April) wieder in Erscheinung treten, gelangen ebenfalls hauptsächlich durch diabatisches Absinken in mittleren und hohen Breiten in die betrachtete Region (Abbildung 4.7c), und sind somit von den 3 Monate vorher in dieser Region gewesenen Luftmassen verschieden (Frage 3).

4.7 Fazit

In den letzten beiden Abschnitten wurde gezeigt, wie man durch die Berechnung von — Messungen nicht zugänglichen — Altersspektren Informationen zur Dynamik der Stratosphäre gewinnt, die weit über das hinausgehen, was sich durch die Betrachtung des mittleren Alters allein gewinnen lässt. Bezüglich der Dynamik der polaren, südhemisphärischen Stratosphäre ergibt sich dabei folgendes Bild (die Ausführungen beziehen sich wie in den vorhergehenden Abschnitten auf die Stratosphäre polwärts von 70°S): Diese Region ist während des Großteils des Jahres relativ stark von den niedrigeren Breiten isoliert. Austausch findet dabei hauptsächlich nach dem Zusammenbruch des winterlichen Polarwirbels im Dezember und Januar statt. Diese Eigenschaft ist allgemein bekannt und lässt sich auch noch aus dem Zonalwind ablesen: Mittlere und hohe Breiten sind hier von starken Westwinden in einem relativ schmalen Band geprägt, die im Südwinter am stärksten (Polarwirbel) und im Sommer am schwächsten sind, wobei sich in den obersten Modellschichten im Januar sogar eine antizyklonale Strömung durchsetzt (Abbildung 4.8). Zu diesem Zeitpunkt findet dann auch der stärkste Austausch statt.

³³Mit Alter ist hier immer die Zeit seit Verlassen der Grenzschicht gemeint.

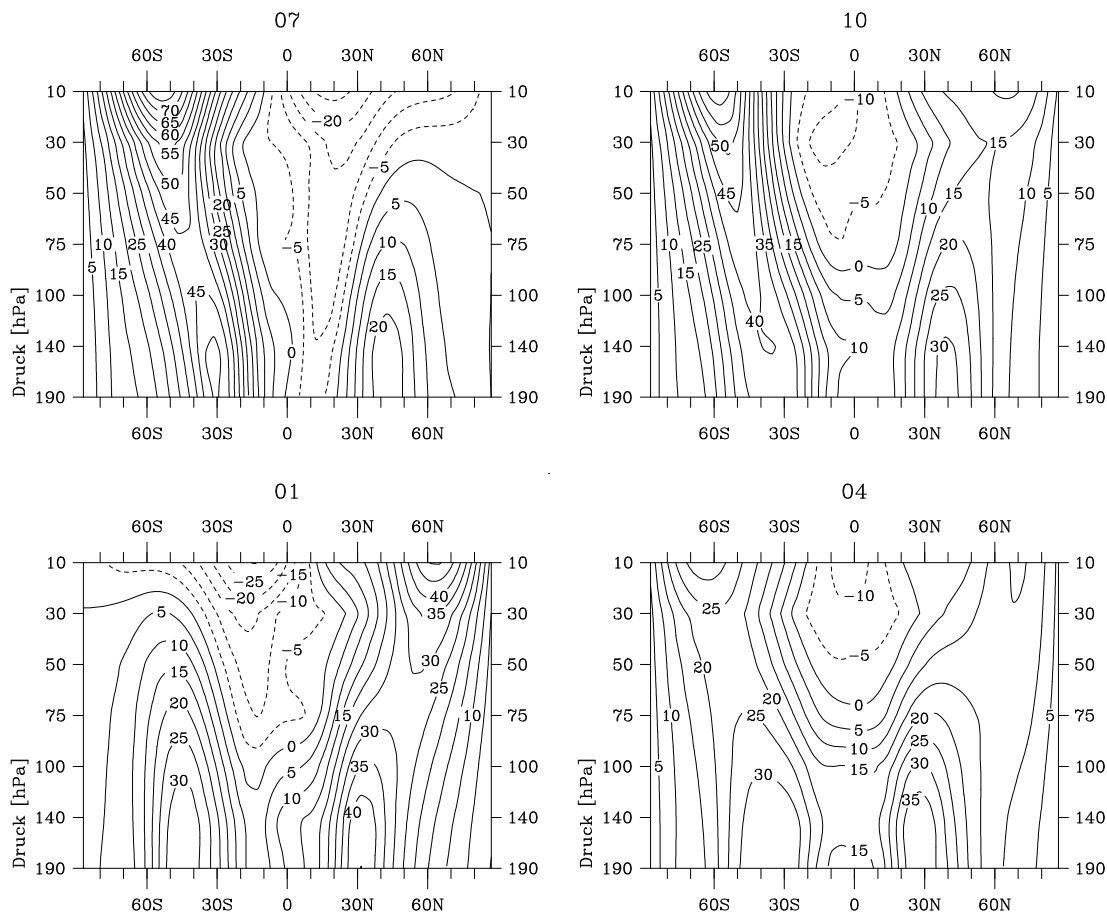


Abbildung 4.8: Zonal und über 10 Modelljahre gemittelter Zonalwind für die Monate Juli, Oktober, Januar und April. Positive Werte bedeuten Westwind. Einheit: m/s.

Was sich jedoch aus den rein dynamischen Größen nicht mehr ablesen lässt, ist die Zusammensetzung der Luftmassen im Polarwirbel. Die präsentierten Altersspektren zeigen hingegen deutlich, dass der Polarwirbel im Modell nur aus Luftmassen besteht, die zu einem ganz bestimmten Zeitpunkt von der Troposphäre in die Stratosphäre gelangt sind. Im Oktober beträgt z. B. bei 50 hPa die Zeit, die die Luftmassen seit Verlassen der Grenzschicht benötigten, 1.75, 2.75, usw. Jahre (Abbildung 4.6), was nach Abbildung 4.3 bedeutet, dass sie sich seit ca. 1.5, 2.5, usw. Jahren in der Stratosphäre befinden und diese somit im April betreten haben müssen. Das heißt also, dass im Polarwirbel bei 50 hPa hauptsächlich Luftmassen vorkommen, die im Südherbst (MAM) in die Stratosphäre gelangt sind, wenn auch dieser Eintritt in die Stratosphäre verschieden viele Jahre zurückliegt.

Da nun die jüngsten Luftmassen im Polarwirbel größtenteils aus niedrigen Breiten kommen (Abbildung 4.7) und dort das mittlere Alter mit der Höhe steigt (Abbil-

dung 4.2), würde man vermuten, dass in höheren Schichten als 50 hPa im Wesentlichen dieselben Verhältnisse herrschen wie gerade für 50 hPa beschrieben, mit dem Unterschied, dass die Luftmassen etwas älter sind bzw. ihr Eintrittstermin in die Stratosphäre etwas früher liegt. Man würde also im Polarwirbel für alle Höhen ein Altersspektrum vermuten, dass mehrere Maxima im Abstand von 1 Jahr besitzt, wobei sich diese Maxima mit zunehmender Höhe kontinuierlich zu höherem Alter hin verschieben.

Ein Blick auf die vertikale Altersstruktur im Polarwirbel (Abbildung 4.5) zeigt allerdings, dass diese Vermutung vor allem in größeren Höhen nicht richtig ist. Zwar findet man wie erwartet in allen Höhen ein multimodales Spektrum mit Maxima im Abstand von 1 Jahr, jedoch sind diese Maxima höhenkonstant und verschieben sich nicht mit zunehmender Höhe zu höherem Alter (außer vielleicht im untersten Bereich des Polarwirbels, wo eine leichte Verschiebung der Maxima zu erkennen ist). Das heißt, dass der *gesamte* Polarwirbel (zumindest ab ca. 75 hPa) zum größten Teil aus Luftmassen besteht, die im Südherbst (MAM) die Stratosphäre betreten haben. Ein mit der Höhe zunehmendes mittleres Alter entsteht dann dadurch, dass in größeren Höhen die Luftmassen, deren Eintritt in die Stratosphäre schon mehrere Jahre zurückliegt, einen größeren Anteil haben als welche, deren Eintritt noch nicht so lange zurückliegt.

Dynamisch lässt sich dieses Phänomen durch den Jahresgang der Brewer-Dobson-Zirkulation verstehen. Diese ist ja charakterisiert durch eine Aufwärtsbewegung über der Sommerhemisphäre, meridionalen Transport in Richtung Winterpol und durch Absinken in hohen Breiten der Winterhemisphäre (vgl. Dunkerton, 1978). Diese Zirkulation, die den großräumigen Transport in der gesamten Stratosphäre beeinflusst, stellt sich also zweimal im Jahr um, und somit ist zumindest qualitativ zu verstehen, dass Luftmassen, die zu verschiedenen Jahreszeiten die Stratosphäre betreten, ganz verschiedene Transportwege beschreiten, und deshalb die Wahrscheinlichkeit für ein Luftpaket, zum Polarwirbel transportiert zu werden, zu einer ganz bestimmten Jahreszeit ein ausgeprägtes Maximum besitzt.

Dieses Phänomen ist zwar auch schon für sich gesehen sehr interessant, es hat aber auch direkte Auswirkungen z. B. auf den Spurenstofftransport. Der Vorteil eines bekannten Altersspektrums liegt auch darin, dass sich damit die Verteilung eines jeden Spurenstoffes in der Stratosphäre berechnen lässt (Gleichung E.5, Seite 150), sofern

dieser in der Stratosphäre keine Senke besitzt und dessen Konzentration an der tropischen Tropopause hinlänglich bekannt ist. Handelt es sich nun um einen Spurenstoff, dessen Konzentration an der tropischen Tropopause einen Jahresgang aufweist (wie z. B. CO_2) oder sonstwie nicht monoton verläuft, so ist zu beachten, dass im Polarwirbel die jeweiligen Konzentrationen im Südherbst an der tropischen Tropopause verstärkt repräsentiert sind. Hierbei ist allerdings zu berücksichtigen, dass in den berechneten Trajektorien keine subskaligen turbulenten Windschwankungen enthalten sind (Abschnitt 2.4.3). Daher ist es durchaus möglich, dass der beschriebene Effekt in der Realität nicht beobachtet werden kann, da solche Schwankungen tendenziell eine "Verwischung" der Altersspektren verursachen. Ungeachtet dessen sind aber die obigen Berechnungen dennoch für ein Verständnis der großräumigen Zirkulation und der skaligen Modelldynamik wertvoll.

5 Stratosphären-Troposphären-Austausch

5.1 Einleitung

Für viele Fragestellungen zur Physik und Chemie der Atmosphäre ist eine genaue Kenntnis des Massenaustausches zwischen Troposphäre und Stratosphäre und der diesen Austausch verursachenden Prozesse notwendig. So finden z. B. die für die Ozonschicht relevanten chemischen Prozesse in der Stratosphäre statt, während anthropogene Spurengase wie FCKWs, die diese Prozesse maßgeblich beeinflussen, am Boden emittiert werden. Auch der Abwärtstransport von der Stratosphäre in die Troposphäre ist wichtig, z. B. bei der Simulation von radioaktiven Spurenstoffen aus stratosphärischen Atomwaffentests (z. B. Rind et al., 1999; Land, 1999; oder Kapitel 3.4) oder von Aerosolen, die bei starken Vulkanausbrüchen, wie dem des Pinatubo im Sommer 1991, in die Stratosphäre injiziert worden sind (Timmreck et al., 1999; McCormick und Veiga, 1992; Read et al., 1993; Trepte et al., 1993).

Troposphäre und Stratosphäre sind eng miteinander verknüpft, so dass man sich vielleicht nach dem Grund einer derartigen Unterscheidung fragen mag. Es gibt allerdings eine Reihe von Eigenschaften der Atmosphäre, die sich in der Tropopausenregion mehr oder weniger abrupt ändern, wie z. B. der Temperaturgradient und damit die Schichtungsstabilität (die Namensgeber der beiden Bereiche ist), die potentielle Vorticity oder das Mischungsverhältnis von Ozon und anderen Spurengasen. Auf der Änderung dieser Eigenschaften basieren denn auch die meisten Definitionen der Tropopause, die z. B. in Hoinka (1997) beschrieben sind (und worin sich auch ein lehrreicher und unterhaltsamer Rückblick zur Geschichte der Entdeckung der Stratosphäre befindet). In den nachfolgenden Abschnitten der hier vorliegenden Arbeit wird die thermische Definition der Tropopause benutzt, da sie im Gegensatz zur dynamischen, auf der potentiellen Vorticity beruhenden Definition auch in niedrigen Breiten angewandt werden kann. Nach dieser Definition liegt die Tropopause in einer Höhe, in der erstmalig, vom Boden ausgehend, der Temperaturgradient über -2 K/km steigt und zusätzlich der mittlere Temperaturgradient in einer unmittelbar darüberliegenden Schicht von bis zu 2 km Dicke nicht unter diesen Wert fällt (WMO, 1992).

Es gibt jedoch noch eine andere Aufteilung der Atmosphäre, die für manche Probleme

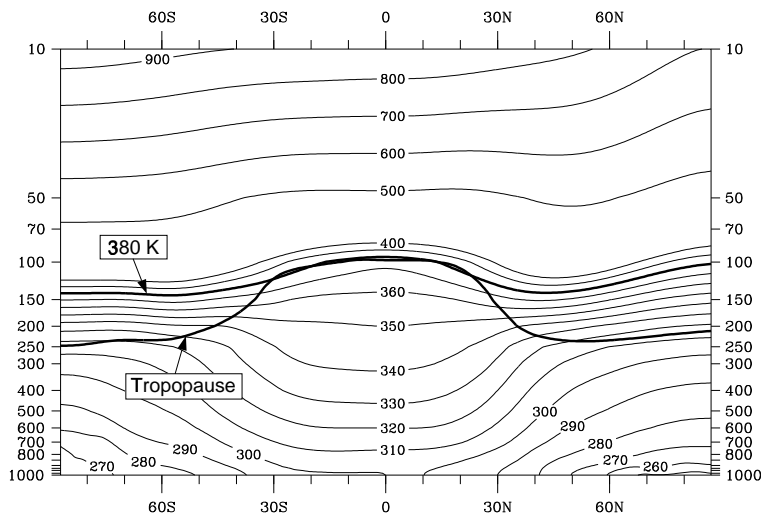


Abbildung 5.1: Zonal und über fünf Modellwinter (DJF) gemittelte potentielle Temperatur [K] und Lage der thermischen Tropopause im Modell.

me, die ursprünglich mit dem Stratosphären-Troposphären-Austausch verbunden wurden, geeigneter ist. Hoskins (1991) teilte die Atmosphäre (zurückgehend auf Shaw, 1930) in eine “Ober-”, “Mittel-” und “Unterwelt” (englisch: over-, middle-, underworld) ein und betrachtete den Austausch zwischen Ober- und Mittelwelt als den relevanten Austauschprozess für alle Vorgänge in der Stratosphäre oberhalb von ungefähr 100 hPa.

Dazu betrachte man Abbildung 5.1, in der die zonal und über fünf Modellwinter (DJF) gemittelte potentielle Temperatur und die thermische Tropopause dargestellt ist. In den Tropen fällt dabei die Tropopause ziemlich genau mit der isentropen Fläche $\theta = 380$ K zusammen, während in den Extratropen diese Fläche deutlich über der Tropopause liegt. Die Oberwelt ist nun der Bereich oberhalb von $\theta = 380$ K, und die Mittelwelt ist der Bereich darunter, in dem noch isentropen Austausch mit der Troposphäre möglich ist, also der Bereich mit einer potentiellen Temperatur von ca. 310 K bis 380 K. Der stratosphärische Teil der Mittelwelt wird dabei (extratropische) unterste Stratosphäre genannt (englisch: (extratropical) lowermost stratosphere). Die physikalische Bedeutung dieser Unterscheidung ist unmittelbar klar: Während Austausch der Troposphäre mit der untersten Stratosphäre entlang von Isentropen, also adiabatisch, möglich ist, sind beim Austausch mit der Oberwelt diabatische Prozesse notwendig, da sich die Luft quer zu den Isentropen bewegen muss. Welchen Austausch man nun als relevant ansieht, hängt vom

betrachteten Problem ab. Für die Chemie der Stratosphäre oberhalb von 380 K, also z. B. für die Ozonchemie, ist der Austausch zwischen Ober- und Mittelwelt der relevante. Abgase aus Flugzeugen hingegen werden hauptsächlich in die unterste Stratosphäre emittiert, so dass hier auch die genaue Kenntnis des extratropischen Stratosphären-Troposphären-Austausches notwendig ist (z. B. Schoeberl und Morris, 2000).

Eng verknüpft mit dem Austausch zwischen den verschiedenen Schichten der Atmosphäre ist die mittlere Meridionalzirkulation der Stratosphäre, die durch die Brewer-Dobson-Zirkulation beschrieben wird (Brewer, 1949; Dobson et al., 1946; Dobson, 1956). Diese besteht aus einem aufsteigenden Ast in den Tropen, polwärts gerichtetem Transport in der Stratosphäre und Absinken in hohen Breiten. Die Absinkbewegung ist dabei vor allem auf der Winterhalbkugel zu finden, während die Aufwärtsbewegung auch in die Sommerhalbkugel hineinreicht, so dass man in höheren Schichten einen meridionalen Transport vom Sommer- zum Winterpol antrifft (vgl. z. B. Dunkerton, 1978; Grewe, 1997; WMO, 1986).

Diese Zirkulation wird stark von sich in der Stratosphäre ausbreitenden Wellen beeinflusst. Haynes und McIntyre (1987) und Haynes et al. (1991) formulierten das sogenannte “Downward-Control-Prinzip”, das besagt, dass im stationären Grenzfall eine auf den mittleren Zonalimpuls wirkende Kraft $F(z)$ nur unterhalb der Höhe z einen Antrieb für die Meridionalzirkulation darstellt. Der Begriff “Downward-Control” ist dabei allerdings etwas missverständlich, da die von Haynes et al. (1991) gemachten Aussagen von der Wahl einer Integrationsrandbedingung abhängen (siehe Diskussion in Haynes et al. (1991); Egger (1996); Haynes et al. (1996)) und außerdem bei der Herleitung dieses Prinzips die Kraft $F(z)$ als gegeben betrachtet wird. In der Realität wird diese aber durch sich brechende Rossby- und Schwerewellen hervorgerufen, die sich von der Troposphäre nach oben ausbreiten, so dass man schon deswegen nicht wirklich von einem “Downward-Control” sprechen kann. Dennoch ist diese Theorie sehr nützlich, weil man damit aus geeigneten Beobachtungsdaten, mit denen die Kraft $F(z)$ abgeschätzt wird, die Meridionalzirkulation berechnen kann (z. B. Holton, 1990; Rosenlof und Holton, 1993) und weil man damit auch den Jahresgang der Temperatur an der tropischen Tropopause erklären kann, was z. B. durch den Jahresgang der Meeresoberflächentemperatur nicht möglich ist (Yulaeva et al., 1994; Rosenlof, 1995). Ferner macht dieses Prinzip deutlich, dass

für die großräumige Meridionalzirkulation und somit für den großräumigen Austausch zwischen Ober- und Mittelwelt nicht unmittelbar die Heizung in den Tropen, Konvektion oder andere lokale Prozesse an der Tropopause die relevanten Mechanismen sind, sondern vielmehr nichtlokale Effekte, die in den höheren Schichten in den Extratropen für Impulstransport sorgen (Holton et al., 1995). Man kann also annehmen, dass der Austausch zwischen Ober- und Mittelwelt auch von einem globalen Zirkulationsmodell gut wiedergegeben wird, sofern nur die Ausbreitung von Wellen und der Impulstransport durch brechende Wellen in der Stratosphäre (und auch Mesosphäre, vgl. Garcia und Boville, 1994) richtig erfasst ist.

Im langfristigen Mittel muss der extratropische Abwärtstransport durch die 380 K-Isentrope und durch die Tropopause gleich sein, so dass man durch die Untersuchung des Austausches durch die 380 K-Fläche auch Informationen zum Stratosphären-Troposphären-Austausch gewinnt. Allerdings gilt diese Gleichheit nicht auf kurzfristiger Zeitskala, da die Masse der extratropischen untersten Stratosphäre saisonalen Schwankungen unterliegt (Appenzeller et al., 1996) und der Austausch durch die extratropische Tropopause sehr wohl von synoptisch-skaligen Ereignissen wie Tropopausenfaltungen und abgeschlossenen Höhentiefs abhängt. Außerdem kann die Abhängigkeit der Massenflüsse von der geographischen Breite eine andere sein. So fanden z. B. Hoerling et al. (1993) einen Aufwärtsfluss durch die Tropopause in hohen Breiten, der durch einen stärkeren Abwärtsfluss in mittleren Breiten kompensiert wird, was an der 380 K-Fläche nicht beobachtet wird (Gettelman und Sobel, 2000; siehe auch Abschnitt 5.3).

Deshalb sind auch die meisten der bisherigen Arbeiten zum Stratosphären-Troposphären-Austausch phänomenologischer Natur und beschränken sich auf Fallstudien. Vaughan (1988) gibt einen umfassenden Überblick über den Stratosphären-Troposphären-Austausch in Verbindung mit Tropopausenfaltungen und abgeschlossenen Höhentiefs. Cox et al. (1995) konnten zwar eine Tropopausenfaltung mit einem globalen Zirkulationsmodell simulieren, doch gelang dies nur mit einer sehr hohen und damit rechenzeitintensiven Auflösung von T106 (ca. $1.1^\circ \times 1.1^\circ$). In Ebel et al. (1993) ist eine Zusammenfassung der synoptisch- und kleinskaligen Prozesse zu finden, die zu einem Austausch führen. Überblicke zu den zahlreichen Studien dieser Art, die nicht Gegenstand der hier vorliegenden Arbeit sind, sind z. B. in Grewe und Dameris (1996) und Land (1999) enthalten. Holton et al. (1995) geben einen

umfangreichen Überblick sowohl über die klein- als auch großskaligen Aspekte des Stratosphären-Troposphären-Austausches, einschließlich einer eingehenden Diskussion des Downward-Control-Prinzips.

Untersuchungen zum Stratosphären-Troposphären-Austausch auf globaler Skala sind dagegen weitaus weniger zahlreich. Mote et al. (1994) untersuchten den Stratosphären-Troposphären-Austausch in einem globalen Modell und fanden dabei trotz der geringen horizontalen Auflösung von T30 bis T42 eine relativ gute Repräsentation der saisonalen Variabilität der Massenflüsse durch die 100 hPa-Fläche, allerdings mit einer Überschätzung der absoluten Werte. Die Untersuchungen von Hoerling et al. (1993), Grewe und Dameris (1996), Siegmund et al. (1996) und Gettelman und Sobel (2000) hingegen benutzten keine Modelldaten, sondern auf Beobachtungen basierende Analysedaten, um den Stratosphären-Troposphären-Austausch auf globaler Skala abzuschätzen. Unter diesen Studien ist allerdings Grewe und Dameris (1996) die einzige, die die Daten für einen klimatologisch relevanten Zeitraum (von 10 Jahren, jeweils DJF) auswerteten. Gettelman und Sobel (2000) benutzten die Daten des Goddard Earth Observation System (GEOS) für einen Zeitraum von 3 Jahren (Mai 1995 bis Mai 1998), Hoerling et al. (1993) und Siegmund et al. (1996) werteten ECMWF-Daten für jeweils einen Monat (Januar 1979 bzw. Januar 1994) aus, wobei Siegmund et al. (1996) eine sehr hohe Auflösung von $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ wählten. Auf diese Studien wird zu einem späteren Zeitpunkt noch einmal zurückgegriffen werden, wenn die Ergebnisse von ATTILA diskutiert und mit anderen Arbeiten verglichen werden (Abschnitt 5.4).

Die hier vorliegende Arbeit zum Stratosphären-Troposphären-Austausch soll nun eine Lücke dahingehend schließen, dass anstatt zeitlich grob aufgelöster und unvollständiger Analysedaten zeitlich hoch aufgelöste Modelldaten (von ECHAM4) über einen klimatologisch relevanten Zeitraum von 10 Jahren ausgewertet werden. Dabei erfolgt die Diagnose des Stratosphären-Troposphären-Austausches online während des Modelllaufes, so dass eine sehr hohe zeitliche Auflösung von 30 min erreicht wird. Ferner wird diese Diagnose mit Hilfe von ATTILA, also basierend auf Trajektorienberechnungen, erfolgen. Eine solche Studie existiert nach dem Wissen des Autors bislang nicht.

Dabei hat die Lagrangesche Diagnose des Stratosphären-Troposphären-Austausches entscheidende Vorteile, wie im Folgenden kurz ausgeführt werden soll. Viele Be-

rechnungen zum Stratosphären-Troposphären-Austausch — so auch die oben vorgestellten globalen Studien und zahlreiche andere — verwenden die Formulierung nach Wei (1987), mit der Massenflüsse durch eine (fast) beliebige Fläche berechnet werden können. Diese Formel kann aus grundlegenden kinematischen Betrachtungen abgeleitet werden: Der Fluss durch die Tropopause ergibt sich aus der Bewegung der Luft relativ zur Tropopause, wobei deren Neigung gegen die Horizontale berücksichtigt wird (vgl. Anhang in Wirth und Egger, 1999). Die praktische Anwendung dieser Formel ist allerdings mit Schwierigkeiten verbunden, da sich der berechnete Fluss oft als ein kleines Residuum aus großen, sich gegenseitig auslöschenden Termen ergibt, und dieser somit empfindlich von den Eingabedaten abhängt. Gettelman und Sobel (2000) stellten bei ihren Berechnungen einen signifikanten Fehlbetrag in der Massenbilanz der Stratosphäre fest und führten dies auf die Inkonsistenz der assimilierten Daten und der Empfindlichkeit der Wei-Formel zurück. Wirth und Egger (1999) berechneten in einer Fallstudie den Stratosphären-Troposphären-Austausch über Mitteleuropa während einer dreitägigen Episode, wobei die Daten von einem numerischen Wettervorhersagemodell kamen und somit dynamisch konsistent waren. Dennoch stellten sie fest, dass die mit der Wei-Formel berechneten Flüsse sehr stark von der gewählten Vertikalkoordinate abhängen. Die Verwendung des Druckes oder der potentiellen Temperatur als vertikale Koordinate erzeugte unrealistische, stark verrauschte Felder, während die Verwendung der potentiellen Vorticity als vertikale Koordinate ein ganz anderes Muster erzeugte. Der Nachteil der letztgenannten (“Wei-PV”) Methode ist, dass zur Berechnung des Massenflusses die zeitliche Änderung der potentiellen Vorticity und somit diabatische Heizraten und nichtkonservative Kräfte (wie Reibung) bekannt sein müssen, die in Standard-Datensätzen nicht zur Verfügung stehen. Wirth und Egger (1999) analysierten den Stratosphären-Troposphären-Austausch in dieser Episode auch mit Hilfe von Trajektorien und berechneten damit ähnliche Flüsse wie mit der Wei-PV Methode. Die Diagnose des Stratosphären-Troposphären-Austausches mit Hilfe von Trajektorien umgeht also die Unzulänglichkeiten der Formulierung nach Wei und begnügt sich dabei dennoch mit meteorologischen Standardvariablen.

Ein weiterer Vorteil der Lagrangeschen Diagnose ergibt sich aus folgendem Umstand: Wie auch Holton et al. (1995) betonten, kann der Stratosphären-Troposphären-Austausch nicht als ein Austausch zwischen zwei gut durchmischten Bereichen

der Atmosphäre betrachtet werden, weil die Stratosphäre sehr stabil geschichtet ist und die vertikalen Transportzeiten dementsprechend lang sind. Deswegen kann dieser Austausch auch nicht nur durch die Angabe eines Massenflusses durch eine bestimmte Fläche charakterisiert werden, sondern es ist auch wichtig zu wissen, wie weit troposphärische Luftmassen in die Stratosphäre eindringen und wie schnell sie sich mit der Umgebungsluft vermischen. Grewe und Dameris (1996) versuchten diese Fragen zu beantworten, indem sie Massenflüsse durch höhere, “parallel” zur Tropopause liegende Flächen berechneten.³⁴ Lamarque und Hess (1994) hingegen untersuchten den Austausch während einer Tropopausen-Faltung mit einem mesoskaligen Modell und kamen durch die Analyse von Trajektorien zu dem Schluss, dass diese Episode nur die unterste Schicht der Stratosphäre beeinflusste. Dieser Ansatz, mit Hilfe von Trajektorien mehr über den Stratosphären-Troposphären-Austausch zu erfahren als nur Massenflüsse durch bestimmte Flächen wird in der hier vorliegenden Arbeit weiter verfolgt und auf die globale und langfristige Skala erweitert.

