



Die Variabilität von stratosphärischem Hintergrund-Aerosol.
Eine Untersuchung mit dem globalen sektionalen Aerosolmodell
MAECHAM5–SAM2

René Hommel



Die Variabilität von stratosphärischem Hintergrund–Aerosol.
Eine Untersuchung mit dem globalen sektionalen Aerosolmodell
MAECHAM5–SAM2

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften
im Departement Geowissenschaften der Universität Hamburg
vorgelegt von

René Hommel

aus Görlitz

Hamburg 2008

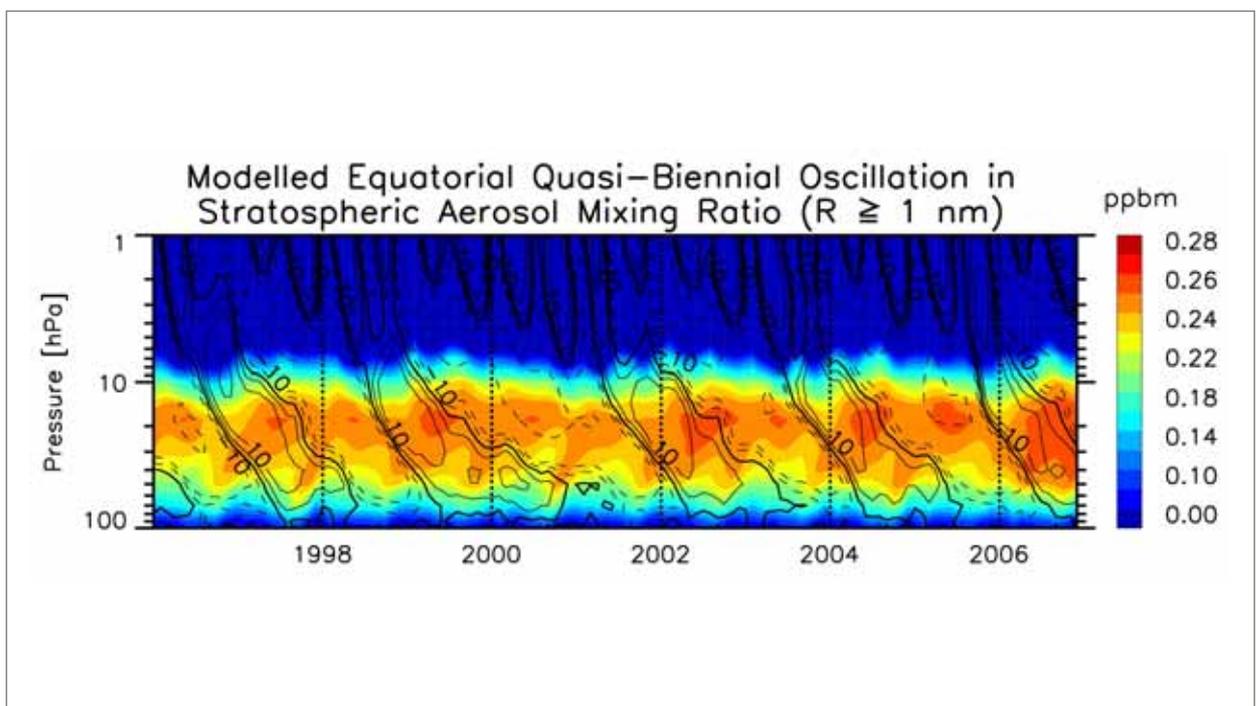
René Hommel
Max-Planck-Institut für Meteorologie
Bundesstrasse 53
20146 Hamburg
Germany

Als Dissertation angenommen
vom Department Geowissenschaften der Universität Hamburg

auf Grund der Gutachten von
Prof. Dr. Hartmut Graßl
und
Prof. Dr. Hans F. Graf

Hamburg, den 11 Juli 2008
Prof. Dr. Jürgen Oßenbrügge
Leiter des Departments für Geowissenschaften

Die Variabilität von stratosphärischem Hintergrund-Aerosol.
Eine Untersuchung mit dem globalen sektionalen Aerosolmodell
MAECHAM5-SAM2



René Hommel

Hamburg 2008

Inhaltsverzeichnis

Abstract	4
Zusammenfassung	5
1 Einleitung	7
1.1 Aerosole im Erdsystem	9
1.2 Aerosolmodellierung	10
1.3 Zielsetzung dieser Arbeit	13
1.4 Übersicht	14
2 Aerosole der Stratosphäre	15
3 Das Modell der Aerosolmikrophysik SAM2	25
3.1 Diskretisierung der Aerosolverteilung	25
3.2 Partikelformation	27
3.3 Partikelwachstum	30
3.3.1 Feuchtewachstum	32
3.3.2 Kondensation von H_2SO_4	34
3.3.3 Verdunstung von Sulfataerosol	38
3.3.4 Sulfatbildung in troposphärischen Wolken	40
3.3.5 Wachstum durch Koagulation	40
3.4 Spezifische Parametrisierungen	46
4 Das globale Aerosol-Zirkulationsmodell MAECHAM5-SAM2	49
4.1 Modellbeschreibung	49
4.2 Physikalische Quellen- und Senkenprozesse	51

4.2.1	Emissionen	51
4.2.2	Physikalische Senken	52
4.3	Atmosphärenchemie	54
4.3.1	Schwefelchemie der Troposphäre	55
4.3.2	Schwefelchemie der Stratosphäre	55
5	Globale Modellierung stratosphärischen Hintergrund–Aerosols	59
5.1	Randbedingungen des Experiments	60
5.2	Ergebnisse und Diskussion	64
5.2.1	Sulfataerosol–Vorläufergase	64
5.2.2	Die globale stratosphärische Aerosolverteilung	67
5.2.3	Aerosolklimatologie	72
5.2.4	Validierung gegenüber SAGE II	76
5.2.5	Validierung mit In–Situ–Messungen	82
6	Variabilität stratosphärischen Hintergrund–Aerosols	89
6.1	Randbedingungen des Experiments	90
6.2	Ergebnisse und Diskussion	92
6.2.1	QBO–Effekte auf die Zirkulation der Stratosphäre	92
6.2.2	QBO–Modulation von Sulfataerosol–Vorläufergasen	101
6.2.3	QBO–Modulation stratosphärischer Aerosole am Äquator	106
6.2.4	Die Aerosolklimatologie unter dem Einfluss der QBO	114
6.2.5	QBO–Modulation im meridionalen Aerosoltransport	126
6.2.6	QBO–Modulation des Partikelanzahlspektrums	141
7	Zusammenfassung	145
8	Ausblick	151
A	Offline Oxidanten–Felder	153
B	Kontrolllauf: Klimatologie von GCM–Parametern	155
C	Gleichgewichtszustand in Aerosolparametern	156

D Struktur des OPC-Datensatzes der <i>University of Wyoming</i>	158
E Variabilität ausgewählter Parameter des GCM	159
F Die SO ₂ -Konzentration unter dem Einfluss der westlichen QBO-Scherphase	162
Literaturverzeichnis	164
Danksagungen	183

Abstract

In the present study the size resolved sectional sulfate aerosol model SAM2 is introduced, which is coupled to the general circulation model of the middle atmosphere MAECHAM5. Parametrisations used by SAM2 are adapted for low temperatures, thus the model is particularly well suited for studies of stratospheric aerosols. Modelled aerosol parameters of an eleven year climatological simulation were validated in comparison with SAGE II climatologies of physical aerosol properties and in-situ measurements. It is shown that the model reproduces the main features of its predecessor ECHAM4-SAM and amongst others it improves the representation of particle formation processes in the UT/LS region as well as the modelled concentrations of aerosol precursor gases. The modelled number concentrations of *Accumulation Mode* particles are underestimated, thus the modelled effective radius is slightly lower than these of published aerosol climatologies.

This study considers nudged QBO equatorial zonal winds based on an algorithm by Giorgetta und Bengtsson (1999) to represent the QBO in the coarsely resolved model version using 39 vertical levels. It is shown that an aerosol QBO is reproduced in the stratospheric equatorial aerosol concentration and, at least in the vicinity of descending equatorial zonal winds, QBO induced anomalies are found in almost all parameters diagnosed from the aerosol microphysical core. Phase shifts and phase inversions in the modelled anomalies are caused by non-linearities in QBO controlled process interactions. Furthermore QBO induced anomalies in the aerosol number concentration are a function of particle size.

While in the conventional model the region above the highest stratospheric aerosol concentrations is characterised by persistent particle evaporation, in the QBO experiment this region is characterised by reversible gas to particle interactions with evaporation as dominant process. Observational findings of the upper and lower transport regimes for stratospheric tracers out of the tropical reservoir are reproduced by the model, while the secondary circulation associated with the QBO can be identified by the modelled aerosol concentration gradients.

This study revealed QBO modulations in the concentrations of sulfate aerosol precursor gases. In the lower tropical stratosphere the cross-tropopause flux of SO_2 is enhanced by 15 % in easterly QBO phases. Qualitatively similar anomalies in gaseous H_2SO_4 are explained by chemical finger prints of the QBO induced anomalies in SO_2 since the photochemical lifetime of gaseous H_2SO_4 is too short for direct QBO signals due to QBO induced anomalies in the vertical advection of that species. A distinct tape recorder signal was also found in low stratospheric DMS concentrations.

Zusammenfassung

Diese Arbeit stellt das größen aufgelöste sektionale Sulfataerosolmodul SAM2 vor, das zur Validierung in das Mittelatmosphärenzirkulationsmodell MAECHAM5 integriert worden ist. Aufgrund der für tiefe Temperaturen adaptierten Parametrisierungen ist SAM2 prädestiniert für Studien der Dynamik stratosphärischer Aerosole. Spezifische Modellparameter einer elfjährigen Integration unter klimatologisch mittleren Bedingungen sind verschiedenen SAGE-II-Datensätzen abgeleiteter physikalischer Aerosolparameter und In-Situ-Messungen gegenübergestellt worden. Dieser Vergleich offenbarte, dass MAECHAM5-SAM2 in allen Bereichen die Vorgaben seines Vorgängermodells ECHAM4-SAM erfüllt und darüber hinaus deutliche Verbesserungen vor allem in der Wiedergabe von Partikelbildungsprozessen der freien Troposphäre und der unteren Stratosphäre sowie in der Modellierung der Aerosolvorläufgase erzielt. Defizite zeigen sich in der Wiedergabe von Partikelanzahlkonzentrationen im *Accumulation Mode*, die sich im modellierten effektiven Radius widerspiegeln, der seinerseits deutlich geringer ausfällt als entsprechende effektive Radien in bekannten Aerosolklimatologien.