Da der Stratosphären-Troposphären-Austausch saisonalen Schwankungen unterliegt und im Nordwinter (DJF) aufgrund höherer Wellenaktivität am stärksten ist (z. B. Rosenlof, 1995), beschränken sich die im Folgenden präsentierten Berechnungen (wie die meisten anderen Studien auch) auf diese Jahreszeit, wobei die Daten in der Regel aus 10 verschiedenen Modelljahren ausgewertet wurden. Die Diagnose der Grenzflächen (thermische Tropopause und 380 K-Isentrope) und der Massenflüsse durch dieselbigen erfolgte dabei online während des Modelllaufes, und somit mit einer zeitlichen Auflösung von 30 min. Die gewählte horizontale Auflösung betrug wie üblich T30.

Dieses Kapitel ist wie folgt aufgebaut: Im nächsten Abschnitt (5.2) wird kurz auf die Parameterisierung der subskaligen Konvektion in ECHAM4 eingegangen, da diese bei der Trajektorienberechnung in ATTILA nicht berücksichtigt wird (vgl. Kapitel 2.4.5). In Abschnitt 5.3 werden die — auf Basis der von ATTILA erzeugten Trajektorien — berechneten Massenflüsse sowohl durch die Tropopause als auch durch die 380 K-Isentrope vorgestellt und anschließend (Abschnitt 5.4) mit anderen Arbeiten verglichen und diskutiert. In Abschnitt 5.5 werden die zusätz-

³⁴Es wurden extratropische Massenflüsse durch Flächen konstanter potentieller Vorticity (3, 5, 10 und 15 PVU) berechnet.

lichen Trajektorien-Informationen ausgenutzt, um die stratosphärische Zirkulation vom Lagrangeschen Standpunkt aus zu charakterisieren, die Unterschiede zwischen Stratosphären-Troposphären-Austausch und Oberwelt-Mittelwelt-Austausch zu verdeutlichen, und somit auch Einblicke in die Dynamik der extratropischen untersten Stratosphäre zu gewinnen. Abschließend werden in Abschnitt 5.6 horizontale Verteilungen der Massenflüsse durch die Tropopause und die 380 K-Isentrope präsentiert, und in Abschnitt 5.7 werden die Ergebnisse noch einmal kurz zusammengefasst dargestellt.

5.2 Einfluss der subskaligen Konvektion

Wie in Kapitel 2.4.5 beschrieben, verwendet ATTILA zwar die Informationen aus dem Konvektionsschema in ECHAM, jedoch werden damit nicht neue Positionen der Luftpakete berechnet, sondern werden diese Informationen — hauptsächlich aus technischen Gründen — dazu benutzt, um die Spurenstoffmassen in den einzelnen Paketen vertikal umzuverteilen. Für den Spurenstofftransport in ATTILA ist also die subskalige Konvektion auf die gleiche Weise berücksichtigt wie in ECHAM. Dass dieser Ansatz recht gut funktioniert, wurde in Kapitel 3.3 mittels Radon als Tracer gezeigt. Wertet man jedoch nur die Positionen der Luftpakete, also die von ATTILA berechneten Trajektorien, aus, so muss man berücksichtigen, dass in diesen keinerlei Bewegungen enthalten sind, die direkt auf subskalige Konvektion zurückgehen. Speziell bei der Diagnose des Stratosphären-Troposphären-Austausches stellt sich die Frage, ob es im Modell prinzipiell möglich ist, dass Luftpakete während eines konvektiven Ereignisses die Tropopause durchqueren, bzw. welcher Fehler durch die Nichtberücksichtigung dieser Möglichkeit verbunden ist.

Abbildung 5.2a zeigt die relative Häufigkeit des Auftretens hochreichender Konvektion³⁵ in ECHAM, gemittelt über fünf Modellwinter (DJF). In den Extratropen tritt dabei hochreichende Konvektion über weite Bereiche nur in weniger als 3% aller Zeitschritte auf. Aber auch in den Tropen bleibt die relative Häufigkeit größtenteils unter 10%, wobei der westliche Teil des Indischen Ozeans mit 15% die aktivste Region darstellt. Ausschlaggebend ist aber nicht nur die Häufigkeit konvektiver

³⁵Die Parameterisierung der Konvektion in ECHAM unterscheidet drei Arten von Konvektion (“deep”, “shallow”, “midlevel convection”), siehe dazu Tiedtke (1989).

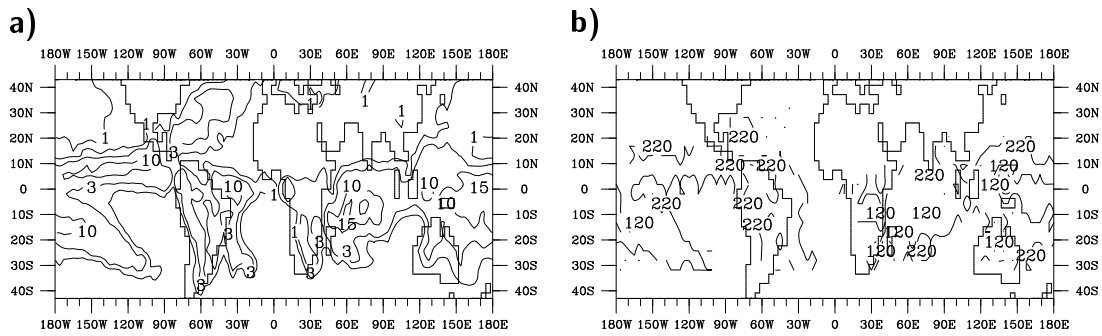


Abbildung 5.2: Zum Einfluss der subskaligen Konvektion. a) Relative Häufigkeit [%] des Auftretens hochreichender Konvektion über einem Gitterquadrat, gemittelt über fünf Modellwinter (DJF). Isolinien sind für die Werte 1, 3, 10 und 15% gezeichnet. b) Maximale konvektive Höhe [hPa], die im gleichen Zeitraum jemals erreicht wurde. Isolinien sind für die Werte 120 und 220 gezeichnet. Gitterpunkte ohne konvektives Ereignis wurden ausgeschlossen, was zum Teil unterbrochene Isolinien erzeugt.

Ereignisse, sondern auch ihre Stärke bzw. ihre Fähigkeit die Tropopause zu durchstoßen. Abbildung 5.2b zeigt daher für jeden Gitterpunkt die maximale konvektive Höhe, die innerhalb der betrachteten fünf Winter erreicht wurde. Daraus geht hervor, dass die meisten konvektiven Ereignisse deutlich unterhalb der Tropopause enden. Konvektion oberhalb von 120 hPa tritt überhaupt nur im südöstlichen Teil Afrikas und im Westpazifik auf, wobei die über die Einzelereignisse gemittelte konvektive Höhe deutlich niedriger ist und sich zwischen 200 und 300 hPa bewegt (ohne Abbildung). Eine genauere Analyse zeigt, dass während des gesamten betrachteten Zeitraumes Konvektion oberhalb von 110 hPa nur an 2 Gitterquadraten vorkommt (mit einer maximalen Höhe von 86 hPa), und dass sie an allen bis auf 160 (bzw. 500) Gitterquadraten (von insgesamt ca. 1300 zwischen 20°N und 30°S) ständig unterhalb von 160 (bzw. 210) hPa bleibt. Dieses Ergebnis stimmt übrigens auch mit anderen Modellen überein. Mote et al. (1994) untersuchten den Stratosphären-Troposphären-Austausch im Zirkulationsmodell CCM2 des NCAR und stellten fest, dass der Massentransport durch das Konvektionsschema oberhalb der mittleren Troposphäre stark abnimmt und ebenfalls kaum die Tropopause erreicht. Da bei der Diagnose des Stratosphären-Troposphären-Austausches die Trajektorien lediglich dahingehend untersucht werden, ob und wie oft sie die Tropopause durchqueren, kann man davon ausgehen, dass der direkte Effekt der subskaligen Konvek-

tion sehr wenig Einfluss auf das Ergebnis hat. Indirekt wirkt sich die Konvektion natürlich aus, weil dadurch die Vertikalstruktur der Atmosphäre verändert wird, aber dies wird ja in den Trajektorien über eine veränderte Dynamik berücksichtigt.

5.3 Berechnung von Massenflüssen

Abbildung 5.3 zeigt die von ATTILA berechneten Massenflüsse durch die Tropopause und die 380 K-Isentrope im Nordwinter. Die Flüsse durch die Tropopause sind dabei mit den von Grewe und Dameris (1996) aus ECMWF-Daten berechneten Flüssen und den von Land (1999) berechneten Flüssen im vertikal höher auflösenden Modell ECHAM4.L39(DLR) verglichen (Abbildung 5.3a). Dabei fällt auf, dass zwar sowohl die Beobachtungen³⁶ als auch die Berechnungen mit ATTILA einen Aufwärtsfluss in hohen Breiten zeigen, der z. B. auch von Hoerling et al. (1993) gesehen wurde, dass jedoch die Werte in ATTILA deutlich höher liegen. Auch ist der subtropische Abwärtsfluss in ATTILA größer als in den Beobachtungen. Auf der Südhalbkugel ist dieser etwa von der gleichen Größe wie in ECHAM4.L39(DLR), auf der Nordhalbkugel sogar noch größer. Dieses Bild ändert sich allerdings grundlegend, wenn man nur diejenigen Trajektorien berücksichtigt, die sich vor bzw. nach ihrer Durchquerung der Tropopause mindestens 12 Stunden in der Stratosphäre befinden haben. Dieses Vorgehen lässt sich damit begründen, dass sich Luftpakete, die sich nur kurze Zeit in der Stratosphäre befinden, nicht mit der Umgebungsluft mischen und somit nicht wirklich zum Stratosphären-Troposphären-Austausch beitragen. Der Wert von 12 Stunden ist etwas willkürlich gewählt³⁷, entspricht aber im Schnitt der von anderen Autoren benutzten zeitlichen Auflösung bei Analysedaten (z. B. Hoerling et al., 1993). Theoretisch dürften sich bei dieser Vorgehensweise nur die einzelnen Auf- und Abwärtsflüsse reduzieren, wobei deren Differenz, also der Netto-Massenfluss durch die Tropopause gleich bleibt. Dies ist hier allerdings nicht der Fall: Die lokalen Maxima — also der Aufwärtsfluss in hohen Breiten und der Abwärtsfluss in den Subtropen — reduzieren sich deutlich, was eine weitaus bessere

³⁶Damit sind die aus ECMWF-Analysen berechneten Flüsse gemeint, jedoch sind diese ebenfalls mit einer nicht unerheblichen Unsicherheit behaftet (vgl. Wirth und Egger, 1999; Gettelman und Sobel, 2000).

³⁷Wird dieser Wert auf 24 Stunden erhöht, so ist der nachfolgend beschriebene Effekt der Reduzierung der Maxima geringfügig stärker.

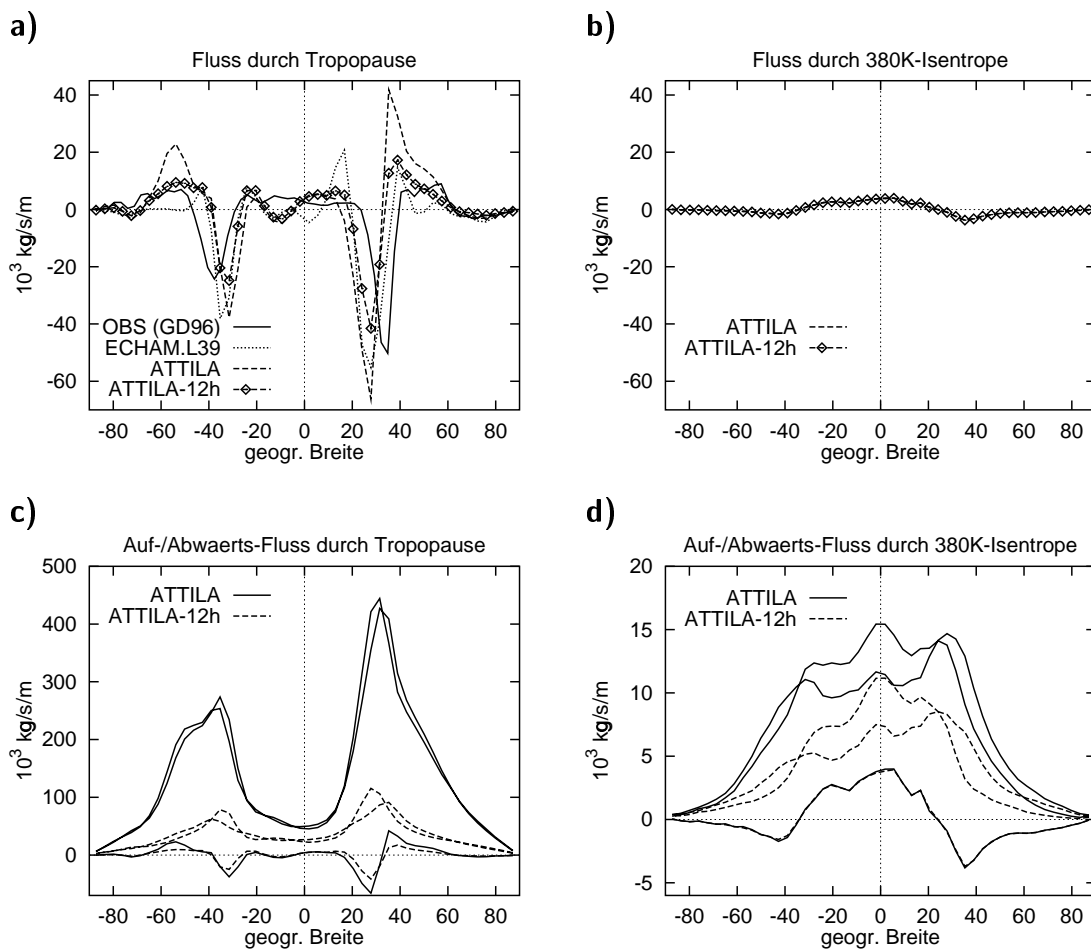
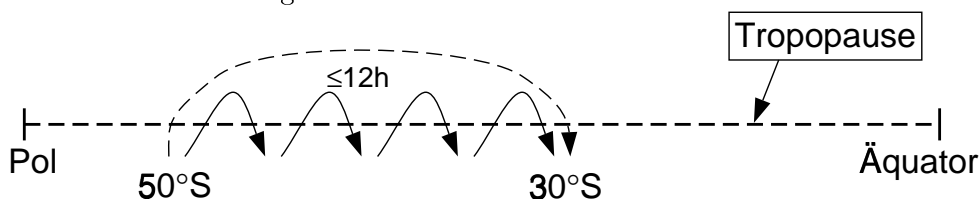


Abbildung 5.3: Zonal integrierte Massenflüsse im Nordwinter (DJF) durch die thermische Tropopause und die 380 K-Isentrope. a) Gezeigt sind die von Grewe und Dameris (1996) aus ECMWF-Daten und mit Hilfe der Wei-Formel berechneten Flüsse ("OBS (GD96)"), die von Land (1999) ebenfalls mit der Wei-Formel berechneten Flüsse im vertikal höher auflösenden Modell ECHAM4.L39(DLR), und die mit Hilfe der Trajektorien in ECHAM4/ATTILA berechneten Flüsse. Die mit ATTILA berechneten Flüsse sind über 10 Modellwinter gemittelt, wobei die mit "ATTILA-12h" bezeichnete Kurve nur diejenigen Trajektorien berücksichtigt, die sich vor bzw. nach ihrer Durchquerung der Tropopause mindestens 12 Stunden in der Stratosphäre befunden haben. Positive Werte bedeuten einen Netto-Aufwärtsfluss. b) Die von ATTILA berechneten Flüsse durch die 380 K-Isentrope, Bedeutung der beiden Kurven wie in a). c) Separate Berechnung der Auf- und Abwärtsflüsse in ATTILA, wobei hier die Absolutbeträge der jeweiligen Flüsse dargestellt sind. Die Differenz ergibt jeweils den in a) dargestellten Nettofluss, der in c) noch einmal dargestellt ist. d) Analog zu c), Flüsse durch 380 K. Man beachte die verschiedenen Skalen der Abbildungen c) und d). Einheit: 10^3 kg/s/m .

Übereinstimmung mit den Beobachtungen zur Folge hat. Das heißt also, dass diese Maxima hauptsächlich von Trajektorien verursacht werden, die die Stratosphäre in hohen Breiten betreten und kurze Zeit später äquatorwärts wieder verlassen. Dabei hat man sich dies nicht so vorzustellen, dass z. B. auf der Südhalbkugel der starke Aufwärtsfluss bei 50°S und der starke Abwärtsfluss bei 30°S durch Trajektorien verursacht werden, die bei 50°S die Stratosphäre betreten und 12 Stunden später bei 30°S wieder verlassen, da dies unrealistisch hohe Geschwindigkeiten erfordern würde. Vielmehr reicht auch schon eine allgemein äquatorwärts gerichtete Bewegung, um den gleichen Effekt zu erzielen, wie Abbildung 5.4 zeigt: Wenn die Trajektorien, die die Stratosphäre zwischen 50°S und 30°S betreten und 12 Stunden später wieder verlassen, diese vorwiegend äquatorwärts wieder verlassen, so ändert die Nichtberücksichtigung solcher Trajektorien den Nettomassenfluss innerhalb des Bereichs zwischen 50°S und 30°S nicht, während sie bei 50°S den Aufwärtsfluss und bei 30°S den Abwärtsfluss reduziert.

Als Vergleich zum Stratosphären-Troposphären-Austausch ist in Abbildung 5.3b der von ATTILA berechnete Austausch durch die 380 K-Fläche dargestellt. Die Unterschiede sind eklatant. Auffälligstes Merkmal ist dabei, dass es durch die 380 K-Fläche keinen Netto-Aufwärtsfluss in hohen Breiten gibt. Eine Aufwärtsbewegung gibt es nur in den Tropen (mit einer Verschiebung zur Sommerhalbkugel), während in den gesamten Extratropen ein Abwärtsfluss zu finden ist. Dieser ist ungefähr dort am stärksten, wo auch der Abwärtsfluss durch die Tropopause am stärksten ist, wobei allerdings die absoluten Werte um ca. eine Größenordnung niedriger sind (besser sichtbar in Abbildung 5.3d). Es liegt also die Vermutung nahe, dass der Austausch zwischen Ober- und Mittelwelt in der Tat durch die großskalige Brewer-Dobson-Zirkulation repräsentiert wird, die im Wesentlichen von der Wellenaktivität in den

Abbildung 5.4: Die gestrichelte Trajektorie ist wegen der zu großen Entfernung unrealistisch, während die Nichtberücksichtigung der durchgezogenen Trajektorien ebenfalls den beobachteten Effekt zur Folge hat.



Extratropen abhängt, während beim Stratosphären-Troposphären-Austausch auch subskalige Prozesse eine Rolle spielen. Ferner lässt sich schließen, dass die in hohen Breiten in die Stratosphäre gelangte Luft nicht die Oberwelt erreicht, sondern statt dessen in der untersten Stratosphäre äquatorwärts transportiert wird und anschließend die Stratosphäre wieder verlässt (vgl. dazu auch Juckes, 2000). Diese Aussagen werden im übernächsten Abschnitt (5.5) präzisiert werden.

Ein weiterer Unterschied zum Stratosphären-Troposphären-Austausch ist, dass der Fluss durch 380 K nahezu unverändert bleibt, wenn alle Trajektorien ignoriert werden, die sich kürzer als 12 Stunden in der Oberwelt befinden. Dies ist ein Hinweis darauf, dass dieser Fluss weitaus gleichmäßiger und vornehmlich in eine Richtung erfolgt als es durch die Tropopause der Fall ist. In Abbildung 5.3c und 5.3d sind deshalb die Auf- und Abwärtsflüsse durch die Tropopause und die 380 K-Fläche jeweils separat dargestellt. Diese Flüsse werden im Folgenden der Einfachheit halber als “Bruttomassenflüsse” bezeichnet. Ihre Differenzen ergeben wieder die schon diskutierten (Netto-)Massenflüsse durch die betrachtete Fläche, die in diesen Abbildungen ebenfalls noch einmal dargestellt sind. Daraus lässt sich erkennen, ob der betrachtete Austausch eher als ein Austausch in beiden Richtungen zu verstehen ist, oder ob dieser Austausch hauptsächlich ein Fluss in eine bestimmte Richtung ist.

Aus Abbildung 5.3c geht deutlich hervor, dass die Bruttoflüsse durch die Tropopause signifikant — in den Tropen und Subtropen um den Faktor 10 — größer sind als der resultierende Nettofluss. Dies heißt zum Einen, dass der Austausch durch die Tropopause im Wesentlichen in beiden Richtungen erfolgt, bedeutet aber auch, dass der abgeschätzte Stratosphären-Troposphären-Austausch mit einer großen Unsicherheit behaftet ist, da er sich als ein kleines Residuum aus zwei großen Termen ergibt. Betrachtet man nur diejenigen Trajektorien, die sich nach Durchquerung der Tropopause länger als 12 Stunden in der Stratosphäre befinden, so reduzieren sich die Bruttoflüsse stark, in den Tropen um den Faktor 2 und in den Subtropen sogar um den Faktor 4. Daraus geht hervor, dass vor allem der Austausch in den Subtropen (durch den “Tropopausenbruch”) von Prozessen auf kurzfristiger Zeitskala dominiert wird. Eine alternative Interpretation ist, dass bei diesem Austausch “numerisches Rauschen” eine große Rolle spielt. Gettelman und Sobel (2000) bemerkten bei ihren Berechnungen ebenfalls, dass die Bruttoflüsse stark ab-

nehmen, wenn “kleine Ereignisse”, d. h. Flüsse unterhalb eines Schwellenwertes, die als Rauschen interpretiert werden, ignoriert werden.

Betrachtet man hingegen den Fluss durch die 380 K-Isentrope (Abbildung 5.3d), so ergibt sich ein vollständig anderes Bild. Die Bruttoflüsse sind von ähnlicher Größenordnung wie der resultierende Nettofluss, und während die Nichtberücksichtigung der Trajektorien, die sich nur kurz in der Oberwelt befinden, zwar eine Reduzierung der Bruttoflüsse zur Folge hat, bleibt deren Differenz nahezu unverändert. Dieser Austausch erweist sich also als wesentlich stabiler gegenüber Prozessen auf kurzer Zeitskala (oder Rauschen) und ist auch mehr von einem Transport in eine Richtung geprägt. Dennoch ist auch hier, z. B. in den Tropen, der Abwärtsfluss — auch nach Abzug der kurzfristigen Prozesse — größer als der resultierende Netto-Aufwärtsfluss, so dass eine genauere Betrachtung und detailliertere Analyse der Trajektorien lohnend erscheint. Dies soll im übernächsten Abschnitt (5.5) geschehen, nachdem die Ergebnisse von ATTILA mit anderen Studien verglichen worden sind.

5.4 Vergleich der Ergebnisse mit anderen Studien

Wie schon in der Einleitung (5.1) erwähnt, gibt es von mehreren Autoren Berechnungen von Massenflüssen durch verschiedene Grenzflächen, die auf Beobachtungsdaten basieren. Um die Realitätsnähe der von ATTILA produzierten Ergebnisse abzuschätzen, seien nun einige dieser Berechnungen mit den entsprechenden Flüssen in ATTILA verglichen. Dabei sollte man allerdings stets berücksichtigen, dass auch auf Beobachtungsdaten basierende Berechnungen zum Teil großen Unsicherheiten unterliegen, weil zum Einen die verwendeten Daten aufgrund des Assimilationsverfahrens mit einer gewissen Ungenauigkeit behaftet sind und zum Anderen bestimmte Berechnungsmethoden wie z. B. die Formulierung nach Wei (1987) empfindlich auf diese Ungenauigkeiten reagieren (Wirth und Egger, 1999; Gettelman und Sobel, 2000).

Rosenlof und Holton (1993) und Holton (1990) berechneten unter Benutzung des “Downward-Control”-Prinzips den extratropischen (abwärts gerichteten) Massenfluss durch die 100 hPa-Fläche. Die Grenze zwischen Tropen und Extratropen wurde dabei jeweils so gewählt, dass der berechnete Fluss maximal ist, und fällt mit der geographischen Breite zusammen, wo die residuale Vertikalgeschwindigkeit

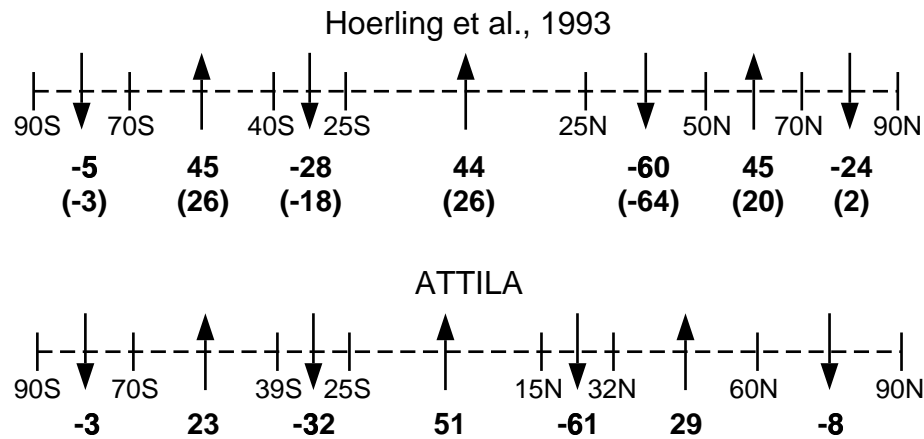


Abbildung 5.5: Massenflüsse durch die Tropopause, berechnet aus ECMWF Daten (Hoerling et al., 1993) und mit ATTILA. Die Werte unter den Pfeilen geben die über die entsprechende Region integrierten Massenflüsse durch die thermische Tropopause (bzw. durch die dynamische Tropopause, Werte in Klammern) an. Einheit: 10^{15} kg/Monat.

ihr Vorzeichen ändert. Rosenlof und Holton (1993) kamen dabei für den Nordwinter je nach verwendeter Methode auf Werte zwischen 80 und $125 \cdot 10^8$ kg/s auf der Nordhalbkugel und zwischen 30 und $35 \cdot 10^8$ kg/s auf der Südhalbkugel. Die Grenze zu den Tropen lag dabei auf der Nordhalbkugel bei ungefähr 15°N und auf der Südhalbkugel zwischen 15°S und 38°S . Der mit ATTILA berechnete Fluss durch die 100 hPa-Fläche wechselt sein Vorzeichen bei 18°N und 32°S (ohne Abbildung) und beträgt für die Region polwärts dieser Breiten $100 \cdot 10^8$ kg/s auf der Nordhalbkugel und $43 \cdot 10^8$ kg/s auf der Südhalbkugel. Diese Werte stimmen gut mit denen von Rosenlof und Holton (1993) überein.

Hoerling et al. (1993) berechneten den Fluss durch die Tropopause unter Benutzung von ECMWF Analysedaten und der Formel von Wei (1987), allerdings nur für einen Monat (Januar 1979). Dabei wurde sowohl die thermische Tropopause benutzt als auch eine dynamische Tropopause, die polwärts von 28° durch eine Fläche konstanter potentieller Vorticity (3.5 PVU) repräsentiert wird und äquatorwärts davon kontinuierlich in die thermische Tropopause (ab 13°) übergeht. Teilt man die Tropopause in Regionen mit aufwärts bzw. abwärts gerichteten Flüssen ein, so erhält man die in Abbildung 5.5 dargestellten Flüsse, die mit den entsprechenden Flüssen in ATTILA verglichen sind. Dabei fällt auf, dass die Unterteilung der Tropopause in die verschiedenen Regionen auf der Südhemisphäre in ATTILA und in Hoerling

et al. (1993) die gleiche ist, während auf der Nordhemisphäre die Region des subtropischen Abwärtsflusses in ATTILA um ca. 10° äquatorwärts verschoben ist. Dieses Merkmal ist auch in Abbildung 5.3a zu sehen. Man beachte außerdem, dass bei Hoerling et al. (1993) die Massenbilanz der Stratosphäre nicht ausgeglichen ist, was hauptsächlich auf die Ungenauigkeiten in der Wei-Formulierung zurückzuführen ist. Unter Berücksichtigung dieses Umstandes und der Tatsache, dass sich die Werte von Hoerling et al. (1993) nur auf einen Monat beziehen, ist die Übereinstimmung mit den Werten von ATTILA relativ gut. Die stärksten Abweichungen findet man bei den subpolaren Aufwärtsflüssen durch die (thermische) Tropopause, die bei Hoerling et al. (1993) fast doppelt so groß sind wie bei ATTILA. Die entsprechenden Flüsse durch die dynamische Tropopause bei Hoerling et al. (1993) hingegen sind von ungefähr der gleichen Größe wie die Flüsse von ATTILA.

Eine weitere Studie dieser Art ist die von Siegmund et al. (1996), die zwar ebenfalls den extratropischen Fluss durch die Tropopause nur für einen Monat (Januar 1994) bestimmten, aber ECMWF Daten mit einer sehr hohen horizontalen Auflösung von $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ und einer zeitlichen Auflösung von 3 Stunden benutzten. Dabei ergab sich für die Region nördlich von 28°N ein Abwärtsfluss von $35 \cdot 10^{15}$ kg/Monat, was erstaunlich gut mit den Berechnungen von Hoerling et al. (1993) ($39 \cdot 10^{15}$ kg/Monat nördlich von 25°N , siehe Abbildung 5.5) übereinstimmt. Auch der von ATTILA berechnete Fluss von $40 \cdot 10^{15}$ kg/Monat (nördlich von 15°N) passt gut zu diesen Werten. Siegmund et al. (1996) berechneten auch die Auf- und Abwärtsflüsse getrennt voneinander. Danach ergibt sich der oben genannte Nettofluss als Differenz eines Aufwärtsflusses von $1350 \cdot 10^{15}$ kg/Monat und eines Abwärtsflusses von $1385 \cdot 10^{15}$ kg/Monat, die demnach um ca. einen Faktor 40 größer sind als der Nettofluss. In ATTILA ergeben sich mit 3775 bzw. $3815 \cdot 10^{15}$ kg/Monat fast dreimal so hohe Bruttoflüsse, wobei aber zu beachten ist, dass in diesem Fall die Trajektorien mit einem Zeitschritt von 30 min ausgewertet wurden. Betrachtet man wiederum nur die Trajektorien, die sich länger als 12 Stunden in der Stratosphäre aufhalten, so reduzieren sich die Bruttoflüsse auf 862 bzw. $893 \cdot 10^{15}$ kg/Monat und liegen somit etwas unter den von Siegmund et al. (1996) berechneten Flüssen, denen eine zeitliche Auflösung von 3 Stunden zugrunde liegt.

Die obigen Betrachtungen zeigen also, dass ATTILA bei der Diagnose von Massenflüssen durch verschiedene Flächen durchaus realistische Werte erzeugt, die im

Rahmen der vorhandenen Unsicherheiten mit den Ergebnissen anderer Studien vergleichbar sind. Diese Studien beschränken sich allerdings auf die Berechnung solcher Flüsse. Im nächsten Abschnitt werden hingegen die von ATTILA gelieferten Informationen über die einzelnen Trajektorien genutzt, um den Austausch durch eine bestimmte Fläche genauer zu charakterisieren, insbesondere dahingehend, inwieweit die Flüsse durch diese Fläche wirklich zu einem Austausch beitragen oder lediglich die unmittelbare Nachbarschaft der Grenzfläche beeinflussen.

5.5 Charakterisierung der Lagrangeschen Zirkulation in der Stratosphäre

5.5.1 Trajektorienanalyse in der Oberwelt

Um also weitere Informationen zum Austausch zwischen Ober- und Mittelwelt zu gewinnen, werden jetzt nicht nur die Trajektorien gezählt, die die 380 K-Fläche überqueren, sondern es wird auch deren Schicksal in der Oberwelt weiter verfolgt. Zu diesem Zweck wird die 380 K-Fläche in drei Bereiche unterteilt, nämlich in einen tropischen Gürtel mit einem Netto-Aufwärtsfluss und in zwei extratropische Gürtel mit einem Abwärtsfluss. Die Grenzen werden dabei jeweils dort gewählt, wo der Massenfluss sein Vorzeichen wechselt. Nach Abbildung 5.3d erstreckt sich also der tropische Bereich mit Aufwärtsfluss ungefähr von 34°S bis 24°N. Anschließend werden sämtliche Trajektorien (aus fünf Modelljahren), die im Winter (DJF) die Oberwelt verlassen, in neun verschiedene Klassen eingeteilt, und zwar je nachdem, in welchem der drei Bereiche sie die Oberwelt betreten und in welchem sie diese wieder verlassen. Die Anzahl der Trajektorien in jeder Klasse ist dann ein Maß für die Stärke des Transportes von einem Bereich zu einem anderen. Darüber hinaus wird für jede Trajektorie die während ihrer Reise durch die Oberwelt maximal erreichte Höhe und die Dauer dieser Reise diagnostiziert und über die jeweilige Klasse gemittelt. Diese Vielzahl an Informationen ist in Abbildung 5.6 übersichtlich dargestellt und wird nun Schritt für Schritt besprochen.

Beginnen wir mit den Trajektorien, die die Oberwelt im gleichen Bereich betreten und wieder verlassen. Zahlenmäßig handelt es sich hierbei um die größten auftretenden Flüsse, jedoch bestehen diese zu einem großen Teil aus "Rauschen", d. h. aus Trajektorien, die sich eher "zufällig" in die Oberwelt verirren und diese nach

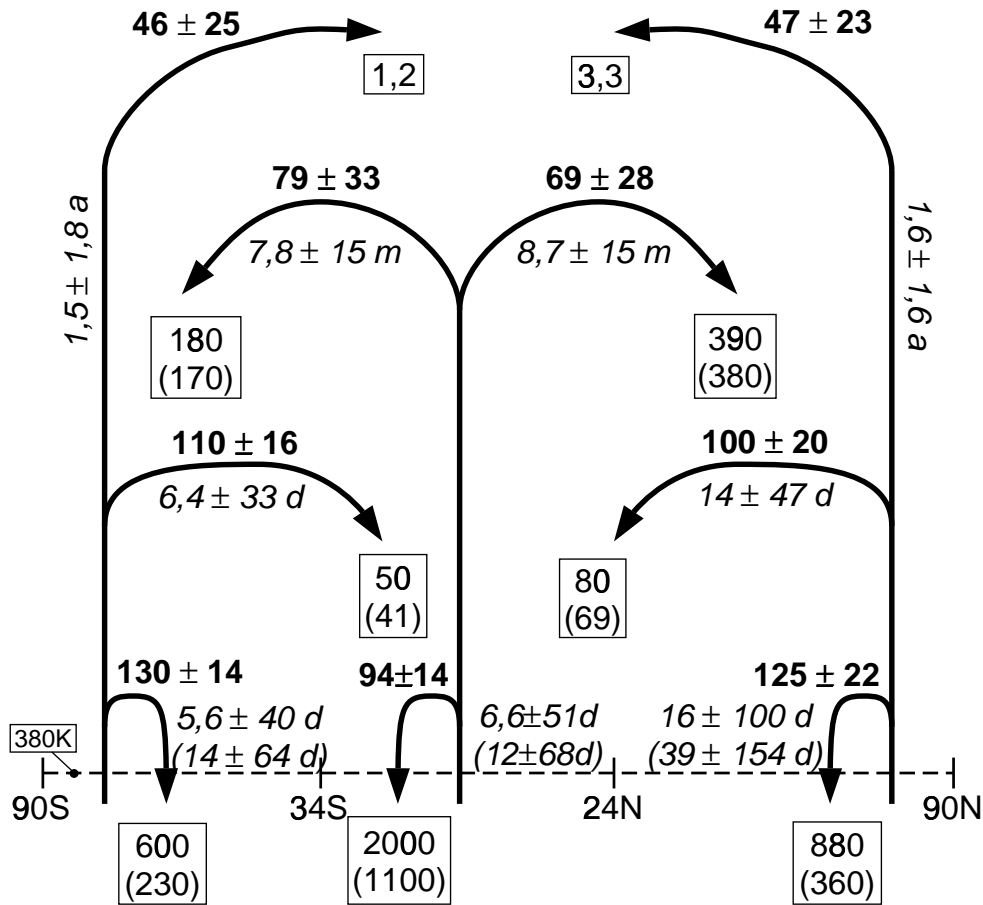


Abbildung 5.6: Trajektorienanalyse in der Oberwelt: Jeder Pfeil repräsentiert eine Klasse von Trajektorien, je nachdem, wo sie die Oberwelt betreten und wo sie diese wieder verlassen. Die Zahlen an den Pfeilen geben dabei verschiedene Informationen wieder: Umrahmte Zahlen stellen den Massenfluss [10^{15} kg/a] dar (dies ist proportional zur Anzahl der Trajektorien in der jeweiligen Klasse: 100 Trajektorien pro Jahr entsprechen ca. $2,7 \cdot 10^{15}$ kg/a). Fett gedruckte Zahlen geben die mittlere maximal erreichte Höhe [hPa], kursiv gedruckte Zahlen die mittlere "Reisedauer" ([a], [m] oder [d]) wieder (mit jeweils ± 1 Standardabweichung). Die Zahlen in Klammern sind die entsprechenden Ergebnisse, wenn alle Trajektorien ignoriert werden, die kürzer als 12 Stunden in der Oberwelt sind (fehlt diese Angabe, so hat sie sich nicht wesentlich verändert). Ausgewertet wurden alle Trajektorien aus fünf Modelljahren, die im Winter (DJF) die Oberwelt verlassen haben.

kurzer Zeit wieder verlassen. In den Tropen sind 45% aller Trajektorien kürzer als 12 Stunden in der Oberwelt, in den Extratropen sind es sogar 60%. Aber auch diejenigen Luftpakete, die länger als 12 Stunden in der Oberwelt sind, tragen nicht wesentlich zum Austausch bei: Zwar befinden sich diese im Mittel relativ lange in der Oberwelt (2 bis 6 Wochen mit einer hohen Standardabweichung von 2 bis 5 Monaten), jedoch kommen sie kaum über die unterste Schicht der Oberwelt hinaus. Die maximal erreichte Höhe liegt in den Tropen bei durchschnittlich 94 hPa und in den Extratropen bei 125 bis 130 hPa, wobei die Standardabweichung mit 14 bzw. 22 hPa erstaunlich gering ist. Geht man von einer Normalverteilung aus, so bleiben also zwei Drittel aller Trajektorien in den Tropen unterhalb von 80 hPa und in den Extratropen unterhalb von 100 hPa.³⁸ In dieser untersten Schicht der Oberwelt kann also vertikaler 2-Wege-Austausch stattfinden, oberhalb davon ist dieser kaum mehr relevant.

Von den übrigen Trajektorien gibt es einige wenige, die die Oberwelt in den Extratropen betreten und auf der anderen Halbkugel ebenfalls in den Extratropen wieder verlassen. Diese sind im Schnitt 1.5 Jahre unterwegs und erreichen maximale Höhen im Bereich von 70 bis 20 hPa, sind aber zahlenmäßig unbedeutend.

Hauptaugenmerk soll nun auf den Flüssen zwischen den Tropen und Extratropen liegen. Da gibt es zum Einen die Flüsse in die "richtige" Richtung, die aus den Trajektorien bestehen, die gemäß der Brewer-Dobson-Zirkulation die Oberwelt in den Tropen betreten und in den Extratropen wieder verlassen. Man beachte, dass der extratropische Abwärtsfluss auf der Winterhalbkugel ungefähr doppelt so groß ist wie auf der Sommerhalbkugel, was mit den Resultaten von Rosenlof und Holton (1993) und Holton (1990) übereinstimmt. Zum Anderen gibt es aber auch (zahlenmäßig kleinere) Flüsse in die umgekehrte, "falsche" Richtung, die z. B. in Abbildung 5.3d für den tropischen Abwärtsfluss und den extratropischen Aufwärtsfluss verantwortlich sind. Ein Blick auf Abbildung 5.6 offenbart allerdings sofort die grundsätzlich verschiedene Natur dieser beiden Flüsse.

Die Luftpakete, die sich im Sinn der Brewer-Dobson-Zirkulation bewegen, befinden sich im Mittel $8 (\pm 15)$ Monate in der Oberwelt und erreichen weite Teile der Ober-

³⁸Dies folgt aus der sogenannten k -Sigma-Regel (vgl. Bosch, 1996, §6.7.3.2, S. 256): Die Wahrscheinlichkeit, dass eine normalverteilte Zufallsvariable weniger als (2mal) die Standardabweichung vom Erwartungswert abweicht, beträgt ca. 68% (95%).

welt: Die maximal erreichte Höhe liegt auf der Nordhalbkugel zwischen 100 und 40 hPa, auf der Südhalbkugel zwischen 110 und 50 hPa. Diese Zirkulation sorgt also in der Tat für einen effektiven Eintrag troposphärischer Luft in weite Teile der Oberwelt. Die Flüsse in entgegengesetzter Richtung sind hingegen anderer Natur. Luftpakete, die die Oberwelt in den Extratropen betreten, verlassen diese im Schnitt bereits nach 1 bis 2 Wochen wieder und wirken sich lediglich auf eine Schicht um ca. 100 ± 20 hPa aus.

In diesem Licht betrachtet, kann man tatsächlich sagen, dass die Brewer-Dobson-Zirkulation den hauptverantwortlichen Mechanismus für den Austausch zwischen Ober- und Mittelwelt darstellt. In den Extratropen gibt es zwar Austauschprozesse von der Mittel- in die Oberwelt, jedoch sind diese nur für die unterste Schicht der Oberwelt relevant und spielen sich auf einer kürzeren Zeitskala (Tage bis Wochen) ab.

5.5.2 Trajektorienanalyse in der Stratosphäre

Eine Frage, die sich natürlicherweise stellt, ist, wie Abbildung 5.6 aussehen würde, wenn man anstatt der 380 K-Isentrope die Tropopause als Grenzfläche wählte. In diesem Fall ergibt sich ein etwas komplexeres Bild, weil die Tropopause wegen der in hohen Breiten auftretenden Aufwärtsflüsse in mehr als drei Bereiche unterteilt werden muss. Wählt man die Grenzen der einzelnen Bereiche wie oben nach den Nullstellen des Nettoflusses und wertet die Trajektorien analog aus, so ergibt sich Abbildung 5.7. Man beachte, dass die so gewählten Grenzen nicht mit denen in Abbildung 5.6 übereinstimmen, was einen Vergleich erschwert. Dennoch seien hier kurz einige Eigenschaften des Stratosphären-Troposphären-Austausches und die Unterschiede zum 380 K-Austausch besprochen.

Betrachten wir zunächst die Trajektorien, die die Stratosphäre in demselben Bereich betreten und wieder verlassen. Wie auch schon beim 380 K-Austausch ist dieser direkte vertikale Austausch auf die unterste Schicht der Stratosphäre beschränkt, in den Subtropen auf eine Schicht um 150 hPa, in höheren Breiten auf eine Schicht um 210 hPa. In den Extratropen verweilen dabei lediglich ca. 20% der Luftpakete länger als 12 Stunden in Stratosphäre. Die Stärke des Flusses ist bis zu einem Faktor 25 größer als der entsprechende Fluss durch die 380 K-Isentrope.³⁹ Berücksichtigt man

³⁹In den Extratropen der Nordhemisphäre beträgt der Faktor z. B. $(3900/28^\circ)/(360/66^\circ) \approx 25$

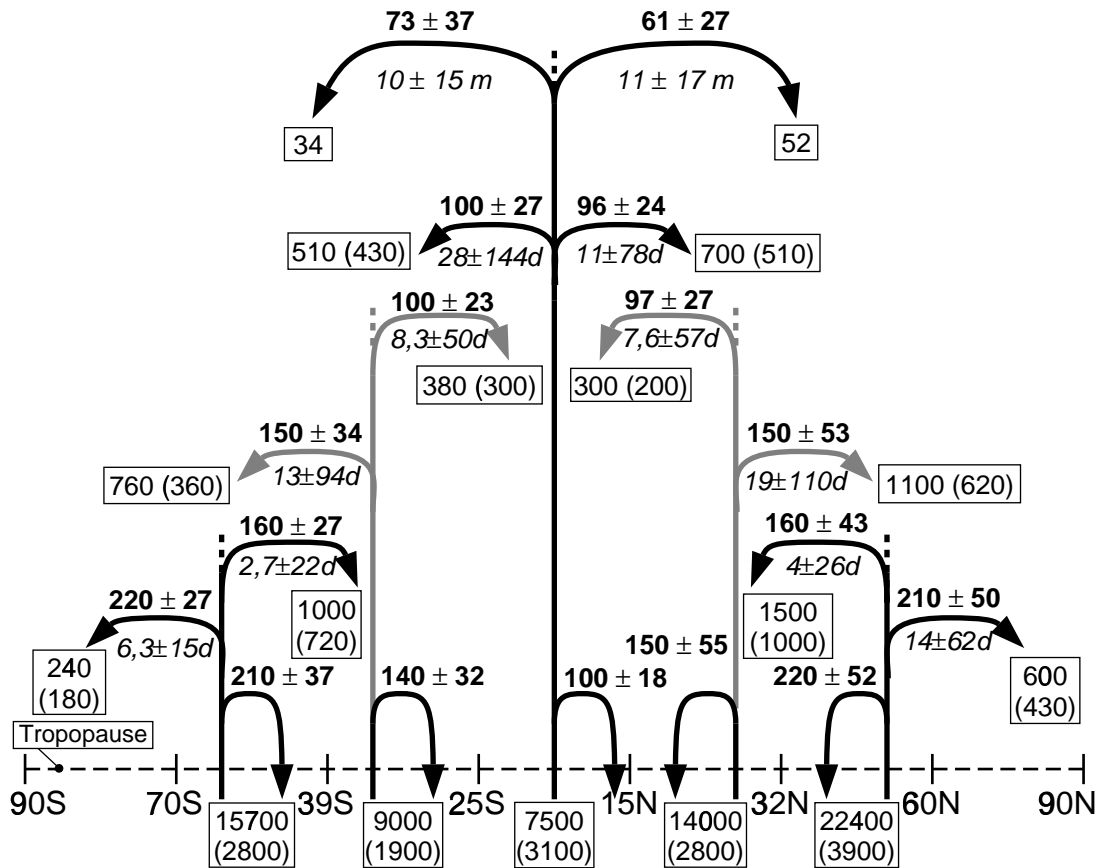


Abbildung 5.7: Wie Abbildung 5.6, mit der Tropopause anstatt der 380 K-Isentrope als Grenzfläche. Die Flüsse entgegen der Richtung des Netto-Flusses sind grau eingezeichnet. Siehe Text für Details.

die verschiedenen Dichten an der Tropopause und der 380 K-Isentrope (maximal ein Faktor 2.5), so sind die mit diesen Flüssen verbundenen Geschwindigkeiten durch die Tropopause immer noch ca. eine Größenordnung größer als durch die 380 K-Fläche. Durch die Tropopause findet also ein reger, vertikaler 2-Wege-Austausch statt, der aber in den Extratropen auf die unterste Stratosphäre beschränkt bleibt.

Betrachtet man die Flüsse von einer Region in eine benachbarte⁴⁰, so kann man diese wieder einteilen in Flüsse in die "richtige" Richtung (z. B. von den Tropen zu den Subtropen) und Flüsse in die entgegengesetzte, "falsche" Richtung, die in Abbildung 5.7 grau eingezeichnet sind. Während beim 380 K-Austausch diese beiden Flüsse von ganz verschiedener Natur sind, ist dies beim Stratosphären-Troposphären-

(für Trajektorien, die länger als 12 Stunden in der Stratosphäre sind).

⁴⁰Flüsse von einer Region in eine nicht benachbarte Region sind zahlenmäßig unbedeutend und deshalb aus Gründen der Übersichtlichkeit in Abbildung 5.7 nicht eingezeichnet.

ren-Austausch nicht so sehr der Fall: Die maximal erreichten Höhen sind jeweils für beide Flüsse nahezu identisch und auch ihre Stärke ist sich weitaus ähnlicher als beim 380 K-Austausch. Der Austausch durch die Tropopause zwischen den Tropen und Subtropen bzw. den Subtropen und hohen Breiten ist also im Wesentlichen — ganz im Gegensatz zum 380 K-Austausch — als ein Austausch in beiden Richtungen zu sehen.

Aus Abbildung 5.7 lässt sich auch ablesen, wie die starken Abwärtsflüsse in den Subtropen zusammengesetzt sind. Diese bestehen nämlich nur zu einem Drittel aus tropischer Luft und zu zwei Drittel aus Luft aus hohen Breiten. Während die tropische Luft in der Größenordnung von Wochen in der Stratosphäre unterwegs war, verweilt die Luft aus hohen Breiten nur in der Größenordnung von Tagen in der Stratosphäre. Für die extratropische unterste Stratosphäre spielt also eine Zirkulation auf kurzer Zeitskala, die aus troposphärischer Luft aus hohen Breiten und äquatorwärts gerichtetem Transport besteht, eine wichtige Rolle.

5.6 Horizontale Verteilung der Massenflüsse

Im Mittelpunkt der bisherigen Betrachtungen standen bis jetzt zonal integrierte Flüsse, und es wurde suggeriert, dass sich die dynamischen Verhältnisse auf einem Breitenkreis nicht wesentlich ändern. Zum Abschluss dieses Kapitels soll nun untersucht werden, inwieweit diese Annahme zutrifft und welche Unterschiede sich diesbezüglich zwischen dem Fluss durch die Tropopause und dem Fluss durch die 380 K-Isentrope ergeben.

Dazu sind in Abbildung 5.8 die horizontalen Verteilungen dieser Flüsse, jeweils gemittelt über 10 Nordwinter, dargestellt. Ebenfalls dargestellt ist — wie auch schon bei den zonal integrierten Flüssen — die Aufspaltung dieser Flüsse in einen Aufwärts- und einen Abwärtsfluss.

Man erkennt sofort die Eigenschaften, die auch schon in Abschnitt 5.3 besprochen wurden: In mittleren und hohen Breiten gibt es einen Netto-Aufwärtsfluss durch die Tropopause, während durch die 380 K-Fläche in den gesamten Extratropen ein Abwärtsfluss dominiert. Diese Flüsse sind jeweils auf der Nordhalbkugel stärker als auf der Südhalbkugel. Ferner sind die Bruttoflüsse durch die Tropopause um ca. eine Größenordnung größer als der resultierende Nettofluss, während die Brut-

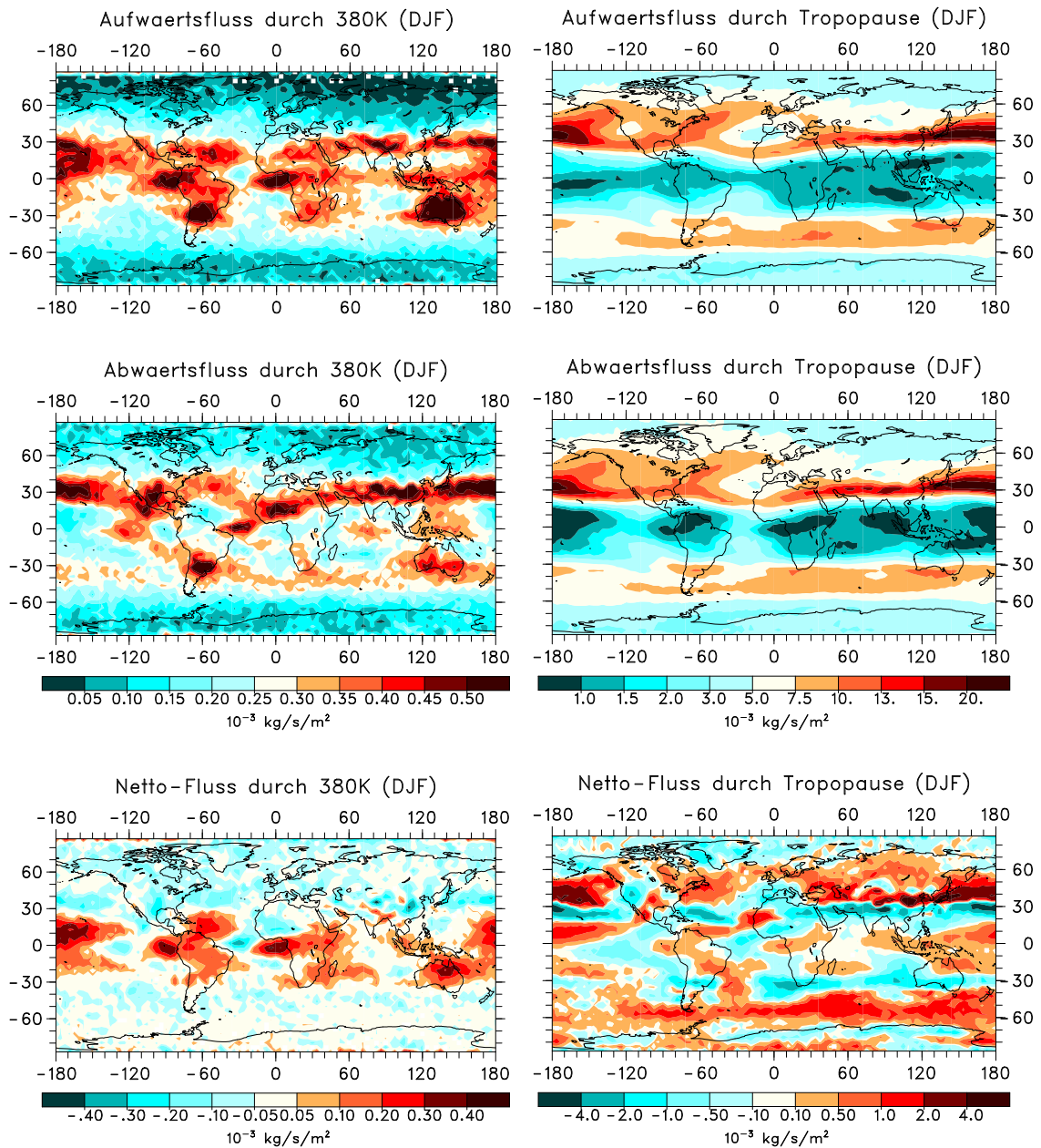


Abbildung 5.8: Horizontale Verteilung der Massenflüsse durch die 380 K-Isentrope (links) und die thermische Tropopause (rechts), gemittelt über 10 Nordwinter (DJF). Der Nettofluss (unten; positive Werte bedeuten Netto-Aufwärtsfluss) ergibt sich als Differenz der Aufwärts- und Abwärtsflüsse (oben bzw. Mitte; jeweils positiv mit gleicher Farbskala dargestellt). Man beachte die verschiedenen Skalen der einzelnen Abbildungen. Einheit: 10^{-3} kg/s/m^2 .

toflüsse durch die 380 K-Fläche ungefähr von der gleichen Größenordnung wie der Nettofluss sind. Im letzten Abschnitt wurde daher näher untersucht, wie man den Austausch durch die Tropopause als 2-Wege-Austausch, den Austausch durch die 380 K-Fläche hingegen als 1-Wege-Austausch sehen kann. Eine genauere Betrachtung von Abbildung 5.8 liefert dafür neue Hinweise: Die horizontalen Verteilungen der Bruttoflüsse durch die Tropopause ähneln sich sehr stark, so dass man die Verteilung des resultierenden Nettoflusses nicht mit bloßem Auge erkennen kann. Im Gegensatz dazu sind die Verteilungen der Bruttoflüsse durch die 380 K-Fläche vor allem in den Tropen "komplementär" zueinander, d. h. Regionen mit einem Netto-Aufwärtsfluss korrespondieren mit einem starken (Brutto-)Aufwärtsfluss und einem schwachen Abwärtsfluss, und umgekehrt. Dies ist besonders gut entlang des Äquators zu sehen, wo sich Gebiete mit einem Netto-Aufwärtsfluss bzw. Abwärtsfluss abwechseln und die entsprechenden Muster auch bei den Bruttoflüssen zu sehen sind.

Damit stößt man auch schon auf ein weiteres deutliches Merkmal, nämlich der longitudinalen Variabilität der Nettoflüsse. Wie in Abbildung 5.8 zu sehen ist, sind sowohl der Fluss durch die Tropopause als auch der Fluss durch die 380 K-Fläche keineswegs zonal symmetrisch, was auch schon von anderen Autoren beobachtet wurde (Hoerling et al., 1993; Siegmund et al., 1996; Gettelman und Sobel, 2000). Zunächst ist festzustellen, dass die Abweichungen von der zonalen Symmetrie auf der Nordhalbkugel stärker sind als auf der Südhalbkugel, was auf einen Einfluss der ungleichmäßigen Land-Meer-Verteilung schließen lässt. Auf der Nordhalbkugel sind die Regionen mit starkem subtropischen Abwärtsfluss (durch die Tropopause) gekoppelt mit unmittelbar polwärts anschließendem Aufwärtstransport, was ein dipol-ähnliches Muster ergibt und erklärt, warum ein Großteil der in den Subtropen in die Troposphäre fließenden Luft aus hohen Breiten stammt (vgl. letzter Abschnitt 5.5). Dieses Muster ist allerdings nur über Asien und dem Pazifik gut ausgeprägt, über Amerika, Europa und dem Atlantik ist es stark gestört.