Das in diese Arbeit einbezogene Assimilationsverfahren beobachteter zonaler Winde der äquatorialen Stratosphäre nach Giorgetta und Bengtsson (1999) erlaubt die Wiedergabe der quasi-zweijährigen Schwingung (*Quasi Biennial Oscillation*, QBO) der Stratosphäre auch in der vertikal niedrig aufgelösten L39-Version von MAECHAM5. Erstmals in der Modellierung größen aufgelöster stratosphärischer Aerosole konnte die quasi-zweijährige Schwingung in Aerosolen der unteren und mittleren Stratosphäre eingehend untersucht werden. QBO-Modulationen beeinflussen alle Momente einer stratosphärischen Aerosolverteilung zumindest im direkten Einflussbereich der die QBO kennzeichnenden am Äquator absteigenden, in ihrer Ausrichtung alternierenden zonalen Winde. Phasenverschiebungen bzw. Phaseninversionen in den QBO-induzierten Anomalien entsprechender Aerosolparameter lassen auf nicht-lineare Zusammenhänge in den wechselseitigen Beeinflussungen dieser QBO-modulierten Parameter schließen. QBO-Modulationen in den Partikelanzahlkonzentrationen sind zudem eine Funktion der Größe der Partikel.

Durch Einbeziehung der QBO in die Modellierung stratosphärischer Aerosole verändert sich die im herkömmlichen Modell persistente Verdunstungsschicht von Partikeln in eine von reversiblen Massentransfer gekennzeichnete Region dominierender Verdunstung. Die in Verbindung mit der Sekundärzirkulation der QBO stehenden, von der QBO modulierten Transportwege stratosphärischer Aerosole aus den Tropen heraus in die Subtropen und mittleren Breiten konnten identifiziert werden. Sie befinden sich hinsichtlich ihrer qualitativen Merkmale in guter Übereinstimmung mit den aus beobachteten Aerosol-extinktionen bzw. Konzentrationen anderer Spurenstoffe nachgewiesenen Transportwegen.

Ebenfalls nachgewiesen wurden QBO-Modulationen in den stratosphärischen Konzentrationen der Aerosolvorläufgase SO_2 , H_2SO_4 und DMS. In der äquatorialen unteren Stratosphäre zeigen sich in östlichen QBO-Phasen um 15 % intensivierte Tropopausenflüsse von SO_2 . Entsprechende Anomalien in gasförmiger Schwefelsäure lassen sich über den photochemischen Transformationsweg erklären. Ein ausgeprägtes *Tape-Recorder*-Signal konnte in den Konzentrationen von stratosphärischem DMS nachgewiesen werden.

Kapitel 1

Einleitung

Aerosole sind ein allgegenwärtiger, das biologischen Leben auf vielfältige Weise beeinflussender Bestandteil der Erdatmosphäre. Diese Beeinflussung erfolgt sowohl durch direkte Interaktion mit Organismen als auch durch indirekte Effekte, verursacht von Wechselwirkungen mit dem Klimasystem der Erde. Ersteres betrifft vor allem die Gesundheit des Menschen (Maynard und Maynard, 2002), weit bedeutender jedoch sind physikalisch-chemische Wechselwirkungen mit dessen unmittelbarer Umgebung. An der Erdoberfläche deponierende Aerosole vermindern über längere Zeiträume u.a. die Qualität des Grundwassers (Stoddard et al., 1999), schädigen die Biosphäre und reduzieren landwirtschaftliche Erträge (Bergin et al., 2001) mit weitreichenden Konsequenzen für die wirtschaftliche Entwicklung ganzer Regionen (IPCC, 2007).

Aerosolwechselwirkungen mit dem globalen Strahlungshaushalt und hydrologischen Kreislauf sind maßgebliche Faktoren in klimarelevanten Prozessen der Atmosphäre (Ramanathan et al., 2001). Aerosolpartikel üben direkte und indirekte Effekte auf die Wolkenbildung (Twomey, 1974) und deren Niederschlagseffizienz aus (Albrecht, 1989), sie bieten aber auch entsprechende Oberflächen für den Ablauf heterogener chemischer Reaktionen in der Atmosphäre (Ravishankara, 1997). Diese führen einerseits über eine indirekte Beeinflussung der Reaktionszyklen des katalytischen Ozonabbaus zu einer Beschleunigung der stratosphärischen Ozonzerstörung in der polaren Winterhemisphäre (WMO, 2006), andererseits verzögern sie die anschließende Relaxation des Ozonabbaus im polaren Frühjahr (Tabazadeh et al., 2000).

Eine Quantifizierung der mit Aerosolen in Verbindung stehenden Klimaveränderungen ist Gegenstand weitreichender internationaler Bemühungen, die im Rahmen des *Intergovernmental Panel on Climate Change* (IPCC) in mehrjährigem Abstand in umfassenden Publikationen zusammengefasst und der Öffentlichkeit zugänglich gemacht werden. Die von Aerosolen induzierte Abschirmung bodennaher Schichten der Atmosphäre vor kontinuierlicher Erwärmung durch Treibhausgase, ist nach wie vor mit zahlreichen Unsicherheiten in der Beurteilung einzelner Aerosoleffekte behaftet (Andreae et al., 2005). Diese Unsicherheiten resultieren nicht zuletzt aus der hohen Diversität in Komposition und Ursprung atmosphärischer Aerosole und den damit einhergehenden vielfältigen physikalischen und chemischen Partikeleigenschaften. So sind beispielweise die Strahlungseigenschaften vieler Aerosolkomponenten, wie die von Sulfat oder elementarem Kohlenstoff (streuend bzw. absorbierend), gut bekannt. Die Strahlungseigenschaften der in der Natur überwiegend vorkommenden Aerosole gemischten Ursprungs lassen sich jedoch nicht ohne weiteres aus der Superposition isolierter Eigenschaften bestimmen. Vielmehr stehen Komposition, Morphologie und Größe der Partikel in einem nicht-linearen Zusammenhang diesbezüglich (Lacis und Mishchenko, 1995). Hinzu kommt, dass ein direkter experimenteller Nachweis von Aerosoleffekten in der Atmosphäre lediglich einen Gesamteffekt erfassen kann. Isolierte Aerosoleffekte können, wenn überhaupt, nur unter Laborbedingungen reproduziert werden, die sich jedoch oft auf die Repräsentation von Teilbereichen globaler atmosphärischer Bedingungen beschränken müssen.

Numerische prozessorientierte Modelle helfen zu einem besseren und umfassenden Verständnis der Aerosol-Klima-Wechselwirkungen beizutragen, in dem experimentell gewonnene Daten oder theoretisch hergeleitete Hypothesen hinsichtlich ihrer Relevanz beurteilt werden können. Die Komplexität dieser Aufgabe erfordert einen interdisziplinären Ansatz, wie er im Erdsystemmodell des MPI-M Anwendung findet. Eine der wesentlichen Komponenten dieses Erdsystemmodells stellt das Zirkulationsmodell ECHAM5 (Roeckner et al., 2003) dar, welches in dieser Arbeit in seiner auf die mittlere Atmosphäre erweiterten Version (Manzini et al., 2006) die Basis für die prozessorientierte Modellierung der stratosphärischen Aerosolschicht bildet. Anhand des in dieser Arbeit erstmals vorgestellten größen aufgelösten Aerosol-Zirkulationsmodells der mittleren Atmosphäre MAECHAM5-SAM2 wird die stratosphärische Aerosolschicht hinsichtlich ihrer Variabilität untersucht. Grundlage der Arbeit stellt die nur indirekt vulkanisch beeinflusste Stratosphäre dar, wie sie innerhalb der letzten Dekade beobachtet wurde. Eine besondere Berücksichtigung findet die Modellierung der quasi-zweijährigen-Schwingung (*Quasi Biennial Oscillation*, QBO), welche die stratosphärische Residualzirkulation moduliert und die globale Verteilung von stratosphärischen Spurenstoffen maßgeblich beeinflusst (Gray und Chipperfield, 1990).

Die durch den Impulstransfer bei der Brechung eines breiten Spektrums atmosphärischer Wellen in der unteren bis mittleren Stratosphäre angetriebene QBO (Baldwin et al., 2001) ist gekennzeichnet von zonal-symmetrisch am Äquator absteigenden zonalen Winden alternierender Ausrichtung (östlich, westlich). Die mittlere Periode dieser Schwingung beträgt rund 28 Monate (Naujokat, 1986). Die Aufrechterhaltung des thermischen Windgleichgewichts bedingt Temperaturanomalien in den Phasen der Windtransitionen. Diese Scherwinde induzieren eine die Residualzirkulation überlagernde sekundäre Meridionalzirkulation (Plumb und Bell, 1982). Obwohl die QBO an sich ein Phänomen der tropischen Stratosphäre ist, beeinflusst sie die globale Stratosphäre über eine Vielzahl von Interaktionen in der tropischen und extratropischen Zirkulation (Holton und Tan, 1980), in der chemischen Komposition der Stratosphäre (Gray und Pyle, 1989) und den damit einhergehenden Rückwirkungen auf die QBO-treibenden Mechanismen (Hasebe, 1994). Nach dem heutigen Stand der Erkenntnis sind die Interaktionen zwischen stratosphärischen mit der QBO in Verbindung stehenden Phänomenen und den mit der troposphärischen Zirkulation assoziierten Prozessen im Allgemeinen akzeptiert und betreffen u.a. die tropische Tiefenkonvektion (eine Übersicht findet sich in Baldwin et al., 2001).

Zahlreiche Arbeiten zeigen die Existenz eines tropischen stratosphärischen Reservoirs (TSR) in den Konzentrationen von stratosphärischen Spurenstoffen (u.a. Grant et al., 1996). Die saisonale und interannuale Variabilität des TSR steht in Zusammenhang mit dem jährlichen Zyklus der Residualzirkulation und den Modulationen, die durch die QBO hervorgerufen werden. Für die globale Verteilung stratosphärischer Aerosole spielt das von der extratropischen Stratosphäre durch sogenannte Mischungsbarrieren in den Subtropen isolierte TSR (u.a. Polvani et al., 1995) eine existenzielle Rolle: Zum einen werden Aerosole im TSR von tropischen Vulkaneruptionen gespeist, welche hauptsächlich das Aerosolvorläufergas SO_2 in die Stratosphäre befördern, so dass das TSR über einen Zeitraum von bis zu mehreren Monaten eine stetige Quelle neuer stratosphärischer Aerosolpartikel darstellt (Hitchman et al., 1994). Diese Aerosolpartikel wachsen während ihrer stratosphärischen Verweildauer auf detektierbare Größen heran und werden durch QBO-modulierte Transportprozesse der Residualzirkulation in der Stratosphäre relativ homogen global verteilt (Hamill et al., 1997). Analytische Arbeiten (Seol und Yamazaki, 1998) und auf Satellitendaten basierende Analysen der Konzentrationen gasförmiger Spurenstoffe der Stratosphäre (O'Sullivan und Chen, 1996) weisen einen von der QBO modulierten, in die tropische Stratosphäre gerichteten Tropopausenfluss aus, der in östlichen QBO-Phasen seinen Höhepunkt erreicht. Hasebe (1994) konnte ähnliche Anomalien im tropischen Tropopausenfluss an SAGE-II-Aerosolextinktionsmessungen nachweisen, jedoch unter dem Einfluss absteigender westlicher zonaler Winde der QBO. Es lässt sich also vermuten, dass die quasi-zweijährige Schwingung einen wesentlichen Beitrag zur Stabilisierung der stratosphärischen Aerosolschicht auch unter ausbleibenden vulkanischen Extremereignissen liefert, da sowohl der meridionale Transport von stratosphärischen Spurenstoffen, als auch deren Eintrag in das tropische Reservoir durch die QBO maßgeblich moduliert werden. Bislang ist dieses außerordentliche Phänomen der stratosphärischen Variabilität nicht in die Modellierung stratosphärischer Aerosole eingeflossen.