In den Tropen ist die longitudinale Variabilität sogar noch größer. Hier wechseln sich Regionen mit aufwärts gerichteter Bewegung mit Regionen mit abwärts gerichteter Bewegung ab. Gut sichtbar ist die Walker-Zirkulation mit aufsteigender Luft im Westpazifik und absteigender Luft im Ostpazifik. Aber auch in anderen Teilen der Tropen sind solche Strukturen erkennbar. Die einzelnen Regionen mit

gleicher Vertikalbewegung sind dabei in Form von Bändern angeordnet, die auf der Nordhalbkugel in nordost-südwestlicher Richtung (\swarrow) und auf der Südhalbkugel und nordwest-südöstlicher Richtung (\searrow) orientiert sind. Dieses Muster ist besonders gut zwischen dem Ostpazifik und Afrika zu sehen, wo sich eine deutliche “Zellenstruktur” ausbildet. Damit kann auch die These von Newell und Gould-Stewart (1981), nach der troposphärische Luft die Stratosphäre hauptsächlich in einer Region um Nordaustralien, Indonesien und dem tropischen Westpazifik betritt, nur teilweise bestätigt werden. Zwar befindet sich nach den Berechnungen mit ATTILA das größte zusammenhängende Gebiet mit Transport in die Stratosphäre auch in dieser — von Newell und Gould-Stewart “stratospheric fountain” genannten — Region, jedoch gibt es noch weitere Gebiete mit signifikantem Eintrag in die Stratosphäre, die sich über dem nördlichen Teil Südamerikas und dem Golf von Guinea⁴¹ befinden.

Es bleibt zu klären, inwieweit die von ATTILA (auf der Grundlage der ECHAM-Modelldynamik) berechneten Muster — insbesondere die zellulären Strukturen in den Tropen — realistisch sind und welche Ursachen sie haben. Dies wird in der hier vorliegenden Arbeit nicht mehr näher untersucht, so dass nur abschließend zu bemerken bleibt, dass die hier berechneten Massenflüsse zwar kein zonal symmetrisches, aber dennoch ein deutliches Muster mit klar erkennbaren Strukturen ausbilden.

5.7 Zusammenfassung der Ergebnisse

In diesem Kapitel wurde mit Hilfe des Zirkulationsmodells ECHAM4 und des Lagrangeschen Transportschemas ATTILA der Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre auf globaler und klimatologischer Skala untersucht. Dazu wurden die Massenflüsse durch zwei Grenzflächen, nämlich der thermischen Tropopause und der 380 K-Isentrope, untersucht. Diese beiden Flächen sind in den Tropen weitgehend identisch, unterscheiden sich aber in den Extratropen um die sogenannte unterste Stratosphäre, die in diesem Kontext eine besondere Rolle einnimmt. Die Diagnose dieser beiden Flächen und der entsprechenden Massenflüsse erfolgte da-

⁴¹Damit ist die äquatoriale Region des Atlantiks gemeint, die sich südlich der Elfenbeinküste befindet.

bei online während des Modelllaufes, und somit mit einer zeitlichen Auflösung von 30 Minuten.

Da der Massenaustausch mit Hilfe der von ATTILA berechneten Trajektorien diagnostiziert wird, muss man sich nicht auf die bloße Angabe von Massenflüssen durch die betrachteten Flächen beschränken, sondern man kann auch das Schicksal der Trajektorien in der Stratosphäre weiter verfolgen und so die großskalige Zirkulation als Ganzes untersuchen. In diesem Fall wurden die von den einzelnen Trajektorien maximal erreichten Höhen und die jeweilige Dauer des Aufenthaltes in der Stratosphäre untersucht. Ferner wurden, um die Bedeutung von Prozessen auf kurzer Zeitskala abzuschätzen, sämtliche Berechnungen auch unter Nichtberücksichtigung all jener Trajektorien durchgeführt, die sich kürzer als 12 Stunden in der Stratosphäre befanden.

Die Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen: Ein Vergleich mit anderen Studien auf globaler Skala zeigte zunächst, dass ATTILA ähnliche Werte erzeugt und somit trotz der relativ geringen horizontalen Auflösung von T30 die wesentlichen großskaligen Eigenschaften der mittleren meridionalen Zirkulation wiedergibt. Es ergibt sich jedoch ein grundlegender Unterschied zwischen dem Stratosphären-Troposphären-Austausch und dem Austausch durch die 380 K-Isentrope. Letzterer repräsentiert am ehesten die Brewer-Dobson-Zirkulation und besteht aus einem aufwärts gerichteten Fluss in den Tropen und einem abwärts gerichteten Fluss in den Extratropen. Luftpakete betreten die Oberwelt also hauptsächlich in den Tropen, erreichen dann während ihres Aufenthaltes dort alle Schichten der Modellatmosphäre und verlassen diese wieder im Schnitt nach 8 bis 9 Monaten in den Extratropen. Es gibt zwar auch einen kleineren Fluss von den Extratropen in die Tropen, jedoch beeinflusst dieser nur die unterste Schicht der Oberwelt (≥ 100 hPa) und läuft auf einer kürzeren Zeitskala ab (1–2 Wochen, siehe Abbildung 5.6).

Überhaupt scheint der Austausch durch die 380 K-Isentrope im Wesentlichen ein Austausch in jeweils nur eine Richtung zu sein. Ein Vergleich der horizontalen Verteilungen der Brutto-Aufwärts- und Abwärtsflüsse mit der Verteilung des resultierenden Nettoflusses zeigt, dass in Regionen mit gleichgerichteter Vertikalbewegung der Bruttofluss in die gleiche Richtung wie der Nettofluss signifikant höher ist als der Fluss in die entgegengesetzte Richtung. Dies gilt allerdings nur lokal, denn es gibt vor allem in den Tropen auch ausgeprägte Regionen mit einem Nettofluss in

die “falsche”, abwärts gerichtete Richtung. Im zonalen Mittel sieht man also sowohl einen signifikanten Aufwärts- als auch Abwärtsfluss, was einen Austausch in beide Richtungen suggeriert. Dieser kommt allerdings (in den Tropen und Subtropen) dadurch zustande, dass es sowohl Regionen mit einem Netto-Aufwärtsfluss als auch Regionen mit einem Netto-Abwärtsfluss gibt, wobei in den einzelnen Regionen der Austausch im Wesentlichen in eine Richtung erfolgt.

Die Aufteilung der Tropen in Regionen mit aufwärts und abwärts gerichteter Bewegung erzeugt dabei ein klares Muster mit “zellulärer” Struktur: Es gibt im Wesentlichen drei Zentren mit Aufwärtstransport, die über dem nördlichen Teil Südamerikas, dem äquatorialen Atlantik und Afrika und über dem tropischen Westpazifik und Indonesien liegen, und die deutlich durch Regionen mit abwärts gerichtetem Transport getrennt sind. Dieses Muster ist sowohl beim Stratosphären-Troposphären-Austausch als auch beim Austausch durch die 380 K-Isentrope klar erkennbar.

In den Extratropen hingegen unterscheidet sich der Austausch durch die Tropopause deutlich vom Austausch durch die 380 K-Fläche: Der Stratosphären-Troposphären-Austausch ist gekennzeichnet durch ein schmales Band in den Subtropen mit starkem Abwärtsfluss, der durch einen Aufwärtsfluss in höheren Breiten kompensiert wird. Diese Zirkulation spielt sich ausschließlich in der untersten Stratosphäre ab und bewirkt keinen Austausch mit der Oberwelt. Ebenfalls auf die extratropische unterste Stratosphäre beschränkt ist ein reger direkter 2-Wege-Austausch durch die Tropopause, der von Luftpaketen dominiert wird, die sich nur kurz (≤ 12 h) in der Stratosphäre befinden. Auch der Austausch durch den subtropischen Tropopausenbruch kann als Austausch in beiden Richtungen gesehen werden, wobei allerdings der Transport in die Troposphäre überwiegt (vgl. Abbildung 5.7).

Hierzu ist allerdings zu bemerken, dass diese Beurteilung hauptsächlich auf der Tatsache basiert, dass sich der resultierende Nettofluss als kleine Differenz zwischen zwei großen Termen — den beiden Bruttoflüssen — ergibt. Diese Flüsse reduzieren sich stark, wenn man nur die Trajektorien betrachtet, die sich länger als 12 Stunden in der Stratosphäre aufhalten. Dies könnte zum Einen bedeuten, dass der Stratosphären-Troposphären-Austausch von Prozessen auf kurzer Zeitskala dominiert wird, kann aber auch heißen, dass ein Großteil der Bruttoflüsse lediglich ein numerisches Artefakt ist. Während nämlich die Lage der 380 K-Fläche nur vom absoluten Wert der potentiellen Temperatur abhängt, basiert die Definition

der Tropopause auf dem vertikalen Temperaturgradienten und ist somit stärkeren Schwankungen ausgesetzt. Geht man in einer groben Überschlagsrechnung davon aus, dass z. B. bei 30°N , wo mit $400 \cdot 10^3 \text{ kg/s/m}$ die größten Bruttoflüsse auftreten (Abbildung 5.3c), die Tropopause in einer Gitterbox pro Zeitschritt einen Sprung von der Größenordnung der vertikalen Auflösung ($\approx 50 \text{ hPa}$) macht und innerhalb der nächsten 12 Stunden wieder in ihre ursprüngliche Lage zurückkehrt, so verursacht dieses “Rauschen” der Tropopausenhöhe bei einer horizontalen Auflösung von T30 mit 96 Gitterboxen pro Breitenkreis einen zusätzlichen zonal integrierten Fluss von

$$\frac{\Delta p}{g \cdot \Delta t} \cdot \frac{2\pi a \cos \phi}{96} = \frac{50 \text{ hPa}}{9.81 \text{ m/s}^2 \cdot 30 \text{ min}} \cdot \frac{2\pi \cdot 6370 \text{ km} \cdot \cos 30^\circ}{96} \approx 100 \cdot 10^3 \text{ kg/s/m},$$

was bereits 25% des Gesamtflusses ausmachen würde. Bei der Interpretation der getroffenen Aussagen zum Stratosphären-Troposphären-Austausch ist also eine gewisse Vorsicht angebracht, auch wenn sich — wie man z. B. Abbildung 5.7 entnehmen kann — die Qualität dieser Aussagen nicht wesentlich ändert, wenn man nur diejenigen Trajektorien berücksichtigt, die sich länger als 12 Stunden in der Stratosphäre befinden.

Generell kann man sagen, dass der Austausch durch die 380 K-Isentrope weniger mit Unsicherheiten belastet zu sein scheint als der Austausch durch die Tropopause.

6 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde ein rein Lagrangesches Transportschema für passive Spurenstoffe (namens ATTILA) entwickelt, welches online im Klimamodell ECHAM4 läuft und somit für Studien zum globalen Klima eingesetzt werden kann. Die Motivation für diese Arbeit war zweifach: Zum Einen besitzt das in ECHAM4 operationelle semi-Lagrangesche Transportschema numerische Nachteile, wie z. B. numerische Diffusion oder die Nichterhaltung der Masse eines Spurenstoffes, die die Anwendung eines “Massenfixers” notwendig macht. Ein Lagrangesches Transportschema hingegen ist numerisch nichtdiffusiv und massenerhaltend. Zum Anderen wird es mit fortschreitender Entwicklung der Klimamodelle, die auch eine vermehrte Kopplung mit anderen Modellen — wie z. B. zur Simulation atmosphärischer Chemie oder von Aerosolen — beinhaltet, immer wichtiger, eine effiziente Methode zum Transport auch einer großen Anzahl von Spurenstoffen zur Verfügung zu haben. Hier ist ein Lagrangesches Schema eindeutig im Vorteil, weil der Rechenzeitbedarf für die Advektion mit der Anzahl der transportierten Spurenstoffe schwächer ansteigt als in einem Eulerschen Schema.

Neben der Entwicklung und Validierung eines Lagrangeschen Transportschemas verfolgte diese Arbeit noch zwei weitere Ziele: Erstens sollten durch den Vergleich des Lagrangeschen und semi-Lagrangeschen Schemas neue Erkenntnisse über die allgemeine Zirkulation in ECHAM4 gewonnen werden. Insbesondere sollte herausgefunden werden, welche von den Beobachtungen abweichenden Transporteigenschaften auf den numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Schemas und welche auf einer etwaigen unrealistischen Modelldynamik beruhen. Zweitens sollte durch direkte Auswertung der von ATTILA gelieferten Informationen die atmosphärische Dynamik von einem Lagrangeschen Standpunkt aus untersucht werden, wobei der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der Untersuchung des Stratosphären-Troposphären-Austausches und der damit verbundenen Dynamik der Stratosphäre lag.

Im Folgenden werden die zur Klärung dieser Fragen angewandten Vorgehensweisen und die dazugehörigen Ergebnisse zusammenfassend dargestellt.

Zunächst wurden Transportexperimente mit ausgewählten Spurenstoffen durchgeführt, sowohl um ATTILA zu evaluieren als auch um die Dynamik in ECHAM zu untersuchen. Die verwendeten Spurenstoffe und die damit untersuchten Aspek-

te des Transportes waren Radon-222 (^{222}Rn ; schneller vertikaler Transport, Konvektion, Grenzschichtturbulenz, meridionaler Transport in der Tropopausenregion, Transport zu entlegenen Gebieten), das aus Atomwaffentests stammende radioaktive Kohlenstoffisotop 14 (^{14}C ; Transport von der Stratosphäre in die Troposphäre, Verhalten eines Transportschemas bei starken vertikalen Gradienten) und Schwefelhexafluorid (SF_6 ; Bodenkonzentrationen, Transport von der Troposphäre in die Stratosphäre, Alter der Luft).

Dabei ist allgemein festzustellen, dass beide Transportschemata in vielen Aspekten ähnliche Resultate liefern und auch mit Beobachtungen zufriedenstellend übereinstimmen. Insbesondere konnte gezeigt werden, dass das bereits etablierte Konvektionsschema in ECHAM4 auch für ein Lagrangesches Transportschema wie ATTILA verwendet werden kann und dort ähnlich effektiv arbeitet.

Es gibt aber auch wichtige Unterschiede zwischen den beiden Transportschemata. In ATTILA ist z. B. die Grenzschichtturbulenz anders parameterisiert als im semi-Lagrangeschen Schema, was zu einer stärkeren Durchmischung der Grenzschicht und zu niedrigeren Bodenkonzentrationen führt. Im Vergleich zu Beobachtungen scheint dabei ATTILA die realistischeren Werte zu liefern, während das semi-Lagrangesche Schema die Bodenkonzentrationen systematisch überschätzt. Dabei ist aber zu bedenken, dass die Parameterisierung der Grenzschichtturbulenz in ATTILA recht einfach ist und z. B. die vertikale Struktur der Grenzschicht mit lediglich einem Parameter, nämlich der Grenzschichthöhe, repräsentiert, so dass man nicht ausschließen kann, dass die bessere Übereinstimmung in ATTILA eher zufälliger Natur ist.

Die wichtigsten Unterschiede ergeben sich allerdings aufgrund bestimmter numerischer Eigenschaften der beiden Transportschemata, wie der Fähigkeit starke Gradienten zu erhalten und numerische Diffusion zu vermeiden (siehe auch Johnson et al., 2000, für eine Analyse des Transports von äquivalenter potentieller Temperatur im semi-Lagrangeschen Schema und eine ausführliche Betrachtung zu den Ursachen der Transportfehler). Es konnte z. B. mittels ^{222}Rn als Tracer gezeigt werden, dass der in ECHAM im Vergleich zu zahlreichen anderen Modellen erhöhte Meridionaltransport in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre im Wesentlichen auf die Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Transportschemas zurückzuführen ist. Zwar stehen hier zur Validierung kaum Beobachtungen zur Verfügung, jedoch

stimmen die Ergebnisse von ATTILA besser mit denen anderer Modelle überein als die Ergebnisse des semi-Lagrangeschen Schemas (Jacob et al., 1997), was ein Hinweis darauf ist, dass die allgemeine Zirkulation in ECHAM der Zirkulation anderer Modelle ähnlicher ist als es z.B. die Transportexperimente in Jacob et al. (1997) vermuten lassen. Ein weiteres Experiment mit einem kurzlebigen, in der oberen tropischen Troposphäre emittierten fiktiven Spurenstoff erhärteten diese These.

Auch konnte der Verdacht entkräftet werden, dass eine zu starke Meridionalzirkulation in ECHAM einen erhöhten Austausch durch die Tropopause, vor allem in den Subtropen, bedingt. Die Experimente mit ^{14}C , dessen Anfangsverteilung ein ausgeprägtes Maximum in der unteren nördlichen Stratosphäre besitzt, zeigen, dass der subtropische Abwärtstransport von ^{14}C in die Troposphäre auch in ECHAM realistisch modelliert werden kann, wenn ein nichtdiffusives Advektionsschema wie ATTILA benutzt wird. Hierbei sind zwei Dinge bemerkenswert. Erstens kann die numerische Diffusion im semi-Lagrangeschen Schema nicht einfach durch eine Erhöhung der vertikalen Auflösung behoben werden. Land (1999) untersuchte den Transport von ^{14}C mit einer im Tropopausenbereich verdoppelten vertikalen Auflösung und fand keine wesentliche Verbesserung. Diese Erfahrung wurde auch mit anderen Modellen gemacht (Rind et al., 1999). Zweitens bewirkt eine Erhöhung des Diffusionsparameters in ATTILA zwar ebenfalls eine schnellere Dämpfung des stratosphärischen Maximums, aber keine Erhöhung des Abwärtstransportes durch die Tropopause. Dies zeigt deutlich, dass man bei der Einordnung numerischer Eigenschaften in Kategorien wie "numerische Diffusion" etc. vorsichtig sein muss und berücksichtigen muss, dass jedes Advektionsschema seine eigenen, charakteristischen Eigenschaften besitzt.

Ein weiterer Unterschied ergibt sich in der Geschwindigkeit des Vertikaltransportes in den obersten Modellschichten, oberhalb von ca. 15 km. Im semi-Lagrangeschen Schema ist dieser Transport im Vergleich zu Beobachtungen zu langsam, was auch von Kjellström et al. (2000) bestätigt wird. In ATTILA ist dieser Transport schneller, allerdings im Vergleich zu Beobachtungen zu schnell, so dass man in dieser Hinsicht keinem der beiden Modelle den Vorzug geben kann.

Insgesamt gesehen erfüllen sich mit ATTILA die Erwartungen, die man an ein Lagrangesches Transportschema stellt, nämlich die Fähigkeit starke Gradienten zu erhalten und somit auch inhomogene Verteilungen realistisch zu transportieren.

Gleichzeitig konnte gezeigt werden, dass die oben besprochenen Abweichungen von den Beobachtungen auf das semi-Lagrangesche Schema und nicht auf eine unrealistische Modelldynamik zurückzuführen sind, so dass man hier von einer echten Verbesserung des Modelltransportes sprechen kann.

Um nun die Altersstruktur der Stratosphäre zu untersuchen, wurden nicht nur die SF_6 -Konzentrationen ausgewertet, sondern auch direkt die von ATTILA berechneten Trajektorien. Beide Methoden liefern dabei ein ähnliches mittleres Alter, das unterhalb von ca. 20 km auch mit Beobachtungen, die auf SF_6 - oder CO_2 -Messungen beruhen, einigermaßen übereinstimmt. Auf der Südhemisphäre entsteht z. B. im Frühling (SON) aufgrund des Absinkens "alter" Luftmassen im Polarwirbel ein ausgeprägter meridionaler Gradient im mittleren Alter. Der Altersunterschied zwischen Tropen und Südpol beträgt dabei in 20 km Höhe ca. 2.75–3.0 Jahre, was ungefähr zu den beobachteten 3.5 Jahren passt. Der auf eine enge Region begrenzte Gradient befindet sich allerdings in den Beobachtungen in den Subtropen (ca. 15°S–30°S), während er sich im Modell in mittleren Breiten (ca. 40°S–50°S) befindet. Im Modell ist also die beobachtete subtropische Transportbarriere zu schwach, und da ATTILA die Stärke des Gradienten reproduziert und die Trajektorien in der Stratosphäre nur vom skaligen Wind abhängen, liegt die Vermutung nahe, dass diese Eigenschaft in der Modelldynamik begründet liegt.

Oberhalb von 20 km wird das beobachtete Alter unterschätzt, d. h. es werden höhere SF_6 -Konzentrationen modelliert als beobachtet. Dieses Phänomen ist bei so gut wie allen Modellen zu finden (vgl. Park et al., 1999), einschließlich Modellen der mittleren Atmosphäre wie MA-ECHAM (Manzini und Feichter, 1999), so dass als Gründe hierfür außerhalb der Modellwelt liegende Ursachen, wie z. B. eine Senke für SF_6 in der Mesosphäre (vgl. Hall und Waugh, 1998) in Betracht kommen könnten. Eluszkiewicz et al. (2000) zeigten allerdings, dass mit einem Mittelatmosphärenmodell in Verbindung mit einem geeigneten (numerisch nicht oder wenig diffusiven) Transportschema durchaus die beobachteten Altersverteilungen reproduziert werden können.

Die berechneten Trajektorien liefern allerdings nicht nur das mittlere Alter der Luft, sondern auch das gesamte Altersspektrum an einem Ort, welches Messungen nicht und Eulerschen bzw. semi-Lagrangeschen Modellen nur schwer⁴² zugänglich ist. Die

⁴²Die Berechnung des Altersspektrums mit einem Eulerschen oder semi-Lagrangeschen Modell

berechneten Spektren sind (rechts-)schief mit einem unterhalb des mittleren Alters liegenden Maximum, welches in den Tropen sehr ausgeprägt ist und zu höheren Breiten hin niedriger und breiter wird. In polaren Breiten hingegen ändert sich die Struktur: Dort haben die Spektren mehrere Maxima im Abstand von einem Jahr, wobei dieses Muster auf der Südhalbkugel wegen der geringeren Variabilität der stratosphärischen Dynamik deutlicher ausgeprägt ist als auf der Nordhalbkugel. Auf der Südhalbkugel ergibt sich dabei folgendes Bild: Die polaren Luftmassen sind über den größten Teil des Jahres relativ isoliert, wobei der größte Austausch während der — in ECHAM4 verspätet einsetzenden (vgl. Hein et al., 2000) — Umstellung zur Sommerzirkulation im November und Dezember stattfindet. Eine genauere Analyse der Altersspektren zeigte, dass die im Abstand von einem Jahr auftretenden Maxima nicht mit zunehmender Höhe zu höherem Alter hin verschoben sind, sondern dass diese höhenkonstant sind, und dass sich die im November und Dezember zum Südpol transportierten Luftmassen im Mittel seit 7–8 Monaten und n Jahren, mit $n = 0, 1, 2, \dots$, in der Stratosphäre befinden. Die Transportzeiten von der tropischen Tropopause zum Polarwirbel sind also in jeder Höhe auf die gleiche Weise “gequantelt”, was impliziert, dass nicht nur die Austauschphase ein enges zeitliches Fenster besitzt, sondern dass auch — bedingt durch den Jahresgang der mittleren stratosphärischen Zirkulation — der Zeitpunkt des Eintretens in die Stratosphäre eine wesentliche Rolle spielt. In diesem Fall gelangen hauptsächlich die Luftmassen in (süd-)polare Breiten, die 7–8 Monate (und n Jahre) vorher, also im Herbst (MAM), die Stratosphäre betreten haben.

Zur Untersuchung des Stratosphären-Troposphären-Austausches wurden ebenfalls die von ATTILA berechneten Trajektorien vielfältig ausgewertet, wobei im Mittelpunkt der Fluss durch zwei Grenzflächen, der thermischen Tropopause und der 380 K-Isentrope, stand. Letzterer zeigt dabei im zonalen Mittel eine klare Struktur mit einer Aufwärtsbewegung in den Tropen und einer Abwärtsbewegung in den Extratropen. Durch die Tropopause ist dagegen der Abwärtsfluss auf ein schmales Band in den Subtropen begrenzt, an das sich polwärts ein Band mit aufwärts gerichteter Bewegung anschließt. Dieser Aufwärtsfluss in mittleren bis hohen Breiten erreicht aber nicht die Oberwelt, d. h. den Bereich mit $\theta \geq 380$ K, sondern beein-
fordert die Simulation eines Spurenstoffes mit einer Randbedingung in Form einer δ -Funktion;
 dies impliziert sehr starke Gradienten, mit denen die meisten nicht-Lagrangeschen Advektions-
 schemata Schwierigkeiten haben.

flusst nur die extratropische unterste Stratosphäre und wird durch einen höheren Abwärtsfluss in den Subtropen kompensiert. Durch eine weitergehende Analyse der Trajektorien wurde gezeigt, dass der Austausch durch die 380 K-Isentrope im Wesentlichen als ein Austausch in jeweils eine Richtung angesehen werden kann, und gut durch die Brewer-Dobson-Zirkulation beschrieben wird. Luftmassen, die die Oberwelt in den Tropen betreten und in den Extratropen wieder verlassen, verweilen dabei im Mittel 9 ± 15 Monate in der Oberwelt. Im Gegensatz dazu stellt sich der Austausch durch die Tropopause als ein Austausch in beide Richtungen dar.

Die Flüsse durch beide Grenzflächen zeigen eine gewisse zonale Variabilität, die besonders in den Tropen und auf der Nordhalbkugel ausgeprägt ist. In den Tropen herrscht dabei keine gleichförmige Aufwärtsbewegung vor, sondern es entstehen deutlich erkennbare "Zellen" mit abwechselnd aufwärts und abwärts gerichteter Bewegung. In diesem Sinne findet also auch in den Tropen, wo die beiden Grenzflächen zusammenfallen, ein Austausch in beide Richtungen statt. Generell kann man sagen, dass diese Flüsse zwar nicht zonal symmetrisch sind, aber dennoch ein klar strukturiertes Zirkulationsmuster ausbilden.

In dieser Arbeit wurden also die Entwicklung, Evaluierung und verschiedene Anwendungsmöglichkeiten des Lagrangeschen Transportschemas ATTILA beschrieben. Wie kann nun der zukünftige Einsatz von ATTILA aussehen? Zunächst besteht natürlich weiterhin — wie oben beschrieben — die Möglichkeit, die von ATTILA berechneten Trajektorien direkt auszuwerten, und so bestimmte Aspekte der Modelldynamik und des globalen Transportes in ECHAM zu untersuchen.

Ferner können Studien zur globalen Klimaänderung, bei denen die Chemie der Atmosphäre im Vordergrund steht, wie z. B. bei der Untersuchung der zukünftigen Entwicklung des Ozonloches, nur mit gekoppelten Klima-Chemie-Modellen durchgeführt werden. Ein Beispiel hierfür ist das Modell ECHAM4.L39(DLR)/CHEM, mit dem die stratosphärische Ozonverteilung bereits recht gut modelliert werden kann (Hein et al., 2000). Eine Weiterentwicklung des Modells, speziell des Chemiemoduls, führt auch zwangsläufig zu einer Erhöhung der transportierten Spurenstoffe, die möglicherweise mit ATTILA effizienter behandelt werden können. Aber auch spezifische numerische Eigenschaften, wie z. B. die Erhaltung starker Gradienten, können zu einer Entscheidung für ATTILA als verwendetes Transportschema

führen. So produziert das Modell ECHAM4.L39(DLR)/CHEM im Vergleich zu HALOE-Messungen (Harries et al., 1996) zu hohe Wasserdampfkonzentrationen in der untersten extratropischen Stratosphäre, und somit einen zu schwachen meridionalen Gradienten (Hein et al., 2000). Da der gleiche Effekt auch beim ^{222}Rn -Experiment gefunden wurde (siehe oben), könnte die Verwendung von ATTILA zum Transport von Wasserdampf unter Umständen eine Verbesserung bringen.

Weitere Forschungsaktivitäten gehen auch in Richtung einer Behandlung von Aerosolen in Klimamodellen. Für das Modell ECHAM wird derzeit an einer Kopplung mit dem Aerosolmodul MADE (Ackermann et al., 1998) gearbeitet (Köhler, pers. Mitteilung). Die Behandlung von Aerosolen involviert ebenfalls den Transport zahlreicher Spurenstoffe, der je nach Komplexität des Aerosolmoduls verschieden aufwändig sein kann. So führt z. B. die Behandlung sekundärer organischer Aerosole in MADE zu einer Erhöhung der transportierten Stoffe von 18 auf 34 (Schell, 2000), so dass auch hier der Einsatz von ATTILA lohnend erscheint.

Generell ist der Einsatz von ATTILA immer dann zu überlegen, wenn entweder eine Vielzahl von Stoffen transportiert werden muss, oder wenn besonderer Wert auf eine genaue Behandlung inhomogener Verteilungen gelegt wird. Beide Faktoren werden aber mit fortschreitender Entwicklung und zunehmender Komplexität der verwendeten Modellsysteme immer wichtiger.