Ein Modell, welches die Dynamik und Variabilität der stratosphärischen Aerosolschicht wiederzugeben

vermag, erfordert eine explizite Beschreibung des Partikelspektrums sowie eine möglichst vollständige Einbeziehung der Quellen- und Senkenprozesse, die zur Ausbildung der stratosphärischen Aerosolschicht führen. Der in dieser Arbeit vorgestellte Modellansatz erfüllt diese Ansprüche, indem die Verteilung von Sulfataerosolpartikeln sowohl in der Troposphäre als auch in der Stratosphäre größen aufgelöst modelliert werden. Das Modell berücksichtigt alle essentiellen chemischen Reaktionen, die zur Entstehung neuer Sulfatpartikel in der Atmosphäre beitragen, bei gleichzeitiger Berücksichtigung aller physikalischen Senkenterme von Gasen und Aerosolen, wie Auswaschung und Deposition. Das Verfahren verfügt über zeitgemäße Emissionsszenarien, um ein möglichst realistisches Abbild der gesamtatmosphärischen Aerosolverteilung unter heutigen klimatischen Bedingungen wiedergeben zu können.

Diese Arbeit dokumentiert die ersten Zyklen der Evaluierung eines neu formulierten gekoppelten Aerosol-Zirkulationsmodells der oberen Troposphäre und Stratosphäre. Der Schwerpunkt der Untersuchungen liegt dabei in der Einschätzung der Repräsentation der mikrophysikalischen Eigenschaften des modellierten stratosphärischen Hintergrundaerosols unter Einbeziehung möglichst realitätsnaher Transportmechanismen des größen aufgelösten Aerosolmassenspektrums sowie der Sulfataerosol-Vorläufergase. Gegenstand potentieller Anwendungen dieses hier vorgestellten Modells sind u.a. die Modellierung der vulkanisch stark beeinflussten stratosphärischen Aerosolschicht und der katalytische Ozonabbau. Diese Applikationen sind jedoch künftigen Modellversionen vorbehalten und können nicht in diese Arbeit einfließen.

In den folgenden Abschnitten werden die charakteristischen Merkmale atmosphärischer Aerosole vorgestellt, wobei die wesentlichen Unterschiede troposphärischer und stratosphärischer Aerosole hervorgehoben werden sollen. Der daran anschließende Überblick der Modellierung von Aerosolen im Erdsystem fokussiert sich auf die Modellierung stratosphärischer Aerosole. Im letzten Kapitel dieser Einleitung werden die Schwerpunkte der hier vorliegenden Arbeit weiter spezifiziert.

1.1 Aerosole im Erdsystem

Aerosole sind hochdisperse Partikelsuspensionen eines gasförmigen Mediums. Die typische Größe und Zusammensetzung atmosphärischer Aerosole sind von einer hohen räumlichen Diversität geprägt und werden vom Ursprung der Partikel, deren Interaktionen mit anderen festen und gasförmigen Komponenten der Atmosphäre sowie der Verweildauer dieser Partikel in der Atmosphäre bestimmt (Seinfeld und Pandis, 1998; Jacobson, 2005). Atmosphärische Aerosole natürlichen und anthropogenen Ursprungs werden direkt in die Atmosphäre emittiert (Primäre Aerosole), unter bestimmten Voraussetzungen formieren sich Aerosolpartikel auch direkt aus der Gasphase heraus (Sekundäre Aerosole) (u.a. Raes et al., 2000; Kulmala et al., 2004a).

Das Größenspektrum der Partikel reicht vom Sub-Nanometerbereich (überwiegend Sekundärpartikel) bis in den zweistelligen Mikrometerbereich, der fast ausschließlich von Primärpartikeln bestimmt wird. In der Literatur hat sich die Einteilung des Aerosolgrößenspektrums in vier Moden durchgesetzt (Whitby, 1978): Der *Nucleation Mode* umfasst Partikel deren Radius < 5 nm ist, Partikel im Radienbereich von 5 nm bis < 50 nm werden dem *Aitken Mode* zugerechnet, der *Accumulation Mode* reicht von 50 nm bis < 0.5 μm . Partikel, deren Radius 0.5 μm übersteigt, werden dem *Coarse Mode* zugerechnet.

Die Hauptkomponenten atmosphärischer Aerosole sind Seesalz (u.a. Fitzgerald, 1991), mineralischer Erdoberflächenstaub (u.a. Balkanski et al., 2004), elementarer Kohlenstoff (u.a. Jacobson, 2001), organische Kohlenwasserstoffe (u.a. Kanakidou et al., 2005) sowie anorganische Verbindungen, z.B. Sulfat (u.a. Kulmala et al., 2000), Nitrat (u.a. Carslaw et al., 1997) und Ammoniumverbindungen (u.a. Wexler und Seinfeld, 1990). Bezogen auf die emittierte Aerosolmasse bilden Seesalz und Staubpartikel die Hauptkomponenten troposphärischer Aerosole (Emissionsfluss $\sim 3\text{--}8 \cdot 10^3$ Tg a⁻¹ bzw. $\sim 1\text{--}2 \cdot 10^3$ Tg a⁻¹). Der jährliche Emissionsfluss von anorganischen und organischen Verbindungen und insbesondere der schwefelhaltiger Komponenten (Gase, Primäraerosole) ist ein bis zwei Größenordnungen niedriger ($\sim 1\text{--}4 \cdot 10^1$ Tg a⁻¹;

Raes et al., 2000; Dentener et al., 2006). Viele der Aerosolpartikelkomponenten sind in der Lage, große Mengen Wasser zu binden (Hygroskopie), sodass sich die atmosphärische Wasserdampfkonzentration wesentlich auf Gewicht, Größe und Komposition der Partikel auswirkt.

In der Stratosphäre dominieren flüssige Sulfatpartikel, die sich aus Schwefeldioxid und anderen sogenannten Aerosolvorläufergasen durch Gasphasentransformationsprozesse bilden (u.a. Hamill et al., 1997). Aerosolvorläufergase haben ihren Ursprung in natürlichen Quellen (u.a. Vulkane, Phytoplankton). Seit Beginn der weltweiten Industrialisierung dominiert jedoch der Anteil der anthropogenen Quellen (u.a. fossile Brennstoffe) (IPCC, 2007). Troposphärische Aerosolpartikel sind überwiegend gemischter Natur, man unterscheidet intern gemischte und extern gemischte Aerosole. Erstere finden sich hauptsächlich im *Nucleation* und *Aitken Mode*, letztere dominieren den *Accumulation* und *Coarse Mode* (Seinfeld und Pandis, 1998).

Die komplexen Interaktionen zwischen troposphärischer Zirkulation, dem breiten troposphärischen Aerosolspektrum und der strahlungsinduzierten Verfügbarkeit von Wasserdampf in der Troposphäre (u.a. Ramanathan et al., 2001; Graf, 2004) führen letztlich zu einer relativ kurzen Verweildauer von Aerosolen in der Troposphäre, die in Abhängigkeit der Größe, Komposition und chemischen Aktivität der Partikel von nur wenigen Minuten bis hin zu mehreren Tagen betragen kann (Seinfeld und Pandis, 1998). Dagegen ist die Morphologie stratosphärischer Aerosole weit weniger komplex, da Partikelinteraktionen in der stabil geschichteten Stratosphäre eine untergeordnete Rolle spielen (Hamill et al., 1997). Die für die Stratosphäre charakteristischen Transportprozesse bestimmen letztlich die Verweildauer der Partikel, die in Abhängigkeit von ihrer Größe mehrere Monate bis mehrere Jahre betragen kann (u.a. Holton et al., 1995). Sie führen aber auch zu einer, gegenüber Aerosolen in der Troposphäre vergleichsweise homogenen globalen Verteilung (Trepte et al., 1994).

Die vornehmlich an den stratosphärischen Temperaturgradienten gekoppelten thermodynamischen Gleichgewichtsbedingungen der Flüssigphasenkomponenten stratosphärischer Aerosole wirken global limitierend auf die gesamte Aerosolschicht oberhalb der Tropopause:

- Zwangsläufige Verdunstung flüssiger Anteile stratosphärischer Aerosole (i.d.R. > 95 Volumen-%) oberhalb von ~ 10 hPa (u.a. Hamill et al., 1977b),
- bei Temperaturen unterhalb von ~ 200 K dominiert Nitrat statt Sulfat die Komposition stratosphärischer Partikel (u.a. Tabazadeh et al., 1994b).

Demgegenüber werden troposphärische Aerosole hauptsächlich durch mechanisch-diffusive Prozesse aus der Troposphäre ausgewaschen bzw. an der Erdoberfläche abgelagert (Seinfeld und Pandis, 1998).

1.2 Aerosolmodellierung

Die Einbeziehung der in den vorangegangenen Kapiteln geschilderten, teilweise in Wechselwirkung miteinander stehenden Prozesse in die dreidimensionale Modellierung der Atmosphäre erfordert die Kopplung physikalischer Prozessmodelle unterschiedlicher Skalen bei gleichzeitiger Berücksichtigung der Modellierung relevanter chemischer Transformationen. In diesem Kapitel werden Methoden und Ansätze der Modellierung atmosphärischer Aerosolpopulationen vorgestellt, wobei der Fokus der Ausführungen auf der Modellierung von Aerosolen unter stratosphärischen Bedingungen liegen soll.

Obwohl seit den siebziger Jahren eine Vielzahl umfassender Prozessmodelle zu verschiedensten Fragestellungen der Beeinflussung von klimarelevanten Prozessen durch Aerosole in der Atmosphäre entwickelt worden sind, konnten Aerosole bis zum Ende der neunziger Jahre vor allem aus Gründen der numerischen Effizienz nur unter vereinfachten Annahmen in die dreidimensionale Klimamodellierung einbezogen werden. Beispielsweise ist es möglich durch vorgeschriebene zonal gemittelte Datensätze auf Basis

von beobachteten optischen Aerosolparametern klimarelevante Aerosoleffekte in der dreidimensionalen Klimamodellierung direkt zu quantifizieren (u.a. Stenchikov et al., 1998). Ein solches nicht-interaktives Modellsystem bezieht jedoch nicht die wechselseitigen Beziehungen zwischen klimatologischen Prozessen und dem aerosol-mikrophysikalischen System in die physikalischen Parametrisierungen ein. Die prognostische Behandlung von Aerosolpopulationen in der dreidimensionalen Klimamodellierung erfolgte zunächst unter Anwendung der sogenannten *Bulk*-Annahme für einzelne, untereinander nicht gemischte Aerosoltypen (eine Übersicht findet sich in Adams und Seinfeld, 2002). Als prognostische Größe in *Bulk*-Modellen wird meist die Gesamtaerosolmasse herangezogen, Kenntnisse des Partikelgrößen- und Anzahlspektrums werden per Definition vernachlässigt (u.a. Feichter et al., 1996; Timmreck et al., 1999). Die Anwendung solcher vereinfachter Aerosolmodule beschränkt die Modellierung klimatologisch bedeutender Aerosolprozesse auf die Modellierung spezifischer Phänomene, da diese Ansätze weder die hohe Variabilität der Partikel in der Atmosphäre, noch die damit einhergehende Variabilität in den Aerosoleffekten selbst sowie deren Rückwirkungen auf klimatologische Prozesse der Atmosphäre erfassen können. In Folge dessen implizieren derartige Modelle zum Teil große und systematische Fehler in der Modellierung von direkten und indirekten Aerosoleffekten (Zhang et al., 2002).

Um diese Defizite der Aerosol-Klimamodelle der ersten Generation auszugleichen, wurden dreidimensionale Aerosol-Klimamodelle in den letzten Jahren zunächst um die Möglichkeit der prognostischen Behandlung von Spektren einzelner Aerosolkenngößen erweitert (z.B. Aerosolmassenverteilung, u.a. Lurmann et al., 1997; Ghan et al., 2001a,b; Timmreck, 2001). Beschränkt man sich jedoch auf die prognostische Behandlung nur eines der Momente einer Aerosolpopulation, können zwangsläufig alle weiteren Momente nicht erhaltend numerisch beschrieben werden (u.a. Jacobson et al., 1994; Adams und Seinfeld, 2002). Daher werden sowohl die nicht-prognostischen Parameter als auch die an diese Parameter gekoppelte Prozesse von Ein-Moment-Modellen nur eingeschränkt realistisch wiedergegeben. Nach Adams und Seinfeld (2002) führt der Verzicht auf die simultane prognostische Behandlung von Partikelgrößenverteilung und Partikelanzahl beispielsweise zu einer unrealistischen Wiedergabe der troposphärischen Wolkenkeim-Konzentrationen (*Cloud Condensation Nuclei*, CCN) in Klimamodellen, mit Auswirkungen auf die Quantifizierung der modellierten indirekten Aerosoleffekte. Derzeit berücksichtigen nur einige wenige dreidimensionale Aerosol-Klimamodelle die simultane Lösung zweier Aerosolmomente (Aerosolmasse und Partikelanzahl), deren Fokus in der Modellierung troposphärischer Aerosol-Wolken-Interaktionen liegt (u.a. Adams und Seinfeld, 2002; Stier et al., 2005; Lohmann et al., 2007).

Die aus der Aerosolprozessmodellierung bekannten kontinuierlichen, diskreten, momentenbasierten und parametrisierenden Methoden der numerischen Beschreibung von Partikelspektren sind im Laufe der letzten Jahre auf die dreidimensionale Aerosol-Klimamodellierung übertragen worden. In der mehrdimensionalen Aerosolmodellierung finden die zu den diskreten Methoden zählende sektionale Beschreibung eines Aerosolspektrums sowie der zu den parametrisierenden Methoden zählende modale Ansatz weithin Anwendung. Die Vor- und Nachteile der oben genannten Diskretisierungsansätze sind in einer Reihe von Modellvergleichstudien aufgezeigt worden, für die Klimadynamik interessante Zusammenfassungen finden sich in Seigneur et al. (1986), Zhang et al. (1999) und Korhonen et al. (2003a, 2004).

In modalen Methoden werden einzelne Aerosolmoden von Partikelspektren anhand von analytischen Funktionen (üblicherweise Lognormalverteilungen) approximiert, prognostische Parameter sind Moderradien und Standardabweichungen (u.a. Lauer et al., 2005). Pseudo-modale Methoden halten einen dieser Parameter fixiert, z.B. die Standardabweichungen (Herzog et al., 2004; Vignati et al., 2004; Liu et al., 2005). Aerosolmodelle, die dem modalen Ansatz folgen, konnten in den letzten Jahren ihre Eignung in der Quantifizierung der direkten und indirekten Aerosoleffekte bei gleichzeitiger hoher numerischer Leistungsfähigkeit in regionalen und globalen Klimamodellen unter Beweis stellen (u.a. Stier et al., 2006; Langmann et al., 2007; Lohmann et al., 2007).

In sektionalen Aerosolmodellen werden kontinuierliche Aerosolspektren anhand von diskreten Größenklassen mit fixierter oder variabler Weite approximiert (sogenannte *Bins*). Traditionelle Modelle konzentrieren sich auf die Erhaltung eines Momentes einer Aerosolpopulation, üblicherweise die der Partikelmasse oder des Partikelvolumens (u.a. Turco et al., 1979a,b; Timmreck, 1997, 2001; Weisenstein et al., 1997; Pirjola

und Kulmala, 1998; Korhonen et al., 2004). Der sektionale Ansatz ist in den zurückliegenden Jahren ebenfalls auf die gleichzeitige Erhaltung zweier Momente (Aerosolmasse und -anzahl) weiterentwickelt worden (Jacobson, 1997a,b; Adams und Seinfeld, 2002; Zhang et al., 2002; Kokkola et al., 2007). Der im Vergleich zu modalen Methoden hohe numerische Aufwand der größen aufgelösten Beschreibung von Aerosolspektren in sektionalen Aerosolmodellen erlaubt bislang allenfalls die Untersuchung von Teilaspekten von Aerosol–Klima–Interaktionen, entweder gekoppelt an Chemietransportmodelle (u.a. Liu et al., 2005) oder an räumlich reduzierte Versionen globaler Zirkulations- bzw. Klimamodelle, meist bei gleichzeitiger Limitierung der Integrationszeit (u.a. Turco et al., 1979a,b; Lurmann et al., 1997; Timmreck, 2001; Weisenstein et al., 1997, 2007).

Die in der Literatur zu findenden Validierungen modaler und sektionaler Aerosol–Klimamodelle gegenüber Beobachtungen bzw. entsprechende Modellvergleichstudien fokussieren sich nahezu ausschließlich auf troposphärische Verhältnisse (Fitzgerald et al., 1998a,b; Gelbard et al., 1998; Pirjola und Kulmala, 1998, 2000; von Salzen et al., 2000; Gong et al., 2003; Korhonen et al., 2003a, 2004; Ma und von Salzen, 2006; Kokkola et al., 2007). Nur eine sehr überschaubare Zahl von Veröffentlichungen validiert die modellierte Aerosoldynamik unter Bedingungen der freien und oberen Troposphäre sowie unter stratosphärischen Bedingungen (Turco et al., 1979a,b; Timmreck und Graf, 2000; Weisenstein et al., 2007), bis auf wenige Ausnahmen folgen diese Modelle dem sektionalen Ansatz. Im 2006 erschienenen *Assessment of Stratospheric Aerosol Properties* der WMO–Initiative *Stratospheric Processes and their Role in Climate* (SPARC, 2006) findet sich eine umfangreiche Sektion zum Vergleich von Aerosolmodellen der Neunziger Jahre unter stratosphärischen Bedingungen. Die darin aufgeführten zwei- und dreidimensionalen Modelle folgen ebenfalls dem sektionalen Ansatz und lösen die Atmosphäre vertikal von 30 bis 80 km auf. Weisenstein et al. (2007) zeigen den bislang einzigen direkten Vergleich eines modalen mit einem sektionalen Aerosolmodell in mittlerer bis hoher Auflösung der Partikelspektren (3 und 4 Moden bzw. 20, 40 und 150 Bins) unter gesamtatmosphärischen Bedingungen, wenngleich auch nur in zwei Dimensionen. Im Konsens mit anderen Veröffentlichungen (u.a. Korhonen et al., 2003a) bestätigen die Untersuchungen von Weisenstein et al. (2007) den geringen Einfluss hochauflösender Partikelspektren auf Qualität und Quantität der Ergebnisse gegenüber moderat aufgelösten Spektren (siehe auch Kokkola et al., 2007). Zudem stellten sie einen leichten Vorteil der sektionalen Methode gegenüber dem modalen Modell hinsichtlich der Wiedergabe des effektiven Radius fest.

Bislang fokussieren sich Studien der Aerosol–Klima–Interaktionen unter Anwendung sektionaler Aerosolschemen gekoppelt an dreidimensionale Klimamodelle auf bestimmte Teilaspekte atmosphärischer Prozesse, z.B. modellieren Gong und Barrie (2003) die wolkenbildenden Eigenschaften sulfatkontaminierter Seesalzaerosole in der maritimen Grenzschicht. Timmreck (2001) modelliert die Dynamik der stratosphärischen Aerosolschicht mit dem Vorgängermodell dieser Arbeit (SAM), allerdings unter Anwendung der auf 10 hPa vertikal begrenzten Version des Zirkulationsmodells ECHAM4. Diese Studie berücksichtigt alle troposphärischen Quell- und Senkenprozesse sowie die wesentlichen Reaktionen der troposphärischen Schwefelchemie nach Feichter et al. (1996) ergänzt um eine mit dieser Arbeit vergleichbaren stratosphärischen Schwefelchemie.