A Details zur Berechnung der Trajektorien

A.1 Das Runge-Kutta-Verfahren 4. Ordnung

Zur Berechnung der Position $\vec{r}(t + \Delta t)$ eines Luftpaketes zum nächsten Zeitschritt wird in ATTILA das Runge-Kutta-Schema 4. Ordnung benutzt, welches in Press et al. (1990, §15.1) allgemein beschrieben wird. Auf das hier vorliegende Problem übertragen bedeutet dies die Berechnung folgender Winde, wobei $\vec{r}_1 = \vec{r}(t)$ die aktuelle Position eines Luftpaketes und $\vec{u}(\vec{r}, t)$ das von ECHAM erzeugte Windfeld bezeichnet, und in ATTILA $\delta t = 0$ (siehe unten) gesetzt ist:

$$\begin{aligned} \vec{u}_1 &= \vec{u}(\vec{r}_1, t) \\ \vec{u}_2 &= \vec{u}(\vec{r}_2, t + \delta t/2), \quad \text{mit } \vec{r}_2 = \vec{r}_1 + \vec{u}_1 \cdot \Delta t/2 \\ \vec{u}_3 &= \vec{u}(\vec{r}_3, t + \delta t/2), \quad \text{mit } \vec{r}_3 = \vec{r}_1 + \vec{u}_2 \cdot \Delta t/2 \\ \vec{u}_4 &= \vec{u}(\vec{r}_4, t + \delta t), \quad \text{mit } \vec{r}_4 = \vec{r}_1 + \vec{u}_3 \cdot \Delta t \\ \vec{u}^{\text{RK4}} &= \frac{1}{6} \cdot (\vec{u}_1 + 2 \cdot (\vec{u}_2 + \vec{u}_3) + \vec{u}_4) \end{aligned}$$

Die neue Position errechnet sich dann durch

$$\vec{r}(t + \Delta t) = \vec{r}(t) + \vec{u}^{\text{RK4}} \cdot \Delta t.$$

Abbildung A.1 veranschaulicht die obigen Rechnungen für den 1-dimensionalen Fall.

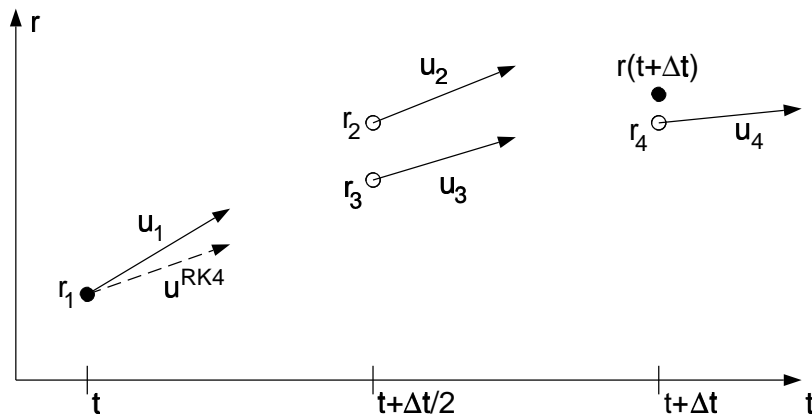


Abbildung A.1: Das Runge-Kutta-Schema 4. Ordnung, siehe Text.

Dieses Schema ist von 4. Ordnung, d. h. bei Vorliegen des Windfeldes \vec{u} als kontinuierliches Feld, und mit $\delta t = \Delta t$ gilt für die *wahre* Position $\vec{r}_T(t + \Delta t)$

$$\vec{r}_T(t + \Delta t) = \vec{r}(t) + \vec{u}^{\text{RK4}} \cdot \Delta t + O(\Delta t^5).$$

Liegt \vec{u} nur auf einem diskreten Gitter vor, so gilt diese Beziehung nicht mehr, weil bei der Berechnung von $\vec{u}_1, \dots, \vec{u}_4$ das Windfeld \vec{u} interpoliert werden muss. In ATTILA wird dabei zwischen den Zeitebenen wegen des ohnehin kleinen Zeitschrittes nicht interpoliert (d. h. $\delta t = 0$), und horizontal linear bzw. vertikal kubisch Hermitesch (siehe Anhang A.2) interpoliert.

A.2 Die kubisch Hermitesche Interpolation

In ATTILA wird für die vertikale Interpolation des Windes ein kubisch Hermitesches Verfahren verwendet. Eine Einführung in die theoretischen Grundlagen der Hermite-Interpolation kann z. B. in Mennicken und Wagenführer (1977b, §7.2) gefunden werden. Die Problemstellung hier lautet folgendermaßen: Zu zwei Werten $x_1 < x_2$ und einer Funktion $f(x)$ ist ein Polynom $P(X)$ 3. Grades gesucht, mit

$$P(x_i) = f(x_i) \quad \text{und} \quad P'(x_i) = f'(x_i), \quad i = 1, 2.$$

Man kann zeigen, dass es genau ein solches Polynom gibt, und überzeugt sich durch eine einfache Rechnung, dass das folgende Polynom die gewünschten Eigenschaften hat:

$$\begin{aligned} P(X) &= \sum_{i=1}^4 a_i \alpha^{4-i}, \quad \text{mit } \alpha = \frac{X - x_1}{x_2 - x_1} \quad \text{und} \\ a_4 &= f(x_1) \\ a_3 &= f'(x_1) \cdot (x_2 - x_1) \\ a_2 &= -f'(x_2) \cdot (x_2 - x_1) + 3 \cdot f(x_2) - 2 \cdot a_3 - 3 \cdot a_4 \\ a_1 &= f(x_2) - a_2 - a_3 - a_4. \end{aligned}$$

In ATTILA ist nun x die vertikale Koordinate η und f das Vertikalprofil einer Windkomponente u . Im Gegensatz zu obigem Problem ist allerdings u nur auf bestimmten Modellschichten η_i bekannt, so dass der Gradient von u abgeschätzt

werden muss, was mit Hilfe zentrierter finiter Differenzen geschieht. Damit ergibt sich für die vertikale Position η_0 eines Luftpaketes und ein gegebenes Windprofil $u(\eta_i)$ folgender Algorithmus:

1. Es werden die 4 benachbarten Modellschichten η_1, \dots, η_4 von η_0 bestimmt, so dass gilt

$$\eta_1 \leq \eta_2 \leq \eta_0 < \eta_3 \leq \eta_4.$$

Befindet sich das Paket in der obersten oder untersten Schicht, so wird $\eta_1 = \eta_2$ bzw. $\eta_4 = \eta_3$ gesetzt.

2. Die Gradienten Δ_i bei η_i ($i = 2, 3$) werden abgeschätzt durch

$$\Delta_2 = \frac{u_3 - u_1}{\eta_3 - \eta_1} \quad \text{und} \quad \Delta_3 = \frac{u_4 - u_2}{\eta_4 - \eta_2},$$

mit $u_i = u(\eta_i)$, $i = 1, \dots, 4$ (siehe Abbildung A.2).

3. Die Koeffizienten des Polynoms P werden berechnet:

$$\begin{aligned} a_4 &= u_2 \\ a_3 &= \Delta_2 \cdot (\eta_3 - \eta_2) \\ a_2 &= -\Delta_3 \cdot (\eta_3 - \eta_2) + 3 \cdot u_3 - 2 \cdot a_3 - 3 \cdot a_4 \\ a_1 &= u_3 - a_2 - a_3 - a_4 \end{aligned}$$

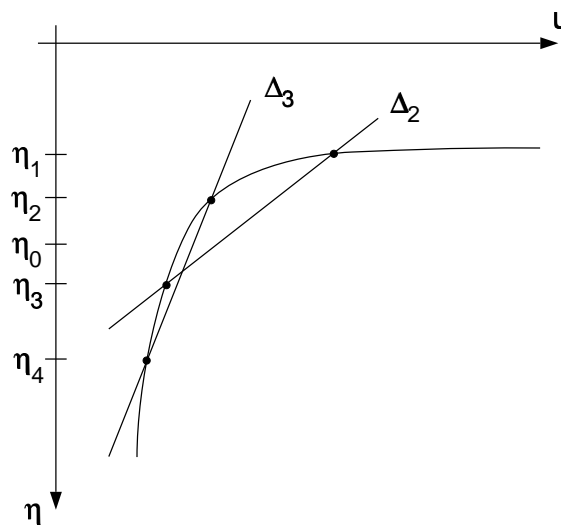


Abbildung A.2: Kubisch Hermiteische Interpolation, siehe Text.

4. Das Polynom $P(\eta) = \sum_{i=1}^4 a_i \alpha^{4-i}$, mit $\alpha = (\eta - \eta_2)/(\eta_3 - \eta_2)$ wird nach dem numerisch effektiven Horner-Schema (siehe z. B. Mennicken und Wagenführer, 1977a, §1.4) an der Position η_0 ausgewertet, so dass sich für den interpolierten Wind

$$u_{\text{interpol}}(\eta_0) = P(\eta_0)$$

ergibt.

Das so gewählte Polynom P berücksichtigt also auch die Gradienten an den Stellen η_2 und η_3 , was vor allem bei stark gekrümmten Profilen von Vorteil ist (siehe Abschnitt 2.4.3).

A.3 Über die Anhäufung von Trajektorien in der Grenzschicht

Wie in Abschnitt 2.4.3 erwähnt, führen die beiden Parameterisierungen der subskaligen turbulenten Windschwankungen oberhalb der Grenzschicht und der turbulenten Mischung innerhalb der Grenzschicht zu einer Anhäufung von Trajektorien in der Grenzschicht. Abbildung A.3 veranschaulicht die Situation:

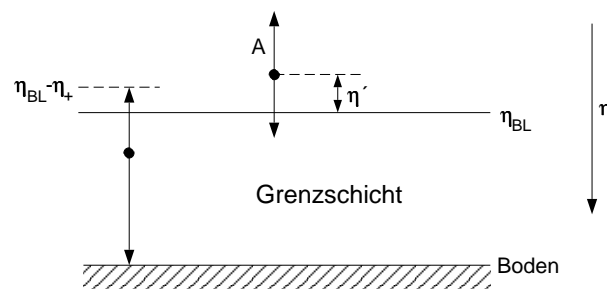


Abbildung A.3: Zur Anhäufung von Trajektorien in der Grenzschicht, siehe Text für Details.

Innerhalb der Grenzschicht werden die Partikel zufällig versetzt, oberhalb werden sie um den Betrag $A \cdot X$ versetzt, wobei X eine gleichverteilte Zufallsvariable mit Wertebereich $[-1; 1]$ ist. Man beachte, dass in Abbildung A.3 A stark überhöht dargestellt ist, in Wirklichkeit ist A einige Größenordnungen kleiner als η_{BL} .

Es sei in dem betrachteten Höhenbereich (vom Boden bis $\eta_{\text{BL}} - 2A$) eine konstante Anzahldichte n von Partikeln (pro Volumeneinheit) angenommen. Diese Annahme ist gerechtfertigt, da n proportional zur Dichte ρ ist, und die Grenzschicht maximal eine Mächtigkeit von ungefähr 1000 m hat.

Zur Berechnung des Abwärtsflusses⁴³ F_{\downarrow} betrachte man die Wahrscheinlichkeit $P(\eta')$, mit der sich ein Partikel mit der Position $\eta_{\text{BL}} - \eta' \leq \eta_{\text{BL}}$ im nächsten Zeitschritt in der Grenzschicht befindet (die Höhe der Grenzschicht wird dabei als konstant angenommen):

$$P(\eta') = \begin{cases} (A - \eta')/(2A) & , \text{ falls } \eta' \leq A \\ 0 & , \text{ sonst} \end{cases}$$

Für F_{\downarrow} ergibt sich somit

$$F_{\downarrow} = \int_0^A nP(\eta')d\eta' = \frac{1}{4} \cdot n \cdot A.$$

Zur Abschätzung der Größe von F_{\downarrow} betrachte man ein Gitterquadrat am Äquator bei T30 Auflösung und gehe von einer Grenzschicht aus, die sich von 1000 bis 900 hPa erstreckt. Das Gitter hat eine Maschenweite von 3.75° , und somit befinden sich über einem solchen Gitterquadrat — bei einer Gesamtzahl von 186624 Trajektorien —

$$N = \frac{1}{2} \cdot (\sin(3.75^\circ) - \sin(0^\circ)) \cdot \frac{3.75}{360} \cdot \frac{1000 - 900}{1000 - 0} \cdot 186624 \approx 6.36$$

Partikel in der Grenzschicht. Da in Bodennähe η proportional zum Druck ist, gilt für die Dicke $\Delta\eta$ der Grenzschicht in η -Koordinaten

$$\Delta\eta = \eta_{\text{Boden}} - \eta_{\text{BL}} \approx 1 - 0.9 = 0.1.$$

Bezeichnet a_{box} die Fläche des Gitterquadrats, so beläuft sich die Anzahldichte n in der Grenzschicht auf

$$n = \frac{N}{\Delta\eta \cdot a_{\text{box}}} \approx 63.6 \cdot \frac{1}{a_{\text{box}}}.$$

Mit $\Delta t = 30$ min und einer unteren Abschätzung von K_v mit 10^{-11} s^{-1} ergibt sich nach Gleichung 2.2 (Seite 21) für den Abwärtsfluss

$$F_{\downarrow} = \frac{1}{4} \cdot n \cdot \sqrt{2 \cdot \Delta t \cdot K_v} \approx 3 \cdot 10^{-3} \frac{1}{a_{\text{box}}}.$$

⁴³Gemeint ist die Anzahl der Partikel pro Fläche und Zeitschritt, die in die Grenzschicht gelangen.

Während eines Monats erhöht sich also die Anzahl der Trajektorien in der Grenzschicht über einem äquatornahen Gitterquadrat um

$$\Delta N = F_{\downarrow} \cdot a_{\text{box}} \cdot \frac{30\text{d}}{0.5\text{h}} \approx 4.3 ,$$

was einer Erhöhung um fast 70% entspricht.

Dieser Fluss soll dadurch kompensiert werden, dass die Partikel in der Grenzschicht innerhalb eines Bereiches zwischen Boden und $\eta_{\text{BL}} - \eta_+$ neu positioniert werden. Pro Einheitsfläche befinden sich $n \cdot \Delta\eta$ Partikel in der Grenzschicht, von denen sich ein Anteil von $\eta_+ / (\Delta\eta + \eta_+)$ im nächsten Zeitschritt außerhalb der Grenzschicht wiederfindet. Für den Aufwärtsfluss F_{\uparrow} ergibt sich somit

$$F_{\uparrow} = n \cdot \frac{\Delta\eta \cdot \eta_+}{\Delta\eta + \eta_+} .$$

Durch Gleichsetzen der beiden Flüsse erhält man

$$\eta_+ = A \cdot \frac{\Delta\eta}{4\Delta\eta - A} .$$

Da A maximal von der Größenordnung 10^{-3} , $\Delta\eta$ aber von der Größenordnung 1 ist, kann man wegen $A \ll 4\Delta\eta$ für η_+ den Wert

$$\eta_+ \approx \frac{A}{4}$$

benutzen.

B Details zum Austausch zwischen Luftpaketen

B.1 Massenerhaltung

Wie in Abschnitt 2.4.4 erläutert, wird zu jedem Zeitschritt das Massenmischungsverhältnis c eines Spurenstoffes in einem Luftpaket einer Hintergrundkonzentration \bar{c} durch Addition von $(\bar{c} - c) \cdot d$ nähergebracht, wobei \bar{c} als Durchschnitt der Konzentrationen aller Pakete in einer Gitterbox berechnet wird.

Diese Prozedur erhält die Masse eines Spurenstoffes: Angenommen, zum Zeitpunkt t befinden sich n Luftpakete mit den Konzentrationen⁴⁴ c_1, \dots, c_n in einer Gitterbox. Die Gesamtmasse des Spurenstoffes in dieser Box ist dann

$$m(t) = m_{\text{cell}} \cdot \sum_{i=1}^n c_i(t),$$

wobei m_{cell} die Luftmasse eines Paketes bezeichnet. Die Hintergrundkonzentration berechnet sich zu

$$\bar{c} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n c_i(t),$$

und die Konzentrationen zum nächsten Zeitpunkt belaufen sich auf

$$c_i(t + \Delta t) = c_i(t) + (\bar{c} - c_i(t)) \cdot d.$$

Die Gesamtmasse des Spurenstoffes in der Gitterbox ist nun

$$m(t + \Delta t) = m_{\text{cell}} \cdot \sum_{i=1}^n c_i(t + \Delta t) = m(t) + \left(n\bar{c} - \sum_{i=1}^n c_i(t) \right) \cdot d \cdot m_{\text{cell}} = m(t).$$

Man beachte, dass es für die Erhaltung der Masse wichtig ist, dass für alle Luftpakete in einer Gitterbox die gleiche Hintergrundkonzentration \bar{c} verwendet wird. Würde man zu jedem Luftpaket die *wahren* Nachbarn suchen und \bar{c} jeweils als Durchschnitt über diese berechnen, so wäre die Massenerhaltung nicht mehr notwendig gewährleistet.

B.2 Zusammenhang zwischen Mischungsparameter und Diffusionskoeffizient

Bei der Herleitung des Mischungsparameters d geht man davon aus, dass der oben beschriebene Mischungsprozess ein diffusiver Vorgang ist, der durch die Ficksche

⁴⁴Mit Konzentrationen sind hier immer Massenmischungsverhältnisse gemeint.

Diffusionsgleichung beschrieben wird. Dabei wird die Konzentration c in einem Luftpaket als horizontale Gaußsche Störung über der Hintergrundkonzentration \bar{c} betrachtet, die eine gewisse Breite σ_0 besitzt (siehe Walton et al., 1988). Die Lösung der Fickschen Gleichung ergibt nach dem Zeitschritt Δt wieder eine Gaußsche Funktion (siehe z. B. Etling, 1996, §21). Für die Breite σ gilt dann

$$\sigma^2 = \sigma_0^2 + 2 \cdot K_h \cdot \Delta t,$$

wobei K_h der horizontale Diffusionskoeffizient ist. Die Amplitude $c - \bar{c}$ der Gaußschen Funktion hat sich dabei um den Faktor σ_0^2/σ^2 abgeschwächt, so dass für die neue Spurenstoffkonzentration gilt:

$$c(t + \Delta t) = \bar{c} + (c - \bar{c}) \cdot \frac{\sigma_0^2}{\sigma^2} = c + (\bar{c} - c) \cdot d,$$

mit

$$d = 1 - \frac{\sigma_0^2}{\sigma_0^2 + 2K_h \Delta t} \quad \text{bzw.} \quad K_h = \frac{1}{2\Delta t} \cdot \sigma_0^2 \cdot \frac{d}{1-d}.$$

Nach Smagorinsky (1963) kann der Diffusionskoeffizient ausgedrückt werden als

$$K_h = (k \cdot \sigma_0)^2 \cdot S,$$

wobei $k = 0.4$ eine Diffusionskonstante und S die horizontale Windscherung ist. Damit ergibt sich die in Abschnitt 2.4.4 angegebene Formel 2.3 (Seite 28). Der Vorteil dieser Formulierung ist, dass sie unabhängig von der horizontalen Ausdehnung σ_0 der Gaußschen Funktion ist. Will man jedoch einen Zusammenhang zwischen d und K_h konstruieren, so muss man σ_0 abschätzen. Nimmt man beispielsweise für $2\sigma_0$ ungefähr die horizontale Ausdehnung eines Luftpaketes an, so ergibt sich in der mittleren Troposphäre ein Wert für σ_0 in der Größenordnung 150 km, wenn man von einer Luftpaketmasse⁴⁵ von $2.7 \cdot 10^{13}$ kg, einer Dichte von 0.7 kg/m^3 und einem Verhältnis von horizontaler zu vertikaler Ausdehnung von 20000 km : 30 km ausgeht. Einem Wert von $d = 10^{-3}$ entspricht dann bei einem Zeitschritt von $\Delta t = 30 \text{ min}$ ein Diffusionskoeffizient von $K_h = 6300 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. Dies ist allerdings nur als eine sehr grobe Abschätzung zu betrachten, da K_h sehr empfindlich von der nicht exakt definierten horizontalen Ausdehnung $2\sigma_0$ eines Luftpaketes abhängt.

⁴⁵Entsprechend einer globalen Gesamtmasse von $5.12 \cdot 10^{18}$ kg verteilt auf 186624 Luftpakete (siehe 2.4.1)

C Details zur Berechnung der Grenzschichthöhe

Die Höhe der Grenzschicht wird in ATTLA nach der von Maryon und Best (1992) empfohlenen Methode berechnet. Da im Modell die verschiedenen Profile nur vertikal diskret vorliegen, wird hier statt einer kontinuierlichen Grenzschichthöhe die unterste Schicht k_{BL} bestimmt, die sich in der freien Atmosphäre befindet. Die Grenzschicht besteht dann also aus den Schichten $k_{\text{BL}} + 1, \dots, 19$.

Zuerst wird k_{BL} nach zwei verschiedenen Verfahren berechnet:

1. Die “trockenadiabatische” Methode.

In Abhängigkeit von der Schichtung der Atmosphäre in der untersten Modellschicht wird eine bodennahe Temperatur T_{Start} berechnet:

$$T_{\text{Start}} = T_{19} + \begin{cases} 1.2 \text{ K} & , \text{ falls } \theta_{\text{Boden}} \geq \theta_{19} \\ 0.5 \text{ K} & , \text{ sonst} \end{cases}$$

Dabei bezeichnet T_{19} (θ_{19}) die (potentielle) Temperatur in der untersten Schicht und θ_{Boden} die potentielle Temperatur am Boden.

Die Grenzschichthöhe wird als Schnittpunkt des Temperaturprofils mit der Trockenadiabaten ausgehend von T_{Start} berechnet. Die unterste Schicht $k_{\text{BL,Ad}}$ in der freien Atmosphäre ist dann also die Schicht k , in der, vom Boden ausgehend, zum ersten Mal

$$T_k > T_{\text{Start}} - \frac{g}{c_p} \cdot z_k$$

gilt, wobei $-g/c_p$ der trockenadiabatische Temperaturgradient, und T_k (z_k) die Temperatur (Höhe) der Schicht k ist.

2. Die Richardson-Zahl-Methode.

Die Grenzschichthöhe wird hier als die Höhe berechnet, in der die Richardson-Zahl Ri einen bestimmten Wert überschreitet. Die unterste Schicht $k_{\text{BL,Ri}}$ ist hier also die Schicht, in der, vom Boden ausgehend, zum ersten Mal

$$Ri_m > 1.3$$

gilt. Dabei wird die in ECHAM standardmäßig berechnete, sogenannte “feuchte” Richardson-Zahl Ri_m benutzt, die den Einfluss von Feuchte und

Kondensation bzw. Verdampfung auf die Stabilität der Schichtung berücksichtigt (siehe Brinkop und Roeckner, 1995).

Für den endgültigen Wert k_{BL} wird das Verfahren benutzt, das die größere Grenzschicht liefert, d. h. $k_{\text{BL}} = \min(k_{\text{BL,Ad}}, k_{\text{BL,Ri}})$. Als Höhe der Grenzschicht z_{BL} kann man dann die Höhe des “Halb-Levels” $k_{\text{BL}} + 0.5$ ansehen. Um Extremsituationen zu vermeiden und um numerische “Ausrutscher” abzufangen, wird k_{BL} schließlich noch so abgeändert, dass z_{BL} zwischen ungefähr⁴⁶ 200 m und 1300 m liegt.

Die Parameter bei der Berechnung von T_{Start} und der kritische Wert für die Richardson-Zahl wurden dabei von Maryon und Best (1992) mittels eines Optimierungsverfahrens so gewählt, dass die berechneten Grenzschichthöhen Beobachtungen aus Radiosondenaufstiegen möglichst gut wiedergaben.

⁴⁶Die untersten beiden Modellschichten werden immer der Grenzschicht zugerechnet.

D Paralleles Rechnen und das Gesetz von Amdahl

Beim parallelen Rechnen werden Teile eines Programmes, die unabhängig voneinander berechnet werden können, auf mehrere CPUs verteilt und gleichzeitig bearbeitet. In ECHAM werden z. B. die Berechnungen im Gitterpunktraum nach Breitenkreispaaaren parallelisiert, d. h. eine CPU berechnet jeweils alle Gitterpunkte, die auf demselben Breitenkreis liegen. In ATTILA wird zusätzlich noch nach den Luftpaketen parallelisiert, was numerisch sehr effektiv ist, weil sich die Pakete wegen ihrer großen Anzahl sehr gleichmäßig auf die CPUs verteilen lassen.

Während dabei die benötigte CPU-Zeit t_C gleichbleibt bzw. sich wegen entstehender Overheadkosten sogar etwas erhöht, reduziert sich die Wartezeit t_W für den Benutzer (“Wallclock-Time”) erheblich. Der Beschleunigungsfaktor $S = t_C/t_W$ (“Speedup”) kann dabei unter Benutzung von N CPUs höchstens N betragen, allerdings nur, wenn keine Overheadkosten entstehen und das Programm zu 100% parallelisierbar ist. Dies ist in der Praxis nicht der Fall, und das Gesetz von Amdahl gibt an, welcher Beschleunigungsfaktor S_{\max} maximal erwartet werden kann, wenn der Programmcode nur zu einem Anteil f_p parallelisiert werden kann (vgl. Cray, 1993, S. 137). Dann beträgt die Laufzeit t_W nämlich mindestens

$$t_W \geq (1 - f_p) \cdot t_C + \frac{f_p}{N} \cdot t_C,$$

so dass

$$S_{\max} = \frac{1}{1 - f_p + \frac{f_p}{N}}$$

gilt. Unter realistischen Bedingungen ergibt sich jedoch

$$S_{\text{real}} = \frac{1}{1 - f_p + \frac{f_p}{\tilde{N}} \cdot (1 + O)},$$

wobei O die durch die Parallelisierung verursachten Overheadkosten bezeichnet, und \tilde{N} die durchschnittliche Anzahl der vom System zur Verfügung gestellten *und vom Programm nutzbaren* CPUs darstellt (vgl. Cray, 1993, S. 176).

Die Bedeutung von Amdahls Gesetz liegt darin, dass es anschaulich klar macht, wie essenziell wichtig es ist, ein Programm möglichst vollständig zu parallelisieren. Ein zu 96% paralleler Code ist z. B. auf 16 CPUs lediglich 10-mal schneller als auf 1 CPU,

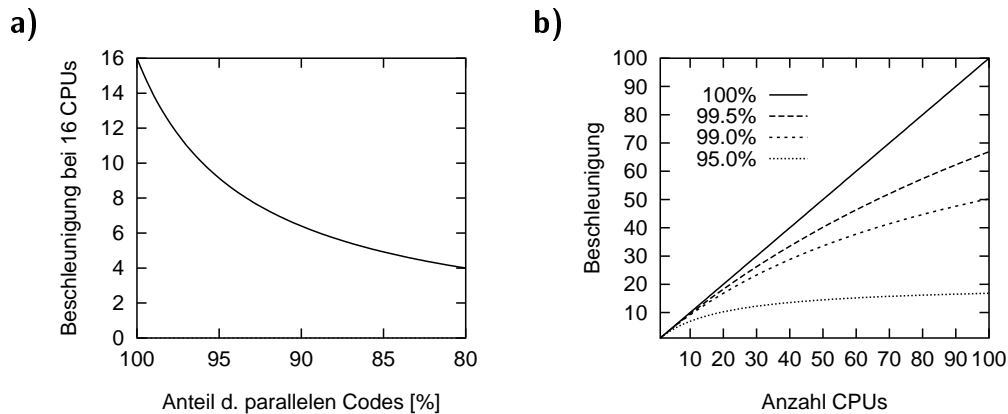


Abbildung D.1: Das Gesetz von Amdahl, siehe Text für Details. a) Maximaler Beschleunigungsfaktor S_{\max} bei 16 CPUs in Abhängigkeit vom Anteil f_p des parallelisierbaren Codes. b) Maximaler Beschleunigungsfaktor S_{\max} in Abhängigkeit von der Anzahl N der benutzten CPUs für verschiedene Werte von f_p .

d. h., verglichen mit einem vollständig parallelisierbaren Code müssen hier 6, also 60% mehr CPUs eingesetzt werden, um die gleiche Geschwindigkeit zu erreichen (siehe Abbildung D.1a). Rechnet man auf Hochleistungs-Parallelrechnern, die zum Teil aus 100 und mehr CPUs bestehen, so gewinnt die Parallelisierbarkeit eines Codes an entscheidender Bedeutung. Sogar ein zu 99% paralleler Code erreicht auf 100 CPUs nur einen Beschleunigungsfaktor von 50, und bei einem zu 95% parallelen Code ist der Einsatz von mehr als 20 CPUs kaum gerechtfertigt (siehe Abbildung D.1b).