Eine möglichst realistische Repräsentation der globalen Verteilung von stratosphärischen Spurenstoffen erfordert die Anwendung eines Zirkulationsmodells, welches die Brewer–Dobson–Zirkulation vollständig beschreiben kann. Diese Zirkulationsmodelle der mittleren Atmosphäre stellen jedoch weitaus höhere Anforderungen an die zu verwendende Hardware sowohl hinsichtlich der benötigten CPU–Leistung als auch hinsichtlich der Bereitstellung von virtuellem und physikalischem Speicher, sodass Studien der gesamtatmosphärischen Verteilung von Aerosolen bislang meist unter Anwendung von limitierten Aerosolmodulen, wie sie einleitend beschrieben wurden, durchgeführt worden sind. So untersuchten Pitari et al. (2002) die Entwicklung stratosphärischen Sulfats in verschiedenen IPCC–SRES–Szenarien (*Special Report on Emission Scenarios*, IPCC, 2000a) anhand eines sektionalen Aerosolmodells (11 Bins), welches an ein CTM gekoppelt wurde, dessen atmosphärendynamische Parameter jedoch *offline* von einem grob aufgelösten globalen Zirkulationsmodell der mittleren Atmosphäre gelesen wurden ($10^\circ \times 20^\circ$ horizontale Auflösung, 26 Schichten vertikal bis 0.04 hPa). Takigawa et al. (2002) modellierten stratosphärische Aerosole in einem achtjährigen Hintergrundzustand unter Berücksichtigung der stratosphärischen Chemie von Chlor,

Stickstoff und Schwefel mit einem Mittelatmosphären-Zirkulationsmodell in T21 ($5.6^\circ \times 5.6^\circ$, 32 Schichten vertikal bis ca. 80 km), beschrieben das Partikelspektrum aber anhand einer unimodalen Lognormalverteilung, die auf Beobachtungen nach Deshler et al. (1993) während der Pinatubo-Episode basiert, und fixierten gleichzeitig die Aerosolkomposition auf einen Schwefelsäureanteil von 75 %. Timmreck et al. (1999) und Timmreck und Graf (2006) modellierten stratosphärische Aerosole in MAECHAM4 bzw. dem interaktiven Chemie-Zirkulationsmodell der mittleren Atmosphäre MACHEM4-CHEM in T30 ($3.75^\circ \times 3.75^\circ$, 39 Schichten bis 0.01 hPa) und wendeten den *Bulk*-Ansatz zur Beschreibung des stratosphärischen Aerosolgehalts an.

Peer-Review-Veröffentlichungen von Modellstudien zur Dynamik stratosphärischer Aerosole unter expliziter Berücksichtigung der quasi-zweijährigen Schwingung sind derzeit nicht bekannt.

Folgt man der strategischen Zusammenfassung von Ghan und Schwartz (2007) hinsichtlich der künftigen Ausrichtung der Aerosolmodellierung im Rahmen der Fortführung des IPCC-Prozesses über den vierten Zustandsbericht (IPCC, 2007) hinaus, ist die Einbeziehung von größen aufgelösten sektionalen Mehrkomponenten- und Mehrmomenten-Aerosolmodellen in die dreidimensionale Klimamodellierung den nächsten Generationen der globalen Klima- bzw. Erdsystemmodelle vorbehalten.

1.3 Zielsetzung dieser Arbeit

Das Ziel dieser Arbeit ist es, weitere Einblicke in die Dynamik des aerosol-mikrophysikalischen Systems der Stratosphäre zu erhalten. Der Fokus liegt dabei auf der Modellierung der Mechanismen, die zur Ausbildung der für die Stratosphäre typischen Sulfataerosolverteilungen führen. Da nach dem heutigen Kenntnisstand die Transportprozesse der oberen Troposphäre und der Stratosphäre sowohl für die Ausbildung von Aerosolpartikelpopulationen, aber auch für die Ausbildung von spezifischen geografischen Merkmalen der stratosphärischen Aerosolschicht eine entscheidende Rolle spielen, wird das in dieser Arbeit verwendete Modellsystem der größen aufgelösten Beschreibung von Sulfataerosolen mit einem Assimilationsverfahren von beobachteten zonalen Winden der quasi-zweijährigen Schwingung der tropischen Stratosphäre zur Integrationszeit des Modells gekoppelt, um eine weitestgehend realitätsnahe Modellierung der Variabilität der Brewer-Dobson-Zirkulation zu ermöglichen.

Nach dem heutigen Kenntnisstand zur der Ausbildung und Dynamik stratosphärischer Aerosole, welcher nachfolgend in Kapitel 2 näher ausgeführt wird, lassen sich mit dem hier vorgestellten Modellansatz folgende Fragestellungen untersuchen:

- Kann der in diesem Modell reversibel behandelte Massentransfer von H_2SO_4 zwischen Gas- und Partikelphase in Kombination mit der größen aufgelösten Beschreibung der Partikelspektren die Existenz eines langfristig stabilen tropischen Reservoirs von Sulfataerosolen in der Stratosphäre bestätigen?
- Lassen sich die in der Dekade vor der Eruption des Mt. Pinatubo 1991 beobachteten QBO-modulierten Transportmechanismen von Aerosolen im und aus dem tropischen stratosphärischen Reservoir heraus auch unter Hintergrundbedingungen der stratosphärischen Aerosolschicht reproduzieren?
- Welche Rolle spielen Partikelformationsprozesse in der langfristigen Stabilisierung der stratosphärischen Aerosolschicht und finden diese vornehmlich in oder unterhalb der Stratosphäre statt?
- Spielt die Konversion von Carbonylsulfid (OCS) zu H_2SO_4 eine entscheidende Rolle in der Entstehung neuer Partikel in der Stratosphäre? Stratosphärische Verteilungen von schwefelhaltigen Gasen sind gegenüber ihren troposphärischen Konzentrationen nach wie vor wenig erforscht und bilden einen der wesentlichsten Unsicherheitsfaktoren in der Beurteilung von klimarelevanten aerosoldynamischen Prozessen der Stratosphäre (SPARC, 2006).

- Können Aerosolpartikel in den mittleren bis hohen Breiten der Stratosphäre als gealterte Aerosole angesehen werden, die sich durch unimodale Spektren in Anzahl, Größe und Masse auszeichnen und die ihren Ursprung in der tropischen Stratosphäre oder möglicherweise auch in der oberen Troposphäre haben? Unimodalität liegt im Allgemeinen der Transformation beobachteter optischer Aerosolparameter in sogenannte physikalische Aerosolparameter (Oberflächen-, Volumen- und Anzahldichten) zu Grunde und ist möglicherweise eine Hauptfehlerquelle in der Beurteilung von Modellergebnissen gegenüber den Daten, die optische Instrumente der Partikeldetektion liefern.

Es wird erwartet, dass die Einbeziehung der quasi-zweijährigen Schwingung in die Modellierung der Dynamik der Stratosphäre wesentlich dazu beitragen wird, eine konsistentere Beschreibung derjenigen Prozesse zu erhalten, welche die charakteristischen Eigenschaften der stratosphärischen Aerosolschicht nachhaltig prägen.

1.4 Übersicht

Diese Arbeit gliedert sich wie folgt: Kapitel 2 gibt zunächst einen Überblick über den heutigen Kenntnisstand bezüglich der Art und des Ursprungs stratosphärischer Aerosolpartikel. Es werden darüber hinaus diejenigen Prozesse vorgestellt, die zur Ausbildung einer erdumspannenden, stratosphärischen Aerosolschicht beitragen. Kapitel 3 stellt das mikrophysikalische System, also das Kernmodul des hier vorgestellten Modells vor. Es wird zudem näher auf aerosol-mikrophysikalische Grundlagen eingegangen, um die Interpretation der hier vorgestellten Experimente zu erleichtern. Daran anschließend erfolgt in Kapitel 4 die Vorstellung des globalen Zirkulationsmodells MAECHAM5 sowie die Vorstellung derjenigen physikalischen und chemischen Subkomponenten, die eine Schlüsselrolle in der Modellierung stratosphärischer Aerosole spielen. Kapitel 5 stellt die Ergebnisse einer 16 Jahre umfassenden Modellintegration ohne assimilierter QBO vor. Dieses Experiment stellt den Referenzzustand des hier vorgestellten Aerosol-Zirkulationsmodells MAECHAM5-SAM2 dar, anhand dieser Daten erfolgt die Validierung des Modells gegenüber Satellitenbeobachtungen und In-Situ-Messungen. Die quasi-zweijährige Schwingung wird in einem Experiment berücksichtigt, dessen Ergebnisse in Kapitel 6 vorgestellt werden. Es erfolgt neben einer direkten Gegenüberstellung der Variabilitäten beider Experimente vor allem eine qualitative Analyse der QBO-modulierten Transportprozesse von Aerosolen in der Stratosphäre, wobei der Schwerpunkt hier in der Variabilität des tropischen Reservoirs liegt. Eine Zusammenfassung (Kapitel 7) der wesentlichsten Ergebnisse und ein Ausblick (Kapitel 8) auf zukünftige Modellversionen und deren Applikationen schließen diese Arbeit ab.

Kapitel 2

Aerosole der Stratosphäre

In den frühen sechziger Jahren wurde die Existenz einer die Erde umspannenden Aerosolschicht in der unteren Stratosphäre nachgewiesen (Junge et al., 1961). Die charakterisierenden Eigenschaften dieser Schicht sind seither in einer Vielzahl von Studien untersucht worden (Zusammenfassungen finden sich u.a. in Toon und Farlow, 1981; SPARC, 2006). Diese Arbeiten offenbarten die klimabeeinflussenden Eigenschaften stratosphärischer Aerosole, die insbesondere nach hochreichenden Injektionen vulkanischen Ursprungs von enormer Bedeutung sind (Labitzke und McCormick, 1992; Lacis und Mishchenko, 1995). Sie manifestierten darüber hinaus die Existenz eines stabilen und sich selbst regulierenden Zustands der stratosphärischen Aerosolschicht, deren Partikel im Allgemeinen als stratosphärisches Hintergrund-Aerosol bezeichnet werden (Hofmann und Rosen, 1981; Hamill et al., 1997).

Im Folgenden werden die charakteristischen Eigenschaften der stratosphärischen Aerosolschicht beschrieben. Der Fokus dieser Ausführungen soll im Rahmen dieser Arbeit auf einer Vorstellung der Zusammenhänge unter stratosphärischen Hintergrundbedingungen liegen. Da die stratosphärische Klimatologie jedoch einer ständigen natürlichen Beeinflussung durch Vulkaneruptionen ausgesetzt ist, wird in diesem Kapitel an geeigneter Stelle auf die klimarelevanten Merkmale entsprechender Prozesse eingegangen.

Größensbereich stratosphärischer Aerosole

Schon zu Beginn der systematischen Erforschung der stratosphärischen Aerosolschicht, die vor allem mit ballongestützten Partikeldetektoren (u.a. Rosen, 1964; Hofmann et al., 1975, 1976; Rosen et al., 1975) und hochfliegenden Flugzeugen (u.a. Lazrus und Gandrud, 1974; Gras und Michael, 1979; Sheridan et al., 1994) durchgeführt wurden, konnte festgestellt werden, dass Partikel im stratosphärischen Hintergrundzustand aus unterkühlten flüssigen Schwefelsäure-Wasser-Tropfen bestehen, deren Säureanteil 50 bis 85 % beträgt (Rosen, 1971). Das Aerosolgrößenspektrum in der vulkanisch ungestörten Schicht umfasst Partikel des *Aitken Mode* mit einigen Hundertstel Mikrometern im Durchmesser und reicht bis zu Partikeln im *Accumulation Mode* mit einem Durchmesser von einigen Zehnteln Mikrometern (Toon und Pollack, 1976). Quasi durchgesetzt hat sich in der Literatur die Definition der Größenverteilung nach Pinnick et al. (1976), die stratosphärisches Hintergrund-Aerosol als unimodale Lognormalverteilung mit einem Mode-Radius von $0.0725 \mu\text{m}$ und einer Standardabweichung von 1.86 beschreibt.

Hierzu ist anzumerken, dass In-Situ-Messungen in den ersten zwei Dekaden der systematischen Erforschung der stratosphärischen Aerosolschicht Partikel kleiner $0.1 - 0.3 \mu\text{m}$ nicht erfassen konnten (u.a. Hofmann et al., 1975; Toon und Farlow, 1981). Die Bedeutung von Partikelformationsprozessen in der Aerosoldynamik der Stratosphäre blieb daher lange Zeit unerkannt, denn diese Instrumente konnten lediglich sogenanntes gealtertes Aerosol detektieren (als gealtertes Aerosol der Stratosphäre wird im allgemeinen eine sich über längere Zeiträume entwickelnde Aerosolpopulation bezeichnet, die sich durch einen

einzelnen schmalbandigen *Accumulation Mode* auszeichnet). Hamill et al. (1977b) folgern aus Analysen gemessener Vertikalprofile der Partikelanzahl-Mischungsverhältnisse, stratosphärische Hintergrund-Aerosole würden vornehmlich aus "großen Partikeln" bestehen, und meinen damit Partikel am oberen Grenzbe- reich des *Accumulation Mode*. Viele dieser In-Situ-Messungen erfolgten zudem in hohen Breiten, wo Partikelformationsraten weit geringer ausfallen als in den Tropen und mittleren Breiten. Neuere Erkennt- nisse weisen jedoch darauf hin, dass Aerosolspektren in vielen Bereichen der vulkanisch unbeeinflussten stratosphärischen Aerosolschicht mehr-modaler Natur sind (u.a. Bauman et al., 2003a; Deshler et al., 2003a).

Ein geeigneter Parameter, der eine beliebige Partikelgrößenverteilung insbesondere hinsichtlich ihrer Strahlungseigenschaften beschreibt, ist der flächengewichtete Radius r_{eff} , in der Literatur meist effektiver Radius genannt (u.a. Lacis et al., 1992). Er definiert sich nach Hansen und Travis (1974) als Verhältnis des dritten Momentes zum zweiten Moment einer Partikelpopulation:

$$r_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} N(r) r^3 dr}{\int_0^{\infty} N(r) r^2 dr}, \quad (2.1)$$

wobei N die Partikelanzahl und r den Partikelradius bezeichnet. Im Falle der oben erwähnten unimodalen Beschreibung vereinfacht sich Gl. (2.1) nach Lacis und Mishchenko (1995) zu:

$$r_{eff} = r_m e^{2.5 \sigma_m^2}, \quad (2.2)$$

mit r_m als Mode-Radius der Größenverteilung und σ_m als zugehörige Standardabweichung. Als repräsen- tativer Wert des effektiven Radius für Aerosole der stratosphärischen Aerosolschicht unter Hintergrund- bedingungen kann der von Russell et al. (1996) angegebene Wert von $0.17 \pm 0.07 \mu m$ gelten.

Die in Gl. (2.1) genannten zweiten bzw. dritten Momente einer Partikelgrößenverteilung entsprechen zwei weiteren Kenngrößen von Aerosolpartikelverteilungen, welche vor allem für mögliche chemische Interaktionen von Partikeln mit gasförmigen Spurenstoffen der Atmosphäre von Bedeutung sind: Das zweite Moment beschreibt die Partikeloberflächendichte (*Surface Area Density*), das dritte Moment entspricht der Partikelvolumendichte (*Volume Density*). Typische Werte bei Hintergrund-Aerosolen reichen von <1 bis $5 \mu m^2 cm^{-3}$ für die Oberflächendichte (Hitchman et al., 1994; Lee et al., 2003) bzw. 0.05 bis $0.1 \mu m^3 cm^{-3}$ für die Volumendichte (Bauman et al., 2003b).

Komposition stratosphärischer Aerosole

Ein historischer Überblick zum Erkenntnisstand der 60er und 70er Jahre bezüglich der Kompositon und Morphologie stratosphärischer Aerosolpartikel findet sich in Toon und Farlow (1981). Frühe Beobachtungen befassen sich im Wesentlichen mit der Determierung des Sulfatanteils in Relation zu den in den Partikeln nachgewiesenen Ammonium-Verbindungen. Hayes et al. (1980) beanspruchen für sich die erste saubere Determinierung stratosphärischer Aerosolpartikel vorgenommen zu haben, und zeigen, dass die in früheren Messungen gefundenen kristallinen und nicht-kristallinen Ammoniumanteile auf Verunreinigungen während der Verarbeitung entsprechender Proben zurückzuführen sind.

Sheridan et al. (1994) fanden in UT/LS-Proben (*Upper Troposphere/Lower Stratosphere*) über Kalifornien, dass 91 bis 94 % aller analysierten Partikel auf Sulfat basierten. Weiterhin enthielten diese Proben signifikante Mengen elementaren Kohlenstoffs in Form von Ruß, andere Kohlenstoffverbindungen sowie mineralischem Staub. In der unteren Stratosphäre konnten keine signifikanten Mengen Seesalz-Aerosole nachgewiesen werden, wohingegen der in der UT überwiegende Anteil aller Sulfataerosole als zumindest teil-neutralisiert mit Ammonium-Verbindungen beschrieben wird. Spuren von mineralischem Staub in

stratosphärischen Partikeln sind ebenfalls in einer Reihe anderer Messungen nachgewiesen worden (u.a. Lazrus und Gandrud, 1974; Cadle und Grams, 1975; Kojima et al., 2004).

Studien der Partikelzusammensetzung sind wichtige Indikatoren zur Beurteilung der heutigen und künftigen Auswirkungen des Flugverkehrs auf die obere Troposphäre und Stratosphäre. Blake und Kato (1995) erforschten systematisch den stratosphärischen Gehalt elementaren Kohlenstoffs (Ruß) in der nördlichen Hemisphäre. Sie konnten nachweisen, dass der Rußgehalt in den unteren Regionen der Stratosphäre eindeutig aus den Verbrennungsprozessen von Flugzeugkraftstoffen herrührt, darüber hinaus stellten sie eine deutliche Erhöhung des Rußgehalts noch in 20 km Höhe über den Hauptverkehrsrouten des kommerziellen Luftverkehrs fest (also 10 km oberhalb der Hauptverkehrsrouten). Letzteres ist ein eindeutiges Indiz für den extratropischen Vertikaltransport von atmosphärischen Spurenstoffen, auch aus Regionen unterhalb der Tropopause. Die Oberflächendichte der Rußpartikel liegt in der gleichen Größenordnung wie die der Sulfataerosole der vulkanisch ungestörten Aerosolschicht. Noch relativ unerforscht sind die Auswirkungen der Rußpartikel auf die stratosphärische Ozonchemie (u.a. Bekki, 1997). Es wird jedoch davon ausgegangen, dass Rußpartikel als Keime für die heterogene Partikelformation agieren (Turco et al., 1982), obwohl Massenabschätzungen dieser Partikel in der Stratosphäre diesem Thema keine Relevanz zuordnen (Blake und Kato, 1995). Rußpartikel absorbieren sowohl einfallende solare Strahlung als auch reflektierte terrestrische Strahlung und tragen so zur lokalen Erwärmung der Stratosphäre bei (u.a. Baumgardner et al., 2004).

Eine wesentliche Rolle in der Komposition stratosphärischer Aerosole spielt das Phasenverhalten der binären Schwefelsäure–Wasser–Lösung bzw. das der ternären Systeme unter Einbeziehung von Salpetersäure (HNO_3) oder Chlorwasserstoff (HCl) (u.a. Zhang et al., 1993a,b; Hamill et al., 1996). Unter entsprechend tiefen Temperaturen der polaren Winterhemisphären besteht die Möglichkeit der Kondensation von HNO_3 wodurch sich SLS–Partikel (*Sulfate Ternary Solutions*) formen, welche wiederum die Grundlage der Entstehung polarer stratosphärischer Wolken (*Polar Stratospheric Clouds*, PSC) des Typs 1b bilden (u.a. Tabazadeh et al., 1994a; Tolbert, 1994). Unterhalb von 210 K beträgt der HNO_3 –Massenanteil dieser stratosphärischen Aerosole etwa 10 %, bei ~ 195 K steigt er auf etwa 45 % an (Tabazadeh et al., 1994b). Unter typischen stratosphärischen Chlor–Mischungsverhältnissen enthalten SLS–Partikel ~ 0.1 % Chlor (Zhang et al., 1993a,b). Dies genügt bereits zur Aktivierung von ozonschädigenden Oberflächenreaktionen an den Aerosolpartikeln, auch wenn die Ausbildung von PSCs nicht erfolgt (u.a. Hanson et al., 1994).

Partikel ohne Sulfat bzw. Ruß als Komponenten sind ebenfalls und in vielfältiger Form in der Stratosphäre und Mesosphäre nachgewiesen worden (z.B. Meteoritenfragmente, Kondensate aus Verbrennungsrückständen von Raketentreibstoffen, sich unter dem Einfluss solarer Strahlung formierende Partikel). Deren regionale Bedeutung hinsichtlich der Morphologie stratosphärischer Aerosole und einer eventuellen Beeinflussung ihrer chemischen Eigenschaften sind jedoch derzeit weitestgehend unerforscht (u.a. Gerding et al., 2003). Interessanterweise wird der tägliche Eintrag von Meteoritenfragmenten in die Atmosphäre mit bis zu 260 t d^{-1} abgeschätzt. Der Netto–Massenfluss allen aerosolbildenden Materials aus der Troposphäre in die Stratosphäre wird demgegenüber nach (SPARC, 2006) mit $\sim 820 \text{ t d}^{-1}$ beziffert. Ebenfalls in stratosphärischen Partikeln nachgewiesen worden sind Fragmente reiner Metalle (Toon und Farlow, 1981), welche zusammen mit Rußpartikeln eine signifikante Rolle in der stratosphärischen Strahlungsabsorption zu spielen scheinen (Baumgardner et al., 2004).