Im Hinblick auf zukünftige Entwicklungen wird es daher immer wichtiger, möglichst vollständig parallelisierbare Programmcodes zur Verfügung zu haben. Der Code von ATTILA stellt dazu einen Schritt in diese Richtung dar.

E Theoretische Grundlagen zum Alter der Luft

Im Folgenden werden die wichtigsten theoretischen Grundlagen zur Behandlung des Alters der stratosphärischen Luft dargelegt. Es wird gezeigt, wie das Altersspektrum als eine Greensche Funktion interpretiert werden kann, und wie Spurenstoffmessungen zur Berechnung des mittleren Alters herangezogen werden können. Für eine ausführlichere Darstellung sei dabei auf Hall und Plumb (1994) verwiesen. Ferner wird für den Spurenstoff SF_6 eine Fehlerabschätzung für das berechnete Alter der Luft unter Berücksichtigung verschiedener Fehlerquellen durchgeführt.

E.1 Theorie

Es sei c das Massenmischungsverhältnis eines Spurenstoffes und \mathcal{L} der (lineare) Differentialoperator, der den Transport dieses Spurenstoffes in der Stratosphäre beschreibt. Der zeitliche Verlauf von c wird dann durch die Differentialgleichung

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \mathcal{L}(c) = 0 \quad (\text{E.1})$$

beschrieben (im einfachen Fall der 1-dimensionalen Advektion ist z. B. $\mathcal{L} = u\partial/\partial x$). Ferner sei $G_{\mathcal{R}}$ die Greensche Funktion zur obigen Gleichung E.1 unter der Randbedingung, dass die Konzentration $c_{\mathcal{R}}$ in einer bestimmten Region \mathcal{R} fest vorgeschrieben ist. Das heißt, ist die Randbedingung eine δ -Funktion

$$c_{\mathcal{R}}(t) = c_0 \cdot \delta(t - t_0), \quad (\text{E.2})$$

so ist

$$c(\vec{r}, t) = c_0 \cdot G_{\mathcal{R}}(\vec{r}, t - t_0) \quad (\text{E.3})$$

eine Lösung der obigen Differentialgleichung E.1 unter dieser Randbedingung.

Ist nun $c_{\mathcal{R}}$ beliebig vorgegeben mit $c_{\mathcal{R}}(t) = 0$ für alle $t < 0$, so gilt

$$c_{\mathcal{R}}(t) = \int_0^t c_{\mathcal{R}}(t') \delta(t - t') dt' \quad (\text{E.4})$$

und wegen der Linearität von \mathcal{L} ist dann

$$c(\vec{r}, t) = \int_0^t c_{\mathcal{R}}(t - t') G_{\mathcal{R}}(\vec{r}, t') dt' \quad (\text{E.5})$$

eine Lösung der Differentialgleichung E.1 unter der vorgegebenen Randbedingung. Für einen Spurenstoff ohne Senke ist physikalisch anschaulich klar, dass unter der Randbedingung $c_{\mathcal{R}}(t) = 1$ für alle $t \geq 0$ die Lösung an allen Orten mit der Zeit gegen 1 konvergieren muss, weshalb in diesem Falle gilt:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} c(\vec{r}, t) = \int_0^{\infty} G_{\mathcal{R}}(\vec{r}, t') dt' = 1 \quad \text{für alle } \vec{r} \quad (\text{E.6})$$

In unserem Fall ist \mathcal{R} die tropische⁴⁷ Tropopause. Stellt man sich vor, dass ein Luftpaket in der Stratosphäre aus vielen “irreduziblen” Komponenten besteht, die seit Eintritt in die Stratosphäre (durch die tropische Tropopause) verschieden lange Zeiten unterwegs waren, so lässt sich die Greensche Funktion $G_{\mathcal{R}}$ in Anbetracht der Gleichung E.5 so interpretieren: $G_{\mathcal{R}}(\vec{r}, t') dt'$ ist der Massenanteil der irreduziblen Komponenten im Luftpaket (bei \vec{r}), die eine Zeit $\tilde{t} \in [t'; t' + dt']$ seit Eintritt in die Stratosphäre unterwegs waren und deshalb die Konzentration $c_{\mathcal{R}}(t - t')$ tragen. In diesem Sinne ist $G_{\mathcal{R}}$ also mit dem Altersspektrum zu identifizieren, und das erste Moment bzw. den Erwartungswert dieser Verteilung

$$\Gamma(\vec{r}) = \int_0^{\infty} t' G_{\mathcal{R}}(\vec{r}, t') dt' \quad (\text{E.7})$$

erkennt man leicht als das mittlere Alter eines Luftpaketes bei \vec{r} .

E.2 Berechnung des mittleren Alters mittels Tracer

Für einen Spurenstoff, der keine Senke in der Stratosphäre besitzt und dessen Konzentration an der tropischen Tropopause linear mit der Zeit ansteigt ($c_{\mathcal{R}}(t) = \beta t$, für alle $t \geq 0$), gilt nach Gleichung E.5:

$$c(\vec{r}, t) = \int_0^t \beta(t - t') G_{\mathcal{R}}(\vec{r}, t') dt' \quad (\text{E.8})$$

⁴⁷Streng genommen müsste man für \mathcal{R} die gesamte Tropopause nehmen, damit Gleichung E.6 überall in der Stratosphäre gültig ist. Da aber Luft die Stratosphäre hauptsächlich über die tropische Tropopause betritt, kann man sich in guter Näherung auf diese Region beschränken. Berechnet man das Alter der Luft mittels eines Tracers (nächster Abschnitt) und besitzt dieser an der gesamten Tropopause ungefähr das gleiche Massenmischungsverhältnis, so ist diese Einschränkung kaum relevant.

Für $t \rightarrow \infty$ konvergiert dieser Ausdruck nach Gleichung E.6 und E.7 gegen

$$\lim_{t \rightarrow \infty} c(\vec{r}, t) = \beta t - \beta \Gamma(\vec{r}) = c_{\mathcal{R}}(t - \Gamma(\vec{r})). \quad (\text{E.9})$$

Das mittlere Alter Γ ist also genau die Zeit, mit der die Konzentration an einem bestimmten Ort der Konzentration an der tropischen Tropopause hinterher hinkt (falls der lineare Anstieg schon hinreichend lange andauerte).

E.3 Fehlerabschätzung für SF₆

Der Spurenstoff SF₆ erfüllt näherungsweise die Anforderungen, um aus den stratosphärischen Konzentrationen das mittlere Alter herzuleiten. Dabei gibt es im Wesentlichen drei Fehlerquellen:

1. SF₆ besitzt eine (noch weitgehend unverstandene) Senke in der Mesosphäre. Der Einfluss dieser Senke auf die Berechnung des mittleren Alters wurde von Hall und Waugh (1998) untersucht, wonach eine Überschätzung des Alters in hohen Breiten um bis zu 65% möglich ist. Dieser Fehler soll hier nicht weiter untersucht werden, da hierzu ein Modell der mittleren Atmosphäre und eine genauere Kenntnis der Art und Stärke der Senke nötig wäre.
2. Der Anstieg von SF₆ in der Troposphäre ist nicht linear, sondern leicht quadratisch. Der Einfluss dieses Effekts wurde bereits von Volk et al. (1997) untersucht, und wird hier durch explizite, Lagrangesche Berechnungen ergänzt.
3. Die Beziehung $c(\vec{r}, t) = c_{\mathcal{R}}(t - \Gamma(\vec{r}))$ gilt nur dann näherungsweise gut, wenn der lineare Anstieg an der Tropopause schon hinreichend lange andauerte. Da aber Modellrechnungen zum Spurenstofftransport meist nur für einige Jahre durchgeführt werden, ist auch von dieser Näherung ein Fehler zu erwarten. Bislang wurde dieser Fehler nicht untersucht; die von ATTILA gelieferten Altersspektren eignen sich hingegen sehr gut für eine Abschätzung diesen Fehlers.

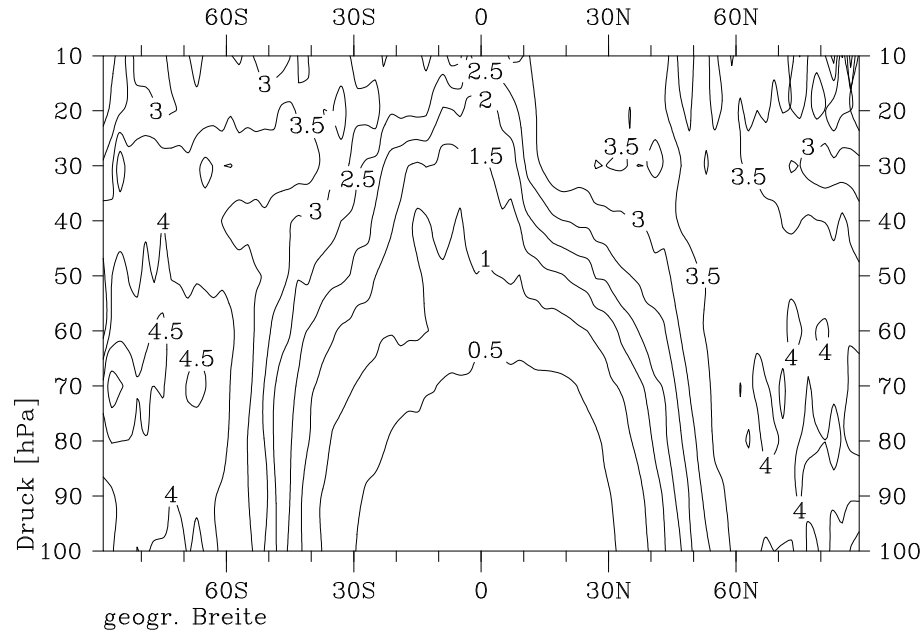


Abbildung E.1: Das zweite Moment $\Delta^2(\vec{r})$ des Altersspektrums wie in Gleichung E.12 definiert. Die Altersspektren wurden dabei über 10 Winter mittels Trajektorien berechnet. Um künstliches Rauschen an der Tropopause zu unterdrücken, wurden die “Uhren” in den Luftpaketen jeweils in der Grenzschicht am Boden und nicht an der Tropopause zurückgestellt. Dadurch ist lediglich das gesamte Spektrum um $\delta\Gamma$ verschoben, ändert aber nichts an Δ^2 . Einheit: a^2 .

E.3.1 Fehler durch quadratischen Anstieg

Die global gemittelte Bodenkonzentration von SF₆ zeigt einen quadratischen Anstieg:

$$c_0(t) = \alpha(t - 1996)^2 + \beta(t - 1996) + \gamma \quad [\text{pptv}], \quad (\text{E.10})$$

mit

$$\alpha = 0.003804, \quad \beta = 0.2326, \quad \gamma = 3.5448.$$

Einsetzen in Gleichung E.5 und Grenzübergang $t \rightarrow \infty$ liefern

$$c(\vec{r}, t) = c_0(t - \Gamma(\vec{r}) - \delta\Gamma) + \alpha\Delta^2(\vec{r}), \quad \text{wobei} \quad (\text{E.11})$$

$$\Delta^2(\vec{r}) = \int_0^\infty (t' - \Gamma(\vec{r}))^2 \cdot G(\vec{r}, t') dt' \quad (\text{E.12})$$

das zweite Moment des Altersspektrums ist, und $\delta\Gamma$ die Zeit bezeichnet, mit der die Konzentration an der tropischen Tropopause der global gemittelten Bodenkonzentration hinterher hinkt.

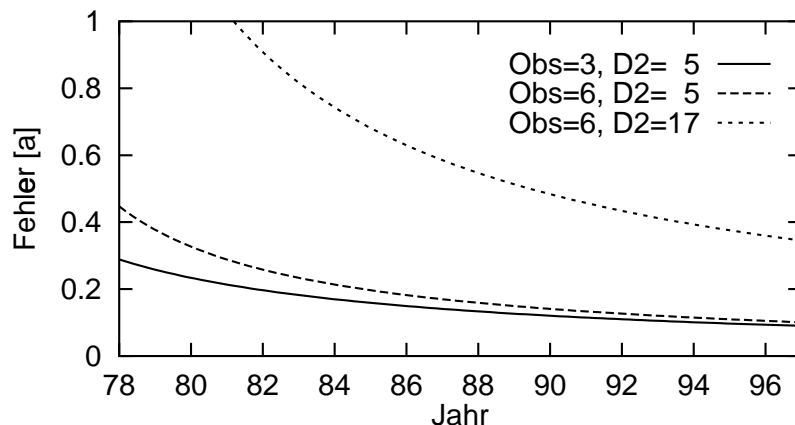


Abbildung E.2: Fehler $\Gamma_{\text{Real}} - \Gamma_{\text{Obs}}$ (Gleichung E.13 und E.14), der bei der Berechnung des mittleren Alters anhand von SF_6 -Messungen durch den quadratischen Anstieg von SF_6 verursacht wird, in Abhängigkeit vom Zeitpunkt der Messung. Es sind mehrere Kurven für verschiedene Werte von Γ_{Obs} (“Obs”) und Δ^2 (“D2”) gezeigt. Die Werte von Δ^2 sind jeweils (obere) Abschätzungen von ATTILA bzw. Volk et al. (1997), siehe Text. Einheit: a.

Volk et al. (1997) nahmen aus Modellrechnungen einen konstanten Proportionalitätsfaktor $2\Lambda = \Delta^2/(\Gamma + \delta\Gamma)$ an, und berechneten einen Fehler von ca. 0.5 Jahren bei 6 Jahre alten Luftmassen.⁴⁸

In Abbildung E.1 ist Δ^2 gezeigt, wie es von ATTILA mittels Trajektorien berechnet wird. In den Tropen ist Δ^2 ungefähr proportional zum mittleren Alter Γ , was jedoch in den Extratropen nicht mehr der Fall ist (vgl. Abbildung 4.2, Seite 89). Die absoluten Werte von Δ^2 sind dabei mit maximal 5 a^2 um einiges kleiner als die von Volk et al. (1997), die Λ mit ca. 1.25 Jahren abschätzten und somit für z. B. 6 Jahre alte Luftmassen auf einen Wert von $\Delta^2 = 17 \text{ a}^2$ kommen.⁴⁹

Für die Fehlerabschätzung betrachte man nun folgende Situation: Wird zu einem Zeitpunkt t an einem bestimmten Ort das Alter Γ_{Obs} gemessen, so bedeutet dies die Messung der Konzentration

$$c = c_0(t - \Gamma_{\text{Obs}} - \delta\Gamma). \quad (\text{E.13})$$

Das wahre mittlere Alter Γ_{Real} muss aber aus Gleichung E.11 bestimmt werden:

$$\Gamma_{\text{Real}} = t - c_0^{-1}(c - \alpha\Delta^2) - \delta\Gamma \geq \Gamma_{\text{Obs}} = t - c_0^{-1}(c) - \delta\Gamma \quad (\text{E.14})$$

⁴⁸Das wahre Alter wird dabei *unterschätzt*.

⁴⁹Für $\delta\Gamma$ wurde dabei ein Wert von 0.8 a benutzt (Volk et al., 1997).

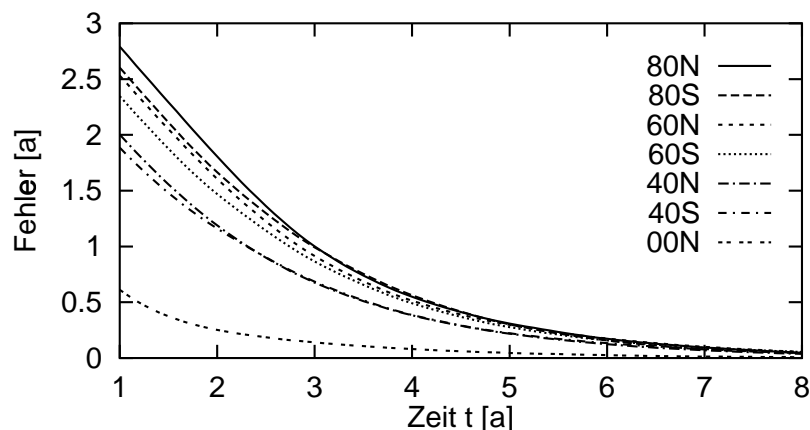


Abbildung E.3: Fehler $\Gamma - \tilde{\Gamma}$ (Gleichung E.16) für 25 hPa und für verschiedene Breiten. Das Altersspektrum wurde dabei über 10 Winter mit ATTILA anhand von Trajektorien berechnet, siehe Text. Einheit: a.

In Abbildung E.2 ist der Fehler $\Gamma_{\text{Real}} - \Gamma_{\text{Obs}}$ in Abhängigkeit vom Zeitpunkt t der Messung für verschiedene Werte von Γ_{Obs} und Δ^2 dargestellt. Dabei fällt auf, dass der Fehler um so kleiner ist, je später die Messung stattfindet. Dies ist aber unmittelbar einzusehen, wenn man bedenkt, dass ein Parabelabschnitt von x bis $x + \Delta x$ bei fester Breite Δx um so mehr einer Geraden ähnelt, je größer x ist. Bedingt durch die von ATTILA geringer berechneten Werte von Δ^2 ist der abgeschätzte Fehler kleiner als der von Volk et al. (1997) und beträgt weniger als 2 Monate für hinreichend späte Messungen.

E.3.2 Fehler durch mangelnde Konvergenz

Berechnet man zum Zeitpunkt t die Zeit $\tilde{\Gamma}$ als die Zeit, mit der die Konzentration an einem bestimmten Ort der Konzentration an der tropischen Tropopause hinterher hinkt, so gilt für einen linear ansteigenden Spurenstoff nach Gleichung E.8 streng genommen

$$\tilde{\Gamma} = t \cdot \left(1 - \int_0^t G(t') dt' \right) + \int_0^t t' G(t') dt'. \quad (\text{E.15})$$

Für $t \rightarrow \infty$ gilt dann $\tilde{\Gamma} \rightarrow \Gamma$. Für endliches t wird das wahre Alter ebenfalls unterschätzt, und zwar um

$$\Gamma - \tilde{\Gamma} = \int_t^\infty t' G(t') dt' - t \cdot \int_t^\infty G(t') dt' \geq 0. \quad (\text{E.16})$$

Der Fehler ist dabei um so größer, je größer der Beitrag von Zeiten $\geq t$ zum Altersspektrum ist, also je breiter das Spektrum ist. Unter Benutzung der in Kapitel 4 berechneten Altersspektren ist in Abbildung E.3 die Größe $\Gamma - \tilde{\Gamma}$ für 25 hPa und verschiedene Breiten in Abhängigkeit von t gezeigt. Wie erwartet, ist der Fehler in hohen Breiten am größten. Er fällt aber mit t sehr schnell ab, so dass das wahre mittlere Alter ab $t \geq 5$ a um nicht mehr als ein halbes Jahr unterschätzt wird.

Symbole

A_i	Skala der turbulenten Windschwankungen ($i = x, y, \eta$)
E	globale Emissionsrate
G	Greensche Funktion (hier: Altersspektrum)
K_h	horizontaler Diffusionskoeffizient
K_v	vertikaler Diffusionskoeffizient
L	lokale Senkenprozesse
N	Anzahl der benutzten CPUs
O	Durch Parallelisierung verursachter Overhead in der CPU-Zeit
$O(h)$	Landau-Symbol
P	lokale Quellenprozesse
$P(X)$	Polynom
$P(\square)$	Wahrscheinlichkeit für das Ereignis \square
R_{\max}	maximale Großkreisdistanz
R_σ	Glättungsparameter
Ri	Richardson-Zahl
Ri_m	“feuchte” Richardson-Zahl
S	horizontale Windscherung
S_{\max}	maximaler Beschleunigungsfaktor beim parallelen Rechnen
S_{real}	realistischer Beschleunigungsfaktor beim parallelen Rechnen
T	Temperatur
X_i	gleichverteilte Zufallsvariable ($i = x, y, \eta$)
a	Erdradius ($a = 6370$ km)
a_{box}	Fläche eines ECHAM-Gitterquadrates
c	Massenmischungsverhältnis eines Spurenstoffes in einem Luftpaket
\bar{c}	durchschnittliches Massenmischungsverhältnis in einer Gitterbox
c_{box}	Massenmischungsverhältnis eines Spurenstoffes in einer Gitterbox
c_p	spezifische Wärmekapazität für trockene Luft bei konst. Druck ($c_p = 1005$ J/(kg K))
c_{smooth}	geglättete Massenmischungsverhältnisse
d	Mischungsparameter
f_p	Anteil des parallelisierbaren Codes (bzgl. der CPU-Zeit)

g	Schwerebeschleunigung der Erde ($g = 9.81 \text{ m/s}^2$)
k	Diffusionskonstante nach Smagorinsky (1963)
k_{BL}	unterste Modellschicht in der freien Atmosphäre
m	Masse eines Spurenstoffes in einer Gitterbox
m_{box}	Masse einer Gitterbox
m_{cell}	Masse eines Lagrangeschen Luftpaketes (konstant)
n	Anzahl der Luftpakete in einer Gitterbox
p	Druck
p_s	Bodendruck
\vec{r}	Ortsvektor
r_d	Großkreisdistanz
t	Zeit
t_C	benötigte CPU-Zeit eines Programmes
t_W	Laufzeit ("Wallclock-Time") eines Programmes
\vec{u}	Windfeld
\vec{u}^{RK4}	vom Runge-Kutta-Schema berechneter Wind
z	Höhe über dem Boden
z_{BL}	Höhe der Grenzschicht
Γ	mittleres Alter eines stratosphärischen Luftpaketes
Δ^2	Breite (zweites zentrales Moment) des Altersspektrums
Δm_{ijk}	Änderung der Masse eines Spurenstoffes in einer Gitterbox
Δt	Zeitschritt
$\Delta \lambda$	Maschenweite des Modellgitters
$\delta(x)$	δ -Funktion
$\delta\Gamma$	Zeit, die ein Signal vom Boden bis zur tropischen Tropopause benötigt
η	hybride Vertikalkoordinate in ECHAM
η_{BL}	Höhe der Grenzschicht
η_+	zusätzliche Höhe zur Grenzschichthöhe
θ	potentielle Temperatur
λ	Wellenlänge
ρ	Dichte
σ	vertikale Koordinate, definiert als $\sigma = p/p_s$
σ_0	Standardabweichung einer Gaußschen Normalverteilung

τ	Anpassungszeit
$\tau_{1/2}$	Halbwertszeit
ϕ	geographische Breite
∇	dreidimensionaler Nabla-Operator
\mathcal{L}	linearer Differentialoperator
d/dt	totales Zeitdifferential
$\partial/\partial t$	partielle Zeitableitung
$f'(x)$	erste Ableitung der Funktion $f(x)$
exp	Exponentialfunktion (Basis e)
ln	natürlicher Logarithmus (Basis e)
min	Minimum
\square_x	(Index für) zonale Komponente
\square_y	(Index für) meridionale Komponente
\square_η	(Index für) vertikale Komponente

Abkürzungen

ATTILA	<u>A</u> tmospheric <u>T</u> racer <u>T</u> ransport in a <u>L</u> agrangian Model Lagrangesches Transportschema für passive Spurenstoffe in ECHAM
BLAST	<u>B</u> romine <u>L</u> atitudinal <u>A</u> ir- <u>S</u> ea <u>T</u> ransect Project
Bq	<u>B</u> ecquerel, Anzahl der radioaktiven Zerfälle pro Sekunde
¹² C	Kohlenstoff
¹⁴ C	Radioaktives Kohlenstoffisotop-14
CCM	NCAR <u>C</u> ommunity <u>C</u> limate <u>M</u> odel
Ci	<u>C</u> urie, Einheit für den radioaktiven Zerfall (1 Ci = Aktivität von 1 g reinen ²²⁶ Ra $\approx 3.7 \cdot 10^{10}$ Bq)
CLaMS	<u>C</u> hemical <u>L</u> agrangian <u>M</u> odel of the <u>S</u> tratosphere
CMDL	<u>C</u> limate <u>M</u> onitoring and <u>D</u> iagnostics <u>L</u> aboratory
CO ₂	Kohlendioxid
CPU	<u>C</u> entral <u>P</u> rocessing <u>U</u> nit
CTM	<u>C</u> hemie- <u>T</u> ransport- <u>M</u> odell
DJF	Mittel über die Monate <u>D</u> ezember, <u>J</u> anuar, <u>F</u> ebruar
DKRZ	<u>D</u> eutsches <u>K</u> limarechenzentrum
DOE	<u>D</u> epartment of <u>E</u> nergy (U.S.A.)
ECHAM	Modell des <u>E</u> CMWF, <u>H</u> amburger Version
ECMWF	<u>E</u> uropean <u>C</u> entre for <u>M</u> edium- <u>R</u> ange <u>W</u> eather <u>F</u> orecasts
EML	<u>E</u> nvironmental <u>M</u> easurements <u>L</u> aboratory
ETEX	<u>E</u> uropean <u>T</u> racer <u>E</u> xperiment
FCKW	<u>F</u> luor- <u>C</u> hlor- <u>K</u> ohlenwasserstoff
GCM	<u>G</u> eneral <u>C</u> irculation <u>M</u> odel
GEOS	<u>G</u> oddard <u>E</u> arth <u>O</u> bservation <u>S</u> ystem
GFDL	<u>G</u> eophysical <u>F</u> luid <u>D</u> ynamics <u>L</u> aboratory
GWP	<u>G</u> lobal <u>W</u> arming <u>P</u> otential
H ₂	Wasserstoff
H ₂ O	Wasser
HALOE	<u>H</u> alogen <u>O</u> ccultation <u>E</u> xperiment
IPCC	<u>I</u> ntergovernmental <u>P</u> anel on <u>C</u> limate <u>C</u> hange
ITCZ	<u>I</u> ntertropical <u>C</u> onvergence <u>Z</u> one
JJA	Mittel über die Monate <u>J</u> uni, <u>J</u> uli, <u>A</u> ugust

KAO	<u>K</u> uiper <u>A</u> irborne <u>O</u> bservatory
LPDM	<u>L</u> agrangian <u>P</u> article <u>D</u> ispersion <u>M</u> odel
MADE	<u>M</u> odal <u>A</u> erosol <u>D</u> ynamics Model for <u>E</u> urope
MAM	Mittel über die Monate <u>M</u> ärz, <u>A</u> pril, <u>M</u> ai
MLO	<u>M</u> auna <u>L</u> oa <u>O</u> bservatory
NASA	<u>N</u> ational <u>A</u> eronautics and <u>S</u> pace <u>A</u> dministration
NCAR	<u>N</u> ational <u>C</u> enter for <u>A</u> tmospheric <u>R</u> esearch
NOAA	<u>N</u> ational <u>O</u> ceanic and <u>A</u> tmospheric <u>A</u> dministration
N ₂ O	Lachgas
NO _x	(NO + NO ₂) Stickoxide
O ₃	Ozon
²¹⁰ Pb	Blei-210
PVU	<u>P</u> otential <u>V</u> orticity <u>U</u> nit, 1 PVU = 10 ⁻⁶ Km ² /kg/s
²²⁶ Ra	Radium-226
²²⁰ Rn	Thoron
²²² Rn	Radon-222
SCM	<u>S</u> tandard <u>C</u> ubic <u>M</u> etre, 1 m ³ Luft unter Standardbedingungen (Temperatur 273.15 K, Druck 1013.25 hPa; 1 SCM ≈ 1.3 kg)
SF ₆	Schwefelhexafluorid
SKYHI	Globales Zirkulationsmodell des GFDL
SLT	<u>S</u> emi- <u>L</u> agrangesches <u>T</u> ransportschema
SON	Mittel über die Monate <u>S</u> eptember, <u>O</u> ktober, <u>N</u> ovember
STOCHEM	Am UKMO Bracknell entwickeltes Lagrangesches <u>C</u> hemie- Transport-Modell, das in früheren Versionen auf einem <u>s</u> tochastischen Ansatz beruhte
TransCom	Atmospheric Tracer <u>T</u> ransport Model <u>I</u> nter <u>c</u> omparison Project
²³⁸ U	Uran-238
UGAMP	<u>U</u> .K. Universities' <u>G</u> lobal <u>A</u> tmospheric <u>M</u> odelling <u>P</u> rogramme
UKMO	<u>U</u> nited <u>K</u> ingdom <u>M</u> eteorological <u>O</u> ffice
WCRP	<u>W</u> orld <u>C</u> limate <u>R</u> esearch <u>P</u> rogramme
WMO	<u>W</u> orld <u>M</u> eteorological <u>O</u> rganization