Massen- und Anzahl–Konzentrationen

In der Literatur zu findende Angaben der Massenmischungsverhältnisse stratosphärischer Aerosole im Hintergrundzustand schwanken bis zu einem Faktor von 3 (Toon und Farlow, 1981) um ein Mittel von 1 ppbm, wie z. B. von Lazrus und Gandrud (1974) in zentralen Bereichen der Aerosolschicht gemessen wurde. Toon und Farlow (1981) weisen darauf hin, dass diese Abweichungen vor allem auf die sich generell voneinander unterscheidenden Methoden der Erfassung der Partikelmasse zurückzuführen sind (Kondensations–Kammer–Detektoren bzw. Filter). Kent und McCormick (1984) beziffern die globale Masse der stratosphärischen Aerosolschicht in vulkanisch ruhigen Zeiträumen mit 0.15 Tg(S) . In der 2006

erschienenen Zusammenfassung des WMO-Projekts *Stratospheric Processes And their Role in Climate* (SPARC, 2006) wird die globale stratosphärische Aerosolmasse mit 0.65 ± 0.2 Tg auf Basis von extrapolierten In-Situ- und Lidarmessungen der Jahre 1997 bis 2003 angegeben (dies entspricht 0.156 ± 0.05 Tg(S), normalisiert nach Pinnick et al. (1976) bei einem Sulfatmassenanteil von 75 %).

Vergleichende Interpretationen von in der Junge-Schicht gemessenen Partikelanzahlkonzentrationen bzw. von Anzahlmischungsverhältnissen sind ohne Kenntnisse des Messbereichs der jeweiligen Partikeldetektoren nur eingeschränkt möglich. Beispielsweise erfassen die optischen Partikelzähler (*Optical Particle Counter*, OPC) der *University of Wyoming* (u.a. Hofmann et al., 1975; Deshler et al., 2003a) die Partikelanzahl in diskreten Kanälen, welche auf die Erfassung bestimmter Partikelgrößen kalibriert sind. Selbst die Beurteilung gemessener Gesamtanzahlkonzentrationen erfordert mindestens die Nennung der unteren Grenzauflösung des jeweiligen Instruments. Nach Junge et al. (1961) und Hofmann und Rosen (1981) liegen typische Partikelanzahlkonzentrationen im Hintergrund-Zustand zwischen 0.1 bis $< 10 \text{ cm}^{-3}$ im *Accumulation Mode* bzw. bei Partikeln im *Aitken Mode*. Entsprechende Literaturangaben unterliegen aber auch hier starken Schwankungen, so finden sich in Hamill et al. (1977b) Partikelanzahlkonzentrationen von 5 bis $50 \text{ Partikel cm}^{-3}$, die ebenfalls als "typisch" für den Hintergrundzustand der Aerosolschicht bezeichnet werden.

Eine ähnliche Schwankungsbreite findet man in Literaturwerten gemessener Partikelanzahlmischungsverhältnisse, die im *Accumulation Mode* von Brock et al. (1995) mit $\sim 60 \text{ mg}^{-1}$ angegeben werden. Hamill et al. (1977b) geben für die vulkanisch ungestörte Stratosphäre 2 bis 12 mg^{-1} an.

Coarse-Mode-Partikel des binären Systems $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ werden in der Regel nicht in der vulkanisch ungestörten stratosphärischen Aerosolschicht nachgewiesen. Wie man anhand von in den Kapiteln 3.3 und 4.2.2 näher vorgestellten Zusammenhängen zeigen kann, übertrifft die Zeitskala des Wachstums von Sulfatpartikeln in den *Coarse Mode* bei weitem die Zeitskala der Partikelsedimentation, sodass man auch anhand von theoretischen Überlegungen das Auftreten signifikanter Konzentrationen von binären Sulfatpartikeln $\sim > 2 \mu\text{m}$ in der vulkanisch ungestörten Stratosphäre ausschließen kann. Derweil werden in der Stratosphäre vor allem in polaren Wintern signifikante Mengen großer Partikel von bis zu $\sim 10 \mu\text{m}$ im Durchmesser beobachtet (u.a. Deshler et al., 2003b). Dabei handelt es sich entweder um Eispartikel (PSC Typ II) ohne signifikantem Sulfatanteil bzw. um STS-Partikel (*Supercooled Ternary Solution*) oder NAT-Partikel (*Nitric Acid Trihydrate*). Beide letzteren zählen zu den PSC des Typs I, die einen Sulfatanteil von bis zu $\sim 20 \%$ aufweisen können (Tabazadeh et al., 1994a; Carslaw et al., 1994).

Quantitative Aussagen zur Beeinflussung stratosphärischen Aerosols durch zurückliegende Vulkanereignisse, deren Eruptionswolken die Stratosphäre erreichten, unterliegen einer hohen Schwankungsbreite. Zusammenfassungen der wichtigsten Eruptionen der jüngeren Erdgeschichte unter atmosphären-chemischen Gesichtspunkten finden sich u.a. in McCormick et al. (1995), Robock (2000) und Textor et al. (2004).

Die von den Eruptionen der Vulkane El Chichón (17.2°N , 93.1°W , 1982) und Mt. Pinatubo (15.8°N , 120.2°W , 1991) verursachten Erhöhungen der stratosphärischen Aerosolmasse werden in der Literatur relativ übereinstimmend mit 12 bzw. 30 Tg angegeben (McCormick und Veiga, 1992; McCormick et al., 1995). Die als stärkste Eruption des letzten Jahrhunderts bezeichnete Explosion des Mt. Pinatubo ist jedoch als weitaus schwächer zu bewerten als die Eruptionen des Tambora (8.1°S , 117.6°E , 1815) mit ~ 100 Tg Sulfateintrag (McCormick et al., 1995) oder die des Laki (64.1°N , 17.1°W , 1783/84) mit ~ 160 Tg (Oman et al., 2006). Im Fall der Paläoeruption des Vulkans Toba auf Sumatra vor etwa 75000 Jahren wird gar von einem hundertfachen Sulfateintrag gegenüber dem des Mt. Pinatubo ausgegangen (Bekki et al., 1996).

Die durch Vulkaneruptionen verursachten Veränderungen in den Spektren von Partikelanzahl und Partikelgröße sind im Abklingen der Eruptionen von El Chichón und Mt. Pinatubo systematisch erfasst worden, wobei letzterer Parameter meist aus gemessenen Aerosolextinktionen abgeleitet wird. So konnten (Hofmann et al., 1983; Hofmann und Rosen, 1983) nach El Chichón CN-Konzentrationen (*Condensation Nuclei*, $R \sim 0.01 \mu\text{m}$) von 10 cm^{-3} in ca. 30 km Höhe und bis zu 100 cm^{-3} kurz oberhalb der Tropopause nachweisen. Dies entspricht einer Erhöhung gegenüber dem mittleren Hintergrundzustand um etwa eine

Größenordnung. Das Partikelanzahlspektrum selbst wies demnach einen bimodalen Charakter auf, wobei sich gegenüber einer typischen Hintergrundverteilung ein zweiter, aber äußerst schmalbandiger Mode sehr großer und schwerer Partikel mit einem Mode-Radius von ca. $1 \mu\text{m}$ (*Coarse Mode*) ausgebildet hatte. Toon und Farlow (1981) verwiesen darauf, dass verschiedene Messkampagnen nach El Chichón eine Anhebung der Partikelanzahlkonzentrationen im *Coarse Mode* um mehr als eine Größenordnung auf 1 cm^{-3} nachweisen konnten. Russel et al. (1993) verwiesen auf die Detektion trimodaler Verteilungen und Borrmann et al. (1993) auf eine Anhebung der Volumendichte um den Faktor 300, jeweils im Zuge der Eruption des Mt. Pinatubo.

Turco et al. (1983) schließen auf eine Verdoppelung des mittleren Radius (nicht die des Mode-Radius) der Größenverteilung stratosphärischen Aerosols anhand des in die Stratosphäre emittierten SO_2 -Betrags durch die Eruption des Mt. St Helens (46.2°N , 122.2°W , 1980). Anhand von Modellkalkulationen weisen die Autoren außerdem darauf hin, dass eine Verzehnfachung des SO_2 -Eintrags einen Anstieg der mittleren Größe der Aerosolpartikel um den Faktor 4 nach sich ziehen würde.

Russel et al. (1993) zeigten anhand von Sonnenphotometerdaten, dass im Zuge der Pinatubo-Eruption der effektive Radius der vulkanisch beeinflussten Aerosolschicht kontinuierlich von $\sim 0.17 \mu\text{m}$ unter Hintergrundbedingungen auf $0.22 \mu\text{m}$ einen Monat nach der Eruption, $0.56 \mu\text{m}$ nach zwei Monaten und 12 Monate nach der Eruption bis auf $0.86 \mu\text{m}$ anstieg. Russell et al. (1996) kombinieren Daten verschiedenster Instrumente (u.a. Satelliten, Sonnenphotometer, Lidar, Ballonaufstiege) und zeigen ein Anwachsen des effektiven Radius um durchschnittlich $0.55 \mu\text{m}$ im gleichen Zeitraum. Ein entsprechender Anstieg in der Partikeloberflächendichte wird in Russel et al. (1993) mit bis zu $100 \mu\text{m}^2 \text{ cm}^{-3}$ angegeben, typische Werte der Hintergrundverteilung liegen bei <1 bis $5 \mu\text{m}^2 \text{ cm}^{-3}$ (u.a. Hitchman et al., 1994).

Quellen und Ausbildung stratosphärischer Aerosolpartikel

Stratosphärische Aerosole haben ihren Ursprung in der photochemischen Oxidation reduzierter Schwefelgase sowie der von SO_2 , welche auf synoptischen Skalen aus der Troposphäre in die Stratosphäre transportiert werden (reduzierte Schwefelgase sind unter anderem OCS, CS_2 , H_2S und DMS). Photochemisch produzierte gasförmige Schwefelsäure (H_2SO_4) führt einerseits zur direkten Formation neuer Partikel durch Gasphasen-Transformationsprozesse (Nukleation) oder kondensiert auf bereits vorhandenen Partikeln und trägt so zu deren Wachstum bei (u.a. Hamill et al., 1997; Clarke et al., 1998a).