Literaturverzeichnis

- ACKERMANN, I.J., H. HASS, M. MEMMESHEIMER, A. EBEL, F.S. BINKOWSKI und U. SHANKAR, 1998: Modal Aerosol Dynamics Model for Europe: Development and First Applications, *Atmos. Environ.* **32**, No. 17, 2981–2999.
- APPENZELLER, C., J.R. HOLTON und K.H. ROSENLOF, 1996: Seasonal Variation of Mass Transport Across the Tropopause, *J. Geophys. Res.* **101**, No. D10, 15071–15078.
- ASSELIN, R., 1972: Frequency Filter for Time Integrations, *Mon. Wea. Rev.* **100**, 487–490.
- ATHERTON, C.S., S. SILLIMAN und J. WALTON, 1996: Three-Dimensional Global Modeling Studies of the Transport and Photochemistry Over the North Atlantic Ocean, *J. Geophys. Res.* **101**, No. D22, 29289–29304.
- BALKANSKI, Y.J., D.J. JACOB, G.M. GARDNER, W.M. GRAUSTEIN und K.K. TURKIAN, 1993: Transport and Residence Times of Continental Aerosols Inferred From a Global Three-Dimensional Simulation of ^{210}Pb , *J. Geophys. Res.* **98**, 20573–20586.
- BISCHOF, W., R. BORCHERS, P. FABIAN und B.C. KRÜGER, 1985: Increased Concentration and Vertical Distribution of Carbon Dioxide in the Stratosphere, *Nature* **316**, 708–710.
- BOERING, K.A., S.C. WOFSY, B.C. DAUBE, H.R. SCHNEIDER, M. LOEWENSTEIN, J.R. PODOLSKE und T.J. CONWAY, 1996: Stratospheric Mean Ages and Transport Rates from Observations of Carbon Dioxide and Nitrous Oxide, *Science* **274**, 1340–1343.
- BOJKOV, R.D. und V.E. FIOLETOV, 1995: Estimating the Global Ozone Characteristics During the Last 30 Years, *J. Geophys. Res.* **100**, No. D8, 16537–16551.
- BOSCH, K., 1996: Großes Lehrbuch der Statistik, R. Oldenbourg Verlag München Wien.
- BRASSEUR, G.P., R.A. COX, D. HAUGLUSTAIN, I. ISAKSEN, J. LELIEVELD, D.H. LISTER, R. SAUSEN, U. SCHUMANN, A. WAHNER und P. WIESEN, 1998: European Scientific Assessment of the Atmospheric Effects of Aircraft Emissions, *Atmos. Environ.* **32**, No. 13, 2329–2418.
- BREWER, A.W., 1949: Evidence for a World Circulation Provided by the Measurements of Helium and Water Vapour Distribution in the Stratosphere, *Q. J. R. Met. Soc.* **75**, 351–363.
- BRINKOP, S. und E. ROECKNER, 1995: Sensitivity of a General Circulation Model to Parameterizations of Cloud-Turbulence Interactions in the Atmospheric Boundary Layer, *Tellus* **47**, Series A, 197–220.
- BRINKOP, S. und R. SAUSEN, 1996: A Modified Mass Flux Scheme for Convection Which Maintains Positive Tracer Concentrations, *Report No. 67*, ISSN 0943-4771, Institut für Physik der Atmosphäre, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. (DLR), Oberpfaffenhofen.
- BRINKOP, S. und R. SAUSEN, 1997: A Finite Difference Approximation for Convective Transports Which Maintains Positive Tracer Concentrations, *Beitr. Phys. Atmosph.*

- 70, No. 3, 245–248.
- CHEMICAL RUBBER COMPANY, 1986: *Handbook of Chemistry and Physics, 66th edition* (ed. R.C. Weast), Cleveland, Ohio.
- CHEN, C.T. und E. ROECKNER, 1996: Validation of the Earth Radiation Budget As Simulated by the Max-Planck-Institute for Meteorology General Circulation Model ECHAM4 Using Satellite Observations of the Earth Radiation Budget Experiment, *J. Geophys. Res.* **101**, No. D2, 4269–4287.
- CHEN, C.T. und E. ROECKNER, 1997: Cloud Simulations With the Max-Planck-Institute for Meteorology General Circulation Model ECHAM4 and Comparison With Observations, *J. Geophys. Res.* **102**, No. D8, 9335–9350.
- CLEMENTS, W.E. und M.H. WILKENING, 1974: Atmospheric Pressure Effects on ^{222}Rn Transport Across the Earth-Air Interface, *J. Geophys. Res.* **79**, No. 33, 5025–5029.
- COLLINS, W.J., D.S. STEVENSON, C.E. JOHNSON und R.G. DERWENT, 1997: Tropospheric Ozone in a Global-Scale Three-Dimensional Lagrangian Model and Its Response to NO_x Emission Controls, *J. Atmos. Chem.* **26**, 223–274.
- COX, B.D., M. BITHELL und L.J. GRAY, 1995: A General Circulation Study of a Tropopause-Folding Event at Middle Latitudes, *Q. J. R. Met. Soc.* **121**, 883–910.
- COX, W.M., R.L. BLANCHARD und B. KAHN, 1970: Relation of Radon Concentration in the Atmosphere to Total Moisture Retention in Soil and Atmospheric Thermal Stability, in: *Radionuclides in the Environment*, Advances in Chemistry Series 93, American Chemical Society, Washington, D.C., pp. 436–446.
- CRAY RESEARCH, INC., 1993: CF77[®] Optimization Guide, SG–3773 6.0, Cray Research Inc.
- CUBASCH, U., K. HASSELMANN, H. HÖCK, E. MAIER-REIMER, U. MIKOLAJEWICZ, B.D. SANTER und R. SAUSEN, 1992: Time-Dependent Greenhouse Warming Computations With a Coupled Ocean-Atmosphere Model, *Climate Dyn.* **8**, 55–69.
- DANILIN, M.Y., D.W. FAHEY, U. SCHUMANN, M.J. PRATHER, J.E. PENNER, M.K.W. KO, D.K. WEISENSTEIN, C.H. JACKMAN, G. PITARI, I. KÖHLER, R. SAUSEN, C.J. WEAVER, A.R. DOUGLASS, P.S. CONNELL, D.E. KINNISON, F.J. DENTENER, E.L. FLEMING, T.K. BERNTSEN, I.S.A. ISAKSEN, J.M. HAYWOOD und B. KÄRCHER, 1998: Aviation Fuel Tracer Simulation: Model Intercomparison and Implications, *Geophys. Res. Lett.* **25**, No. 21, 3947–3950.
- DENNING, A.S., M. HOLZER, K.R. GURNEY, M. HEIMANN, R.M. LAW, P.J. RAYNER, I.Y. FUNG, S.-M. FAN, S. TAGUCHI, P. FRIEDLINGSTEIN, Y. BALKANSKI, J. TAYLOR, M. MAISS und I. LEVIN, 1999: Three-Dimensional Transport and Concentration of SF_6 : A Model Intercomparison Study (TransCom 2), *Tellus* **51**, Series B, 266–297.
- DENTENER, F., J. FEICHTER und A. JEUKEN, 1999: Simulation of the Transport of Radon-222 Using On-Line and Off-Line Global Models at Different Horizontal Resolutions: A Detailed Comparison With Measurements, *Tellus* **51**, Series B, 573–602.
- DKRZ (DEUTSCHES KLIMARECHENZENTRUM), 1992: The ECHAM3 General Circulation Model, *DKRZ Technical Report No. 6*, edited by Modellbetreuungsgruppe, DKRZ, Hamburg.

- DOBSON, G.M.B., A.W. BREWER und B.M. CWILONG, 1946: Meteorology of the Lower Stratosphere, *Proc. R. Soc. London* **A185**, 144–175.
- DOBSON, G.M.B., 1956: Origin and Distribution of the Polyatomic Molecules in the Atmosphere, *Proc. R. Soc. London* **A236**, 187–193.
- VAN DOP, H. und K. NODOP (EDS.), 1998: ETEX, A European Tracer Experiment, *Atmos. Environ.* **32**, No. 24, 4089–4378.
- DUNKERTON, T.J., 1978: On the Mean Meridional Mass Motions of the Stratosphere and Mesosphere, *J. Atmos. Sci.* **35**, 2325–2333.
- EBEL, A., H. ELBERN und A. OBERREUTER, 1993: Stratosphere-Troposphere Air Mass Exchange and Cross-Tropopause Fluxes of Ozone, in: E.V. Thrane, T.A. Blix und D.C. Fritts (eds.), *Coupling Processes in the Lower and Middle Atmosphere*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Netherlands, pp. 49–65.
- EGGER, J., 1996: Comments on “On the ‘Downward Control’ of Extratropical Diabatic Circulations by Eddy-Induced Mean Zonal Forces”, *J. Atmos. Sci.* **53**, No. 14, 2103–2104.
- ELKINS, J.W., D.W. FAHEY, J.M. GILLIGAN, G.S. DUTTON, T.J. BARING, C.M. VOLK, R.E. DUNN, R.C. MYERS, S.A. MONTZKA, P.R. WAMSLEY, A.H. HAYDEN, J.H. BUTLER, T.M. THOMPSON, T.H. SWANSON, E.J. DUGLOKENCY, P.C. NOVELLI, D.F. HURST, J.M. LOBERT, S.J. CICIORA, R.J. MCLAUGHLIN, T.L. THOMPSON, R.H. WINKLER, P.J. FRASER, L.P. STEELE und M.P. LUCARELLI, 1996: Airborne Gas Chromatograph for In Situ Measurements of Long-Lived Species in the Upper Troposphere and Lower Stratosphere, *Geophys. Res. Lett.* **23**, No. 4, 347–350.
- ELUSZKIEWICZ, J., R.S. HEMLER, J.D. MAHLMAN, L. BRUHWILER und L.L. TAKACS, 2000: Sensitivity of Age-of-Air Calculations to the Choice of Advection Scheme, *J. Atmos. Sci.* **57**, No. 19, 3185–3201.
- ETLING, D., 1996: Theoretische Meteorologie, Vieweg-Verlag Braunschweig/Wiesbaden.
- FAY, B., H. GLAAB, I. JACOBSEN und R. SCHRODIN, 1995: Evaluation of Eulerian and Lagrangian Atmospheric Transport Models at the Deutscher Wetterdienst Using ANATEX Surface Tracer Data, *Atmos. Environ.* **29**, No. 18, 2485–2497.
- GARCIA, R.R. und B.A. BOVILLE, 1994: “Downward Control” of the Mean Meridional Circulation and Temperature Distribution of the Polar Winter Stratosphere, *J. Atmos. Sci.* **51**, No. 15, 2238–2245.
- GELLER, L.S., J.W. ELKINS, J.M. LOBERT, A.D. CLARKE, D.F. HURST, J.H. BUTLER und R.C. MYERS, 1997: Tropospheric SF₆: Observed Latitudinal Distribution and Trends, Derived Emissions and Interhemispheric Exchange Time, *Geophys. Res. Lett.* **24**, No. 6, 675–678.
- GEORGE, A.C., 1981: Radon Flux Measurements, in: *USDOE rpt. EML-399*, Environmental Measurements Laboratory, U.S. Dept. of Energy, New York, pp. 207–212.
- GESELL, T.F., 1983: Background Atmospheric ²²²Rn Concentrations Outdoors and Indoors: A Review, *Health Phys.* **45**, 289–302.
- GETTELMAN, A. und A.H. SOBEL, 2000: Direct Diagnoses of Stratosphere-Troposphere Exchange, *J. Atmos. Sci.* **57**, No. 1, 3–16.

- GLAAB, H., B. FAY und I. JACOBSEN, 1998: Evaluation of the Emergency Dispersion Model at the Deutscher Wetterdienst Using ETEX Data, *Atmos. Environ.* **32**, No. 24, 4359–4366.
- GOLD, S., H.W. BARKHAU, B. SHLEIEN und B. KAHN, 1964: Measurement of Naturally Occurring Radionuclides in Air, in: J.A.S. Adams and W.M. Lowder (eds.), *The Natural Radiation Environment*, University of Chicago Press, Chicago, pp. 369–382.
- GRAF, H.F., J. PERLWITZ, I. KIRCHNER und I. SCHULT, 1995: Recent Northern Winter Climate Trends Due to Ozone Changes and Increased Greenhouse Gas Forcing? *Beitr. Phys. Atmosph.* **68**, 233–248.
- GRAHAM, N.E., M. PONATER, T.P. BARNETT, R. WILDE und S. SCHUBERT, 1994: On the Roles of Tropical and Mid-Latitude SSTs in Forcing Interannual to Interdecadal Variability in the Winter Northern Hemisphere Circulation, *J. Climate* **7**, No. 9, 1416–1441.
- GRAUSTEIN, W.C. und K.K. TUREKIAN, 1990: Radon Fluxes From Soils To the Atmosphere Measured by ^{210}Pb - ^{226}Ra Disequilibrium in Soils, *Geophys. Res. Lett.* **17**, 841–844.
- GREWE, V. und M. DAMERIS, 1996: Calculating the Global Mass Exchange between Stratosphere and Troposphere, *Ann. Geophysicae* **14**, 431–442.
- GREWE, V., 1997: Der Einfluss chemischer und dynamischer Prozesse auf die Ozonverteilung der Nordhemisphäre, *Dissertation*, März 1997, Ludwig-Maximilians-Universität, München, erhältlich als: *Forschungsbericht 1997-09*, ISSN 0939-2963, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. (DLR), Köln.
- GREWE, V., M. DAMERIS, R. SAUSEN und B. STEIL, 1998: Impact of Stratospheric Dynamics and Chemistry on Northern Hemisphere Midlatitude Ozone Loss, *J. Geophys. Res.* **103**, No. D19, 25417–25433.
- HACK, J.J., B.A. BOVILLE, B.P. BRIEGLEB, J.T. KIEHL, P.J. RASCH und D.J. WILLIAMSON, 1993: Description of the NCAR Community Climate Model (CCM2), National Center for Atmospheric Research, NCAR TN-382+STR, Boulder, Colorado, 108 Seiten.
- HAGEMANN, F.T., J. GRAY, JR. und L. MACHTA, 1965: Carbon-14 Measurements in the Atmosphere — 1953 to 1964, *Report HASL-159*, Health and Safety Lab., U.S. Atomic Energy Comm., New York.
- HALL, T.M. und R.A. PLUMB, 1994: Age as a Diagnostic of Stratospheric Transport, *J. Geophys. Res.* **99**, No. D1, 1059–1070.
- HALL, T.M. und D.W. WAUGH, 1997: Timescales for the Stratospheric Circulation Derived from Tracers, *J. Geophys. Res.* **102**, No. D7, 8991–9001.
- HALL, T.M. und D.W. WAUGH, 1998: Influence of Nonlocal Chemistry on Tracer Distributions: Inferring the Mean Age of Air from SF_6 , *J. Geophys. Res.* **103**, No. D11, 13327–13336.
- HALL, T.M., D.W. WAUGH, K.A. BOERING und R.A. PLUMB, 1999: Evaluation of Transport in Stratospheric Models, *J. Geophys. Res.* **104**, No. D15, 18815–18839.
- HAMMER, A. und K. HAMMER, 1985: *Physikalische Formeln und Tabellen*, 4. Auflage, J. Lindauer Verlag (Schaefer), München.

- HARNISCH, J., R. BORCHERS, P. FABIAN und M. MAISS, 1996: Tropospheric Trends for CF_4 and C_2F_6 since 1982 Derived From SF_6 Dated Stratospheric Air, *Geophys. Res. Lett.* **23**, No. 10, 1099–1102.
- HARNISCH, J. und A. EISENHAUER, 1998: Natural CF_4 and SF_6 on Earth, *Geophys. Res. Lett.* **25**, No. 13, 2401–2404.
- HARNISCH, J., W. BISCHOF, R. BORCHERS, P. FABIAN und M. MAISS, 1998: A Stratospheric Excess of CO_2 — Due to Tropical Deep Convection?, *Geophys. Res. Lett.* **25**, No. 1, 63–66.
- HARRIES, J.E., J.M. RUSSELL III, A.F. TUCK, L.L. GORDLEY, P. PURCELL, K. STONE, R.M. BEVILACQUA, M. GUNSON, G. NEDOLUHA und W.A. TRAUB, 1996: Validation of Measurements of Water Vapor from the Halogen Occultation Experiment (HALOE), *J. Geophys. Res.* **101**, No. D6, 10205–10216.
- HAYNES, P.H. und M.E. MCINTYRE, 1987: On the Evolution of Vorticity and Potential Vorticity in the Presence of Diabatic Heating and Frictional or Other Forces, *J. Atmos. Sci.* **44**, No. 5, 828–841.
- HAYNES, P.H., C.J. MARKS, M.E. MCINTYRE, T.G. SHEPHERD und K.P. SHINE, 1991: On the “Downward Control” of Extratropical Diabatic Circulations by Eddy-Induced Mean Zonal Forces, *J. Atmos. Sci.* **48**, No. 4, 651–678.
- HAYNES, P.H., M.E. MCINTYRE und T.G. SHEPHERD, 1996: Reply, *J. Atmos. Sci.* **53**, No. 14, 2105–2107.
- HEIN, R., M. DAMERIS, C. SCHNADT, C. LAND, V. GREWE, I. KÖHLER, M. PONATER, R. SAUSEN, B. STEIL, J. LANDGRAF und C. BRÜHL, 2000: Results of an Interactively Coupled Atmospheric Chemistry - General Circulation Model: Comparison with Observations, *Report No. 130*, ISSN 0943-4771, Institut für Physik der Atmosphäre, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. (DLR), Oberpfaffenhofen, revidierte Fassung eingereicht bei *Ann. Geophysicae*.
- HEINZ, S., 1994: A Lagrangian Model for Atmospheric Pollutant Diffusion, *Met. Zeitschrift* **3**, Heft 3, 202-206.
- HESSHAIMER, V., M. HEIMANN und I. LEVIN, 1994: Radiocarbon Evidence for a Smaller Oceanic Carbon Dioxide Sink than Previously Believed, *Nature* **370**, 201–203.
- HOERLING, M.P., T.K. SCHAACK und A.J. LENZEN, 1993: A Global Analysis of Stratospheric-Tropospheric Exchange during Northern Winter, *Mon. Wea. Rev.* **121**, 162–172.
- HOINKA, K.P., 1997: The Tropopause: Discovery, Definition and Demarcation, *Met. Zeitschrift* **6**, Heft 6, 281–303.
- HOLTON, J.R., 1979: An Introduction to Dynamic Meteorology, second edition, Academic Press, London.
- HOLTON, J.R., 1990: On the Global Exchange of Mass between the Stratosphere and Troposphere, *J. Atmos. Sci.* **47**, No. 3, 392–395.
- HOLTON, J.R., P.H. HAYNES, M.E. MCINTYRE, A.R. DOUGLAS, R.B. ROOD und L. PFISTER, 1995: Stratosphere-Troposphere-Exchange, *Rev. Geophys.* **33**, 403–439.
- HOSKINS, B.J., 1991: Towards a PV- θ View of the General Circulation, *Tellus* **43**, Series AB, 27–35.

- HUTTER, A.R., R.J. LARSEN, H. MARING und J.T. MERRILL, 1995: ^{222}Rn at Bermuda and Mauna Loa: Local and Distant Sources, *J. Radioanal. and Nuclear Chemistry* **193**, No. 2, 309–318.
- IPCC (INTERGOVERNMENTAL PANEL ON CLIMATE CHANGE), 1990: *Climate Change: The IPCC Scientific Assessment* (eds. J.T. Houghton, G.J. Jenkins, J.J. Ephraums), Cambridge University Press, New York.
- JACKMAN, C.H., A.R. DOUGLASS, K.F. BRUESKE und S.A. KLEIN, 1991: The Influence of Dynamics on Two-Dimensional Model Results: Simulations of ^{14}C and Stratospheric Aircraft NO_x Injections, *J. Geophys. Res.* **96**, No. D12, 22559–22572.
- JACOB, D.J. und M.J. PRATHER, 1990: Radon-222 as a Test of Convective Transport in a General Circulation Model, *Tellus* **42**, Series B, 118–134.
- JACOB, D.J., M.J. PRATHER, P.J. RASCH, R.-L. SHIA, Y.J. BALKANSKI, S.R. BEAGLEY, D.J. BERGMANN, W.T. BLACKSHEAR, M. BROWN, M. CHIBA, M.P. CHIPPERFIELD, J. DE GRANDPRÉ, J.E. DIGNON, J. FEICHTER, C. GENTHON, W.L. GROSE, P.S. KASIBHATLA, I. KÖHLER, M.A. KRITZ, K. LAW, J.E. PENNER, M. RAMONET, C.E. REEVES, D.A. ROTMAN, D.Z. STOCKWELL, P.F.J. VAN VELTHOVEN, G. VERVER, O. WILD, H. YANG und P. ZIMMERMANN, 1997: Evaluation and Intercomparison of Global Atmospheric Transport Models Using ^{222}Rn and Other Short-Lived Tracers, *J. Geophys. Res.* **102**, No. D5, 5953–5970.
- JEUKEN, A., P. SIEGMUND, L. HEIJBOER, J. FEICHTER und L. BENGTSSON, 1996: On the Potential of Assimilated Meteorological Analysis in a Global Climate Model for the Purpose of Model Validation, *J. Geophys. Res.* **101**, 16939–16950.
- JOHNSON, C.E., W.J. COLLINS, D.S. STEVENSON und R.G. DERWENT, 1999: Relative Roles of Climate and Emissions Changes on Future Tropospheric Oxidant Concentrations, *J. Geophys. Res.* **104**, No. D15, 18631–18645.
- JOHNSON, D.R., A.J. LENZEN, T.H. ZAPOTOCNY und T.K. SCHAACK, 2000: Numerical Uncertainties in the Simulation of Reversible Isentropic Processes and Entropy Conservation, *J. Climate* **13**, No. 21, 3860–3884.
- JOHNSTON, H., 1989: Evaluation of Excess Carbon-14 and Strontium-90 Data for Suitability to Test Two-Dimensional Stratospheric Models, *J. Geophys. Res.* **94**, No. D15, 18485–18493.
- JUCKES, M.N., 2000: The Descent of Tropospheric Air into the Stratosphere, *Q. J. R. Met. Soc.* **126**, No. 562, 319–337.
- KÄRCHER, B., 1999: Aviation-Produced Aerosols and Contrails, *Survey Geophys.* **20**, No. 2, 113–167.
- KÄRCHER, B. und S. SOLOMON, 1999: On the Composition and Optical Extinction of Particles in the Tropopause Region, *J. Geophys. Res.* **104**, No. D22, 27441–27459.
- KIDA, H., 1983: General Circulation of Air Parcels and Transport Characteristics Derived from a Hemispheric GCM, Part 2. Very Long-Term Motions of Air Parcels in the Troposphere and Stratosphere, *J. Met. Soc. Japan* **61**, No. 4, 510–522.
- KJELLSTRÖM, E., J. FEICHTER und G. HOFFMANN, 2000: Transport of SF_6 and $^{14}\text{CO}_2$ in the Atmospheric General Circulation Model ECHAM4, *Tellus* **52**, Series B, 1–18.
- KO, M.K.W., N.D. SZE, W.-C. WANG, G. SHIA, A. GOLDMAN, F.J. MURCRAY, D.G.

- MURCRAY und C.P. RINSLAND, 1993: Atmospheric Sulfur Hexafluoride: Sources, Sinks and Greenhouse Warming, *J. Geophys. Res.* **98**, No. D6, 10499–10507.
- KÖNIGSBERGER, K., 1992: Analysis 1, 2. Auflage, Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- KRITZ, M.A., J.C. LE ROULLEY und E.F. DANIELSEN, 1990: The China Clipper — Fast Advective Transport of Radon-Rich Air From the Asian Boundary Layer to the Upper Troposphere Near California, *Tellus* **42**, Series B, 46–61.
- KRITZ, M.A., S.W. ROSNER und D.Z. STOCKWELL, 1998: Validation of an Off-Line Three-Dimensional Chemical Transport Model Using Observed Radon Profiles, 1. Observations, *J. Geophys. Res.* **103**, No. D7, 8425–8432.
- LAL, D. und B. PETERS, 1962: Cosmic Ray Produced Isotopes and Their Application to Problems in Geophysics, *Progress in Elementary Particle and Cosmic Ray Physics* **6**, Amsterdam, 1–74.
- LAL, D. und B. PETERS, 1967: Cosmic Ray Produced Radioactivity on Earth, in: S. Flugge (ed.), *Encyclopedia of Physics*, Vol. 46/2, Springer Verlag, New York, pp. 551–612.
- LAMARQUE, J.-F. und P.G. HESS, 1994: Cross-Tropopause Mass Exchange and Potential Vorticity Budget in a Simulated Tropopause Folding, *J. Atmos. Sci.* **51**, No. 15, 2246–2269.
- LAMBERT, G., G. POLIAN und D. TAUPIN, 1970: Existence of Periodicity in Radon Concentrations and in the Large-Scale Circulation at Lower Altitudes between 40° and 70° South, *J. Geophys. Res.* **75**, No. 12, 2341–2345.
- LAMBERT, G., G. POLIAN, J. SANAK, B. ARDOUIN, A. BOUISSON, A. JEGOU und J.C. LE ROULLEY, 1982: Cycle du radon et de ses descendants: application à l'étude des échanges troposphère-stratosphère, *Ann. de Géophysique* **38**, No. 4, Paris, 497–531.
- LAND, C., 1999: Untersuchungen zum globalen Spurenstofftransport mit dem Atmosphärenmodell ECHAM4.L39(DLR), *Dissertation*, Mai 1999, Ludwig-Maximilians-Universität, München, erhältlich als: *Forschungsbericht 1999-32*, ISSN 1434-8454, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. (DLR), Köln.
- LAND, C., M. PONATER, R. SAUSEN und E. ROECKNER, 1999: The ECHAM4-L39(DLR) atmosphere GCM, Technical Description and Model Climatology, *Forschungsbericht 1999-31*, ISSN 1434-8454, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. (DLR), Köln.
- LEVIN, I. und V. HESSHAIMER, 1996: Refining of Atmospheric Transport Model Entries by the Globally Observed Passive Tracer Distributions of ⁸⁵Krypton and Sulfur Hexafluoride (SF₆), *J. Geophys. Res.* **101**, No. D11, 16745–16755.
- LI, Y. und J.S. CHANG, 1996: A Three-Dimensional Global Episodic Tracer Transport Model—1. Evaluation of Its Transport Processes by Radon 222 Simulations, *J. Geophys. Res.* **101**, No. D20, 25931–25947.
- LINGENFELTER, R.E. und R. RAMATY, 1970: Astrophysical and Geophysical Variations in ¹⁴C Production, in: I.U. Olsson (ed.), *Radiocarbon Variations and Absolute Chronology*, Wiley Interscience, New York, pp. 513–537.
- LIU, S.C., J.R. MCAFEE und R.J. CICERONE, 1984: Radon-222 and Tropospheric

- Vertical Transport, *J. Geophys. Res.* **89**, No. D5, 7291–7297.
- LUTMAN, E.R., J.A. PYLE, M.P. CHIPPERFIELD, D.J. LARY, I. KILBANE-DAWE, J.W. WATERS und N. LARSEN, 1997: Three-Dimensional Studies of the 1991/1992 Northern Hemisphere Winter Using Domain-Filling Trajectories with Chemistry, *J. Geophys. Res.* **102**, No. D1, 1479–1488.
- MAHOWALD, N.M., P.J. RASCH und R.G. PRINN, 1995: Cumulus Parameterizations in Chemical Transport Models, *J. Geophys. Res.* **100**, No. D12, 26173–26189.
- MAHOWALD, N.M., P.J. RASCH, B.E. EATON, S. WHITTLESTONE und R.G. PRINN, 1997: Transport of ²²²Radon to the Remote Troposphere Using the Model of Atmospheric Transport and Chemistry and Assimilated Winds from ECMWF and the National Center for Environmental Prediction/NCAR, *J. Geophys. Res.* **102**, No. D23, 28139–28151.
- MAHRENHOLZ, P., 1997: Aktuelle und künftige Emissionen treibhauswirksamer fluorierter Verbindungen (HFC, PFC, SF₆) in Deutschland, *Ann. Meteorol.* **34**, 95–96.
- MAISS, M. und I. LEVIN, 1994: Global Increase of SF₆ Observed in the Atmosphere, *Geophys. Res. Lett.* **21**, No. 7, 569–572.
- MAISS, M., L.P. STEELE, R.J. FRANCEY, P.J. FRASER, R.L. LANGENFELDS, N.B.A. TRIVETT und I. LEVIN, 1996: Sulfur Hexafluorid—A Powerful New Atmospheric Tracer, *Atmos. Environ.* **30**, No. 10/11, 1621–1629.
- MANNING, M.R., D.C. LOWE, W.H. MELHUSH, R.J. SPARKS, G. WALLACE, C.A.M. BRENNINKMEIJER und R.C. MCGILL, 1990: The Use of Radiocarbon Measurements in Atmospheric Studies, *Radiocarbon* **32**, No. 1, 37–58.
- MANZINI, E. und J. FEICHTER, 1999: Simulation of the SF₆ Tracer With the Middle Atmosphere MAECHAM4 Model: Aspects of the Large-Scale Transport, *J. Geophys. Res.* **104**, No. D24, 31097–31108.
- MANZINI, E. und N.A. MCFARLANE, 1998: The Effect of Varying the Source Spectrum of a Gravity Wave Parameterization in a Middle Atmosphere General Circulation Model, *J. Geophys. Res.* **103**, No. D24, 31523–31540.
- MARYON, R.H., F.B. SMITH, B.J. CONWAY und D.M. GODDARD, 1991: The U.K. Nuclear Accident Model, *Progress in Nuclear Energy* **26**, No. 2, 85–104.
- MARYON, R.H. und M.J. BEST, 1992: ‘NAME’, ‘ATMES’ and the Boundary Layer Problem, *Met O (PR) Turbulence and Diffusion Note No. 204*, U.K. Met. Office, Bracknell.
- MARYON, R.H. und A.T. BUCKLAND, 1994: Diffusion in a Lagrangian Multiple Particle Model: A Sensitivity Study, *Atmos. Environ.* **28**, No. 12, 2019–2038.
- MCCORMICK, M.P. und R.E. VEIGA, 1992: SAGE II Measurements of Early Pinatubo Aerosols, *Geophys. Res. Lett.* **19**, No. 2, 155–158.
- MENNICKEN R. und E. WAGENFÜHRER, 1977A: Numerische Mathematik 1, *rororo view-eg*, Rowohlt Taschenbuch Verlag GmbH, Reinbek bei Hamburg.
- MENNICKEN R. und E. WAGENFÜHRER, 1977B: Numerische Mathematik 2, *rororo view-eg*, Rowohlt Taschenbuch Verlag GmbH, Reinbek bei Hamburg.
- MERRILL, J.T., M. UETMATSU und R. BLECK, 1989: Meteorological Analysis of Long Range Transport of Mineral Aerosols Over the North Pacific, *J. Geophys. Res.* **94**,

- 8584–8598.
- METHVEN, J., 1997: Offline Trajectories: Calculation and Accuracy, *Technical Report No. 44*, U.K. Universities' Global Atmospheric Modelling Programme (UGAMP), erhältlich unter <http://ugamp.nerc.ac.uk/publica/publica.htm>.
- MISHRA, V.C., C. RANGARAJAN und C.D. EAPEN, 1980: National Radioactivity of the Atmosphere Over the Indian Land Mass, Inside Deep Mines and Over Adjoining Oceans, in: T.F. Gesell and W.M. Lowder (eds.), *Natural Radiation Environment III*, U.S. Department of Energy, Special Symposium Series 51, CONF 780422, pp. 327–346.
- MORRIS, R.A., T.M. MILLER, A.A. VIGGIANO und J.F. PAULSON, 1995: Effects of Electron and Ion Reactions on Atmospheric Lifetimes of Fully Fluorinated Compounds, *J. Geophys. Res.* **100**, No. D1, 1287–1294.
- MOTE, P.W., J.R. HOLTON und B.A. BOVILLE, 1994: Characteristics of Stratosphere-Troposphere Exchange in a General Circulation Model, *J. Geophys. Res.* **99**, No. D8, 16815–16829.
- NAZAROFF, W.W., 1992: Radon Transport From Soil To Air, *Rev. Geophys.* **30**, 137–160.
- NEWELL, R.E. und S. GOULD-STEWART, 1981: A Stratospheric Fountain? *J. Atmos. Sci.* **38**, 2789–2796.
- NYDAL, R. und K. LÖVSETH, 1983: Tracing Bomb ^{14}C in the Atmosphere 1962–1980, *J. Geophys. Res.* **88**, No. C6, 3621–3642.
- OESCHGER, H., U. SIEGENTHALER, U. SCHOTTERER und A. GUGELMANN, 1975: A Box Diffusion Model To Study the Carbon Dioxide Exchange in Nature, *Tellus* **27**, 168–192.
- O'NEILL, A., W.L. GROSE, V.D. POPE, H. MACLEAN und R. SWINBANK, 1994: Evolution of the Stratosphere during Northern Winter 1991/92 as Diagnosed from U.K. Meteorological Office Analyses, *J. Atmos. Sci.* **51**, No. 20, 2800–2817.
- PARK, J.H., M.K.W. KO, C.H. JACKMAN, R.A. PLUMB, J.A. KAYE, K.H. SAGE (EDS.), 1999: Models and Measurements Intercomparison II, *NASA Tech. Publ.*, NASA/TM-1999-209554, National Aeronautics and Space Administration, 494 Seiten.
- PATRA, P.K., S. LAL, B.H. SUBBARAYA, C.H. JACKMAN und P. RAJARATNAM, 1997: Observed Vertical Profile of Sulphur Hexafluoride (SF_6) and Its Atmospheric Applications, *J. Geophys. Res.* **102**, No. D7, 8855–8859.
- PENNER, J.E., C.S. ATHERTON, J. DIGNON, S.J. GHAN, J.J. WALTON und S. HAMEED, 1991: Tropospheric Nitrogen: A Three-Dimensional Study of Sources, Distributions, and Deposition, *J. Geophys. Res.* **96**, No. D1, 959–990.
- PIERREHUMBERT, R.T. und H. YANG, 1993: Global Chaotic Mixing on Isentropic Surfaces, *J. Atmos. Sci.* **50**, No. 15, 2462–2480.
- POLIAN, G., G. LAMBERT, B. ARDOUIN und A. JEGOU, 1986: Long-Range Transport of Continental Radon in Subantarctic and Antarctic Areas, *Tellus* **38**, Series B, 178–189.

- PONATER, M., W. KÖNIG, R. SAUSEN und F. SIELMANN, 1994: Circulation Regime Fluctuations and Their Effect on Intraseasonal Variability in the ECHAM Climate Model, *Tellus* **46**, Series A, 265–285.
- PONATER, M., S. BRINKOP, R. SAUSEN und U. SCHUMANN, 1996: Simulating the Global Atmospheric Response to Aircraft Water Vapour Emissions and Contrails — A First Approach Using a GCM, *Ann. Geophysicae* **14**, 941–960.
- PRESS, W.H., B.P. FLANNERY, S.A. TEUKOLSKY und W.T. VETTERLING, 1990: Numerical Recipes — The Art of Scientific Computing (FORTRAN Version), Cambridge University Press, Cambridge.
- RASCH, P.J. und D.L. WILLIAMSON, 1990A: On Shape-Preserving Interpolation and Semi-Lagrangian Transport, *SIAM J. Sci. Comput.* **11**, No. 4, 656–687.
- RASCH, P.J. und D.L. WILLIAMSON, 1990B: Computational Aspects of Moisture Transport in Global Models of the Atmosphere, *Q. J. R. Met. Soc.* **116**, 1071–1090.
- RAVISHANKARA, A.R., S. SOLOMON, A.A. TURNIPSEED und R.F. WARREN, 1993: Atmospheric Lifetimes of Long-Lived Halogenated Species, *Science* **259**, 194–199.
- READ, W.G., L. FROIDEVAUX und J.W. WATERS, 1993: Microwave Limb Sounder Measurement of Stratospheric SO₂ from the Mt. Pinatubo Volcano, *Geophys. Res. Lett.* **20**, No. 12, 1299–1302.
- RIND, D., J. LERNER, K. SHAH und R. SUOZZO, 1999: Use of On-Line Tracers as a Diagnostic Tool in General Circulation Model Development, 2. Transport Between the Troposphere and Stratosphere, *J. Geophys. Res.* **104**, No. D8, 9151–9167.
- RINSLAND, C.P., L.R. BROWN und C.B. FARMER, 1990: Infrared Spectroscopic Detection of Sulfur Hexafluoride (SF₆) in the Lower Stratosphere and Upper Troposphere, *J. Geophys. Res.* **95**, No. D5, 5577–5585.
- ROECKNER E., K. ARPE, L. BENGTTSSON, 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, *Report No. 93*, ISSN 0937-1060, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- ROECKNER, E., K. ARPE, L. BENGTTSSON, M. CHRISTOPH, M. CLAUSSEN, L. DÜMENIL, M. ESCH, M. GIORGETTA, U. SCHLESE und U. SCHULZWEIDA, 1996: The Atmospheric General Circulation Model ECHAM-4: Model Description and Simulation of Present-Day Climate, *Report No. 218*, ISSN 0937-1060, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- ROECKNER, E., L. BENGTTSSON, J. FEICHTER, J. LELIEVELD und H. RODHE, 1999: Transient Climate Change Simulations with a Coupled Atmosphere-Ocean GCM Including the Tropospheric Sulfur Cycle, *J. Climate* **12**, No. 10, 3004–3032.
- ROEDEL, W., 1994: Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre, 2. Auflage, Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- ROOD, R.B., 1987: Numerical Advection Algorithms and Their Role in Atmospheric Transport and Chemistry Models, *Rev. Geophys.* **25**, No. 1, 71–100.
- ROSENLOF, K.H. und J.R. HOLTON, 1993: Estimates of the Stratospheric Residual Circulation Using the Downward Control Principle, *J. Geophys. Res.* **98**, No. D6,

- 10465–10479.
- ROSENLOF, K.H., 1995: Seasonal Cycle of the Residual Mean Meridional Circulation in the Stratosphere, *J. Geophys. Res.* **100**, No. D3, 5173–5191.
- RUNCA, E., 1992: Basic Lagrangian and Eulerian Modelling of Atmospheric Diffusion, *Atmos. Environ.* **26A**, No. 3, 513–515.
- SAUSEN, R., V. GREWE, I. KÖHLER und M. PONATER, 1999: Klimafaktor Luftfahrt, *Physik in unserer Zeit* **30**, No. 3, 102–107.
- SCHELL, B., 2000: Die Behandlung sekundärer organischer Aerosole in einem komplexen Chemie-Transport-Modell, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln* **135**, Köln.
- SCHERY, S.D. und D.H. GAEDDERT, 1982: Measurements of the Effect of Cyclic Atmospheric Pressure Variation on the Flux of ^{222}Rn From Soil, *Geophys. Res. Lett.* **9**, 835–838.
- SCHERY, S.D., D.H. GAEDDERT und M.H. WILKENING, 1984: Factor Affecting Exhalation of Radon From a Gravelly Sandy Loam, *J. Geophys. Res.* **89**, No. D5, 7299–7309.
- SCHERY, S.D., S. WHITTLESTONE, K.P. HART und S.E. HILL, 1989: The Flux of Radon and Thoron From Australian Soils, *J. Geophys. Res.* **94**, 8567–8576.
- SCHMIDT, U. und A. KHEDIM, 1991: In Situ Measurements of Carbon Dioxide in the Winter Arctic Vortex and at Midlatitudes: An Indicator of the Age of Stratospheric Air, *Geophys. Res. Lett.* **18**, No. 4, 763–766.
- SCHOEBERL, M.R. und G.A. MORRIS, 2000: A Lagrangian Simulation of Supersonic and Subsonic Aircraft Exhaust Emissions, *J. Geophys. Res.* **105**, No. D9, 11833–11839.
- SCHOEBERL, M.R. und P.A. NEWMAN, 1995: A Multiple-Level Trajectory Analysis of Vortex Filaments, *J. Geophys. Res.* **100**, No. D12, 25801–25815.
- SCHULT, I., J. FEICHTER und W.F. COOKE, 1997: Effect of Black Carbon and Sulfate Aerosols on the Global Radiation Budget, *J. Geophys. Res.* **102**, No. D25, 30107–30117.
- SELLERS, P.J., R.E. DICKINSON, D.A. RANDALL, A.K. BETTS, F.G. HALL, J.A. BERRY, G.J. COLLATZ, A.S. DENNING, H.A. MOONEY, C.A. NOBRE, N. SATO, C.B. FIELD, A. HENDERSON-SELLERS, 1997: Modeling the Exchanges of Energy, Water, and Carbon Between Continents and the Atmosphere, *Science* **275**, 502–509.
- SHAW, SIR NAPIER, 1930: Manual of Meteorology, Vol. III: The Physical Processes of Weather, Cambridge University Press, Cambridge, England, 445 S.
- SHIA, R.-L., Y.L. YUNG, M. ALLEN, R.W. ZUREK und D. CRISP, 1989: Sensitivity Study of Advection and Diffusion Coefficients in a Two-Dimensional Stratospheric Model Using Excess Carbon 14 Data, *J. Geophys. Res.* **94**, No. D15, 18467–18484.
- SHIA R.-L., M.K.W. KO, M. ZOU und V.R. KOTAMARTHI, 1993: Cross-Tropopause Transport of Excess ^{14}C in a Two-Dimensional Model, *J. Geophys. Res.* **98**, No. D10, 18599–18606.
- SIEGENTHALER, U. und H. OESCHGER, 1987: Biospheric CO_2 Emissions During the

- Past 200 Years Reconstructed by Deconvolution of Ice Core Data, *Tellus* **39**, Series B, 140–154.
- SIEGMUND, P.C., P.F.J. VAN VELTHOVEN und H. KELDER, 1996: Cross-Tropopause Transport in the Extratropical Northern Winter Hemisphere, Diagnosed from High-Resolution ECMWF Data, *Q. J. R. Met. Soc.* **122**, 1921–1941.
- SIMMONS, A.J. und D.M. BURRIDGE, 1981: Energy and Angular-Momentum Conserving Vertical Finite-Difference Scheme and Hybrid Vertical Coordinates, *Mon. Wea. Rev.* **109**, 758–766.
- SMAGORINSKY, J., 1963: General Circulation Experiments With the Primitive Equations, *Mon. Wea. Rev.* **91**, No. 3, 99–164.
- SPARLING, L.C., M.R. SCHOEBERL, A.R. DOUGLASS, C.J. WEAVER, P.A. NEWMAN und L.R. LAIT, 1995: Trajectory Modeling of Emissions From Lower Stratospheric Aircraft, *J. Geophys. Res.* **100**, No. D1, 1427–1438.
- 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.
- STEVENSON, D.S., W.J. COLLINS, C.E. JOHNSON und R.G. DERWENT, 1997: The Impact of Aircraft Nitrogen Oxide Emissions on Tropospheric Ozone Studied with a 3D Lagrangian Model Including Fully Diurnal Chemistry, *Atmos. Environ.* **31**, No. 12, 1837–1850.
- STEVENSON, D.S., W.J. COLLINS, C.E. JOHNSON und R.G. DERWENT, 1998A: Intercomparison and Evaluation of Atmospheric Transport in a Lagrangian Model (STOCHEM), and an Eulerian Model (UM), Using ^{222}Rn as a Short-Lived Tracer, *Q. J. R. Met. Soc.* **124**, 2477–2491.
- STEVENSON, D.S., C.E. JOHNSON, W.J. COLLINS, R.G. DERWENT, K.P. SHINE und J.M. EDWARDS, 1998B: Evolution of Tropospheric Ozone Radiative Forcing, *Geophys. Res. Lett.* **25**, No. 20, 3819–3822.
- STOCKWELL, D.Z., M.A. KRITZ, M.P. CHIPPERFIELD und J.A. PYLE, 1998: Validation of an Off-Line Three-Dimensional Chemical Transport Model Using Observed Radon Profiles, 2. Model Results, *J. Geophys. Res.* **103**, No. D7, 8433–8445.
- STOHL, A., G. WOTAWA, P. SEIBERT und H. KROMP-KOLB, 1995: Interpolation Errors in Wind Fields as a Function of Spatial and Temporal Resolution and Their Impact on Different Types of Kinematic Trajectories, *J. Appl. Meteor.* **34**, No. 10, 2149–2165.
- STOHL, A. und P. SEIBERT, 1998: Accuracy of Trajectories as Determined From the Conservation of Meteorological Tracers, *Q. J. R. Met. Soc.* **124**, 1465–1484.
- STOHL, A., 1998: Computation, Accuracy and Applications of Trajectories — A Review and Bibliography, *Atmos. Environ.* **32**, No. 6, 947–966.
- STOHL, A., 1998B: The FLEXPART Particle Dispersion Model Version 3.0 User Guide, erhältlich unter <http://www.forst.uni-muenchen.de/LST/METEOR/stohl/flexpart.html>.
- STRUNK, M., A. ENGEL, U. SCHMIDT, C.M. VOLK und T. WETTER, 2000: CO_2 and SF_6 as Stratospheric Age Tracers: Consistency and the Effect of Mesospheric

- SF₆-Loss, *Geophys. Res. Lett.* **27**, No. 3, 341–344.
- SUTTON, R.T., H. MACLEAN, R. SWINBANK, A. O'NEILL und F.W. TAYLOR, 1994: High-Resolution Stratospheric Tracer Fields Estimated from Satellite Observations Using Lagrangian Trajectory Calculations, *J. Atmos. Sci.* **51**, No. 20, 2995–3005.
- TELEGADAS, K., 1971: The Seasonal Atmospheric Distribution and Inventories of Excess Carbon 14 from March 1955 to July 1969, *USAEC Report HASL-243*, Health and Safety Lab., U.S. Atomic Energy Comm., Washington, D.C., pp. I-2–I-87.
- TELEGADAS, K., J. GRAY, JR., R.E. SOWL und T.E. ASHENFELTER, 1972: Carbon-14 Measurements in the Stratosphere from a Balloon-Borne Molecular Sieve Sampler, *Report HASL-246*, Health and Safety Lab., U.S. Atomic Energy Comm., Washington, D.C., pp. 69–106.
- THOMSON, D.J., 1987: Criteria for the Selection of Stochastic Models of Particle Trajectories in Turbulent Flows, *J. Fluid Mech.* **180**, 529–556.
- TIEDTKE, M., 1989: A Comprehensive Mass Flux Scheme for Cumulus Parameterization in Large-Scale Models, *Mon. Wea. Rev.* **117**, 1779–1800.
- TIMMRECK, C., H. GRAF und J. FEICHTER, 1999: Simulation of Mt. Pinatubo Aerosol with the Hamburg Climate Model ECHAM4, *Theor. Appl. Climatol.* **62**, 85–108.
- TOBLER, W., 1995: Population Database of the Consortium for International Earth Science Information Network (CIESIN) and the Environmental Systems Research Institute, Inc. (ESRI), *NCGIA Technical Report TR-95-6*, National Center for Geographic Information and Analysis, Dept. of Geography, Univ. of California, Santa Barbara, CA.
- TREPTE, C.R., R.E. VEIGA und M.P. MCCORMICK, 1993: The Poleward Dispersal of Mount Pinatubo Volcanic Aerosol, *J. Geophys. Res.* **98**, No. D10, 18563–18573.
- TUREKIAN, K.K., Y. NOZAKI und L.K. BENNINGER, 1977: Geochemistry of Atmospheric Radon and Radon Products, *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.* **5**, 227–255.
- ULIASZ, M., 1994: Lagrangian Particle Dispersion Modeling in Mesoscale Applications, in: P. Zannetti (ed.), *Environmental Modeling, Vol. II*, pp. 71–101, Computational Mechanics Publications, Southampton, U.K.
- VAUGHAN, G., 1988: Stratosphere-Troposphere Exchange of Ozone, in: I.S.A. Isaksen (ed.), *Tropospheric Ozone*, D. Reidel Publishing Company, Norwell, U.S.A., pp. 125–135.
- VAN VELTHOVEN, P.F.J., R. SAUSEN, C.E. JOHNSON, H. KELDER, I. KÖHLER, A.B. KRAUS, R. RAMAROSON, F. ROHRER, D. STEVENSON, A. STRAND und W.M.F. WAUBEN, 1997: The Passive Transport of NO_x Emissions from Aircraft Studied With a Hierarchy of Models, *Atmos. Environ.* **31**, No. 12, 1783–1799.
- VEREINTE NATIONEN (UN), 1994: *1992 Energy Statistics Yearbook*, United Nations Publication Sales No. E/F.94.XVII.9, Department for Economic and Social Information and Policy Analysis, Statistical Division, New York.
- VOLK, C.M., J.W. ELKINS, D.W. FAHEY, G.S. DUTTON, J.M. GILLIGAN, M. LOEWENSTEIN, J.R. PODOLSKE, K.R. CHAN und M.R. GUNSON, 1997: Evaluation of Source Gas Lifetimes from Stratospheric Observations, *J. Geophys. Res.* **102**, No. D21, 25543–25564.

- WALTON, J.J., M.C. MACCRACKEN und S.J. GHAN, 1988: A Global-Scale Lagrangian Trace Species Model of Transport, Transformation, and Removal Processes, *J. Geophys. Res.* **93**, No. D7, 8339–8354.
- WAUGH, D.W. und R.A. PLUMB, 1994: Contour Advection with Surgery: A Technique for Investigating Finescale Structure in Tracer Transport, *J. Atmos. Sci.* **51**, No. 4, 530–540.
- WAUGH, D.W. und W.J. RANDEL, 1999: Climatology of Arctic and Antarctic Polar Vortices Using Elliptical Diagnostics, *J. Atmos. Sci.* **56**, 1594–1613.
- WCRP (WORLD CLIMATE RESEARCH PROGRAMME), 1999: CAS/JSC Working Group on Numerical Experimentation: Global Tracer Transport Models — Proceedings of a WCRP Workshop on Modelling the Transport and Scavenging of Trace Constituents by Clouds in Global Atmospheric Models (Cambridge, UK, 1–4 August 1995), *WMO Weather Prediction Research Programmes Report No. 29*, edited by P. Rasch, May 1999, WMO/TD-No. 950.
- WEI, M.-Y., 1987: A New Formulation of the Exchange of Mass and Trace Constituents between the Stratosphere and Troposphere, *J. Atmos. Sci.* **44**, No. 20, 3079–3086.
- WHITTLESTONE, S., E. ROBINSON und S. RYAN, 1992: Radon at the Mauna Loa Observatory: Transport From Distant Continents, *Atmos. Environ.* **26A**, No. 2, 251–260.
- WHITTLESTONE, S., S.D. SCHERY und Y. LI, 1996: Pb-212 as a Tracer for Local Influence on Air Samples at Mauna Loa Observatory, Hawaii, *J. Geophys. Res.* **101**, No. D9, 14777–14785.
- WILKENING, M.H., 1959: Daily and Annual Courses of Natural Atmospheric Radioactivity, *J. Geophys. Res.* **64**, 521–526.
- WILKENING, M.H. und W.E. CLEMENTS, 1975: Radon-222 From the Ocean Surface, *J. Geophys. Res.* **80**, No. 27, 3828–3830.
- WILKENING, M.H., W.E. CLEMENTS und D. STANLEY, 1975: Radon-222 Flux Measurements in Widely Separated Regions, in: J.A.S. Adams et al. (eds.), *The Natural Radiation Environment II*, USERDA CONF-720805, U.S. Energy and Res. Dev. Admin., Oak Ridge, Tenn., pp. 717–730.
- WILLIAMSON, D.L. und P.J. RASCH, 1989: Two-Dimensional Semi-Lagrangian Transport with Shape-Preserving Interpolation, *Mon. Wea. Rev.* **117**, 102–129.
- WILLIAMSON, D.L. und P.J. RASCH, 1994: Water Vapor Transport in the NCAR CCM2, *Tellus* **46**, Series A, 34–51.
- WILSON, J.D. und B.L. SAWFORD, 1996: Review of Lagrangian Stochastic Models for Trajectories in the Turbulent Atmosphere, *Boundary-Layer Meteorol.* **78**, 191–210.
- WIRTH, V. und J. EGGER, 1999: Diagnosing Extratropical Synoptic-Scale Stratosphere-Troposphere Exchange: A Case Study, *Q. J. R. Met. Soc.* **125**, 635–655.
- WMO (WORLD METEOROLOGICAL ORGANIZATION), 1986: Atmospheric Ozone 1985, Global Ozone Research and Monitoring Report, *WMO Report 16*, Genf.
- WMO (WORLD METEOROLOGICAL ORGANIZATION), 1992: International Meteorological Vocabulary, 2. Aufl., Genf, 784 S.
- YULAEVA, E., J.R. HOLTON und J.M. WALLACE, 1994: On the Cause of the Annual

Cycle in Tropical Lower Stratospheric Temperatures, *J. Atmos. Sci.* **51**, No. 2, 169–174.

Danksagung

Zum Gelingen dieser Arbeit haben eine Reihe von Personen beigetragen, bei denen ich mich an dieser Stelle bedanken möchte:

Zunächst möchte ich mich bei Prof. Dr. R. Sausen bedanken, der diese Arbeit betreute und der mich, der ich aus der reinen Mathematik kam, zu dieser Arbeit ermutigte. Bedanken möchte ich mich auch bei Prof. Dr. J. Egger für seine Kommentare und Hinweise zum Manuskript.

Ein ganz besonderer Dank geht an Colin Johnson vom Hadley Centre for Climate Prediction and Research (Bracknell, England), der mir den Programmcode von STOCHEM überließ und für einen angenehmen Gastaufenthalt meinerseits am Hadley Centre sorgte. Durch seine Auskunft- und Hilfsbereitschaft konnte ich mich schnell in die Konzepte eines Lagrangeschen Modells einarbeiten, was die Anfangsphase der Entwicklung von ATTILA erheblich beschleunigte. An dieser Stelle sei auch Eckhard Tschirschnitz von NEC gedankt, mit dessen Vorschlägen zur Optimierung die Effizienz von ATTILA erheblich gesteigert werden konnte.

Zu allen Fragen rund um ECHAM war Michael Ponater stets ein kompetenter Ansprechpartner. Sabine Brinkop half mir ebenfalls, mich in den Tiefen des ECHAM-Codes zurechtzufinden und war mir vor allem zu Fragen der Grenzschicht- und Konvektionsparameterisierung in ECHAM eine wertvolle Hilfe. Auch hier ein herzliches Dankeschön.

Bei der Durchführung der Transportexperimente waren mir ebenfalls eine Reihe von Leuten behilflich. Erik Kjellström stellte eine vorläufige Version des Artikels Kjellström et al. (2000) und sämtliche Daten zur Verfügung, die zur Berechnung des Transportes von ^{14}C und SF_6 nötig waren (^{14}C -Anfangsverteilung, Programmcode des Kohlenstoffkreislaufes, ^{14}C -Beobachtungsdaten, SF_6 -Emissionsdichte, SF_6 -Messungen). Frank Dentener und Johann Feichter stellten eine vorläufige Version von Dentener et al. (1999) und zahlreiche ^{222}Rn -Messungen zur Verfügung. Mein Dank geht auch an Christine Land, die mir bei Fragen zu den Details der Experimente behilflich war und ebenfalls eine Reihe von Daten zur Verfügung stellte (zusätzliche Beobachtungsdaten, fertig aufbereitete Randbedingungen für ^{14}C und SF_6 , Ergebnisse zum Stratosphären-Troposphären-Austausch).

Bedanken möchte ich mich auch bei den Systemadministratoren Winfried Beer und Peter Herchenbach, die durch ihre freundliche, kompetente und immer schnelle Hilfe ein angenehmes Arbeiten ermöglichten. Ebenso bedanke ich mich bei allen Kolleginnen und Kollegen am Institut für Physik der Atmosphäre für eine angenehme und konstruktive Arbeitsatmosphäre. Hier sind noch Martin Dameris, Volker Grewe und Michael Ponater hervorzuheben, denn durch Diskussionen mit ihnen konnte ich einiges über die Modell-dynamik in ECHAM lernen.

Zu guter Letzt möchte ich mich bei meiner Frau Monika bedanken, die mir stets zur Seite stand und auch in arbeitsintensiven Zeiten ein ermunterndes Wort übrig hatte.

Diese Arbeit entstand im Rahmen des Aerosolforschungsschwerpunktes (AFS) des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (Projekt 07 AF 311 /3).

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name Christian Albert Reithmeier
geboren am 21. November 1969
in Landshut, Niederbayern
Familienstand verheiratet

Schulbildung

9/76 – 3/79 Grundschule Buch am Erlbach
3/79 – 8/80 Grundschule Pfeffenhausen
9/80 – 7/89 Gabelsberger-Gymnasium Mainburg
Juli 1989 Abitur

Zivildienst

8/89 – 10/90 Zivildienst im Altenheim der Arbeiterwohlfahrt Landshut
11/90 – 3/91 Altenpflegehelfer im o.g. Altenheim
4/91 – 8/91 Betreuung eines Pflegefalles

Studium

11/91 – 7/97 Studium der Mathematik an der Universität Regensburg
8/94 – 6/95 Integriertes Auslandsstudium an der
Brandeis University, Waltham, Massachusetts, U.S.A.
Juli 1997 Diplom in Mathematik, Thema der Diplomarbeit:
Kriterien für vollständige Durchschnitte
11/97 – 10/00 Promotionsstudiengang Meteorologie an der
Ludwig-Maximilians-Universität München
seit 9/97 wissenschaftlicher Angestellter am Institut für Physik der Atmosphäre,
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V., Oberpfaffenhofen