Obwohl schon in den ersten zwei Jahrzehnten der Erforschung der stratosphärischen Aerosolschicht die Bedeutung der Entstehung neuer Partikel durch Gasphasentransformationsprozesse erkannt worden ist, führte man diesen Prozess bis in die Achtziger Jahre hinein auf heterogene Nukleation zurück, also der Entstehung neuer Partikel unter der Einbeziehung von Kondensationskeimen (u.a. Hamill et al., 1977a; Turco et al., 1979a). Aufgrund des damaligen Kenntnisstandes hinsichtlich homogener Nukleationsprozesse sowie die in zahlreichen stratosphärischen Partikelproben nachgewiesenen unlöslichen Komponenten galten in die Stratosphäre gemischte Partikel als Ausgangspunkt der Partikelformation. Erst aufgrund einer deutlichen Intensivierung experimenteller Arbeiten zur Partikelformation und des Wachstums von Partikeln unter Einbeziehung flüchtiger Substanzen wie Schwefelsäure führten zu der Erkenntnis, dass binäre bzw. ternäre homogene Nukleation (Partikelformation über Hydratcluster-Aggregation) der dominierende Prozess der Partikelentstehung in der freien Troposphäre und der unteren Stratosphäre ist (u.a. Laaksonen und Kulmala, 1991; Korhonen et al., 1999; Kulmala et al., 2000). Ioneninduzierte Nukleation scheint in der Stratosphäre signifikant zur Entstehung neuer Partikel beizutragen (u.a. Lee et al., 2003), wobei es den experimentellen und theoretischen Arbeiten auf diesem Gebiet bislang nicht gelungen ist, einen generellen quantitativen Konsens gegenüber der Nukleation auf Basis der Hydratclusterbildung herzustellen.

Zur Zeit gibt es ebenfalls keinen Konsens in der Frage, ob Partikelformation auf die obere Troposphäre limitiert ist oder prinzipiell auch in den mittleren bis hohen Breiten der Stratosphäre stattfinden kann. Obwohl die thermodynamischen Grundlagen der Partikelentstehung und des anschließenden Wachstums

letzterem nicht widersprechen, wird Partikelentstehung außerhalb der Troposphäre in der Literatur als eher unwahrscheinlich angesehen (Brock et al., 1995; Hamill et al., 1997).

Der Nachweis ultra-feiner Partikel gilt als unmittelbarer Indikator der Partikelformation. Ultra-feine Partikel sind in der planetaren Grenzschicht (u.a. Kulmala et al., 2004c; Fiedler et al., 2005; O'Dowd et al., 2007), in der freien Troposphäre (u.a. Clarke et al., 1998b) und in der unteren Stratosphäre (Schröder und Ström, 1997; de Reus et al., 1999; Kojima et al., 2004) nachgewiesen worden. Die Wachstumsraten ultra-feiner Partikel hängen neben der Verfügbarkeit kondensierbarer Gase auch von den thermodynamischen Umgebungsparametern ab. So wachsen Partikel in der Stratosphäre mit zunehmender Höhe langsamer, da der Sättigungsgrad der Gasphasenkonzentrationen kondensierbarer Substanzen gegenüber den jeweiligen Konzentrationen in den Partikeln mit zunehmender Höhe abnimmt (Hamill et al., 1977b; Toon et al., 1979). Desweiteren nimmt mit zunehmender Höhe die Kollisionswahrscheinlichkeit unter Partikeln ab, sodass deren gegenseitige Absorption (Koagulation) unwahrscheinlicher wird (Hamill et al., 1997). Koagulation ist ein bedeutender Wachstumsprozess für ultra-feine Partikel (Toon et al., 1979; Jacobson, 1997a; Kerminen et al., 2001), trägt aber kaum zum Wachstum von Partikeln im *Accumulation* und *Coarse Mode* bei (Seinfeld und Pandis, 1998).

Wie neue Erkenntnisse zum initialen Wachstum neu formierter Partikel der Troposphäre zeigen, behindert das Vorhandensein ultra-feiner Partikel sowohl die Partikelformation selbst, als auch das unmittelbare Wachstum dieser neu formierten Partikel durch Kondensation (Kerminen et al., 2004b). Erst nach Erreichen einer kritischen Größe intensiviert sich das kondensationsbedingte Wachstum, vermutlich aufgrund eines thermodynamischen Aktivierungsprozesses in den Partikeln, dass organische Substanzen der Atmosphäre auf die Partikel kondensieren lässt (Nano-Köhler Theorie; Kulmala et al., 2004a,b). Inwieweit sich diese Theorie auf das Wachstum stratosphärischer Partikel übertragen lässt, steht zur Zeit noch aus. Man kann jedoch vermuten, dass die oben geschilderte Behinderung des Formationsprozesses und des sich unmittelbar daran anschließenden kondensationsbedingten Wachstums aufgrund des Vorhandenseins ultra-feiner Partikel auch in der Stratosphäre Gültigkeit zu haben scheint, da diese Wechselwirkung nicht an die Präsenz gasförmiger organischer Substanzen gebunden ist (Kerminen et al., 2004b).

Die wichtigste Quelle natürlichen Ursprungs der vulkanisch ungestörten stratosphärischen Aerosolschicht ist der Eintrag von Carbonylsulfid (OCS), das im wesentlichen biogenen Ursprungs ist (Crutzen, 1976; Turco et al., 1980; Andreae und Crutzen, 1997). Obwohl OCS-Inventare nach wie vor mit großen Unsicherheiten behaftet sind (SPARC, 2006), lässt sich eine relativ homogene globale Verteilung dieses Gases in der Troposphäre mit einem polwärtigen Gradienten von höchstens 30 % feststellen (Chin und Davis, 1995). OCS verhält sich in der Troposphäre nahezu inert und weist daher unterhalb der Tropopause so gut wie keinen ausgeprägten vertikalen Gradienten auf. Die mittlere troposphärische Konzentration von ~ 500 pptv ist die höchste atmosphärische Konzentration aller Sulfataerosol-Vorläufergase (SPARC, 2006). In der Stratosphäre wird dieses Gas durch Photolyse und photochemische Reaktionen mit molekularem Sauerstoff bzw. dem Hydroxyl-Radikal (OH) in verschiedene andere Sulfataerosol-Vorläufergase oxidiert, die nachfolgend zu SO_2 und schließlich zu H_2SO_4 konvertieren.

Nach dem heutigen Kenntnisstand konvertieren jedoch nur etwa 10 % des OCS in der Stratosphäre zu Sulfataerosol, der restliche Anteil der sich bildenden Sulfataerosol-Vorläufergase wird dem aus der Troposphäre transportierten SO_2 zugeschrieben (SPARC, 2006). Während in den letzten zwei Dekaden zahlreiche Messkampagnen unter anderem den SO_2 -Gehalt in der freien Troposphäre erfassten (u.a. ACE, TRACE-P), existieren nur wenige Messungen der globalen und insbesondere der vertikalen Verteilung von SO_2 in der Stratosphäre (Meixner, 1984; Rinsland et al., 1995), sodass eine Quantifizierung der in die Stratosphäre eingebrachten Mengen SO_2 derzeit nur anhand von empirischen Zusammenhängen bzw. über die Modellierung erfolgen kann. Dies stellt derzeit einen der wesentlichsten Unsicherheitsfaktoren der stratosphärischen Aerosoldynamik dar. Ein umfassender Überblick zu troposphärischen SO_2 -Messungen findet sich in SPARC (2006) und soll an dieser Stelle nicht wiedergegeben werden.

Ein Vielfaches der kontinuierlichen natürlichen und anthropogenen Emissionen von Sulfataerosol-Vorläufergasen in der Stratosphäre erfolgt durch sporadische, etwa einmal pro Dekade auftretende Vulkaneruptionen, die mit einem Vulkan-Explosivitäts-Index (VEI) von mindestens 5 eingestuft werden

(Robock, 2000). Weit häufiger auftretende Eruptionen mittlerer Stärke (VEI 2–4) scheinen nicht unbedeutend zum stratosphärischen Sulfat-Budget beizutragen (Carn et al., 2007), ebenso wie kontinuierlich ausgasende Vulkane (VEI 0; Graf et al., 1998; Textor et al., 2004).

Neben den unter klimatologischen Gesichtspunkten bedeutenden Schwefel-Emissionen emittieren Vulkane große Mengen Wasser in die Stratosphäre (Glaze et al., 1997) und einen für die Ozon-Chemie der Stratosphäre nicht unbedeutenden Anteil HCl (Hofmann und Solomon, 1989; Brasseur und Granier, 1990; Hanson et al., 1994; Tie und Brasseur, 1995). Die spezifischen Charakteristika jeder einzelnen Eruption (Zusammensetzung und Temperatur des Magmas, Gasgehalt, Energiefreisetzung, meteorologische Verhältnisse) machen es aber nahezu unmöglich, generelle Aussagen zur Zusammensetzung der Gase in den Eruptionswolken zu treffen (Sparks et al., 1997).

Untersuchungen explosiver Vulkanereignisse der letzten 20 Jahre, aber auch Modellierungen mehr oder weniger idealisierter Eruptionen bestätigen, dass der überwiegende Anteil stratosphärischer Wasser-Emissionen vulkanischen Ursprungs in Form von Eis erfolgt (Zusammenfassungen hierzu finden sich in Textor et al. (2003) und Rose et al. (2007)). Die so emittierte Masse an Wasser übertrifft die von Vulkanen in die Stratosphäre emittierte Schwefelmasse um das 10 bis 100-fache und kann bis zu 7 % des gesamt-stratosphärischen Wassergehalts betragen (Glaze et al., 1997). Eine Erhöhung des stratosphärischen H₂O-Gehalts wirkt sich direkt auf die Aerosolmikrophysik aus: Ein erhöhter Wasserdampfdruck führt zu einem beschleunigten Wachstum der Partikel, sowohl durch Absorption von Wassermolekülen als auch durch Absorption von H₂SO₄-Molekülen. Größere Partikel beeinflussen den Strahlungshaushalt der stratosphärischen Aerosolschicht und bieten aufgrund ihrer erhöhten Oberfläche die Möglichkeit für beschleunigte heterogene chemische Reaktionen. Darüber hinaus beschleunigt eine erhöhte H₂O-Konzentration in der Stratosphäre die Oxidation von Sulfataerosol-Vorläufergasen, insbesondere die von SO₂ (Textor et al., 2003, 2004).

Stratosphärische Vulkanemissionen von Sulfataerosol-Vorläufergasen erfolgen überwiegend in der Form von SO₂ und H₂S. Letzteres wird innerhalb von wenigen Tagen zu SO₂ oxidiert (Textor et al., 2003), welches wiederum innerhalb ~30 Tagen zu Sulfataerosol konvertiert (Bluth et al., 1992; Prata et al., 2007). Der Schwefelgehalt der Eruptionswolken wird in Textor et al. (2003) mit 1 bis 25 Volumen-% angegeben. Ein beobachteter geringer SO₂-Gehalt in den Wolken spezifischer Eruptionen (z.B. Rabaul, 1994) erklärt sich zum einen mit der hohen SO₂-Auswaschungseffizienz der in ihnen befindlichen eishaltigen Hydrometeore (Pinto et al., 1989; Rose et al., 2007). Zum anderen wird vermutet, dass SO₂ von Eis-Asche-Konglomeraten während ihres Aufstiegs eingeschlossen wird und erst nachfolgend kontinuierlich aus diesen entweicht (u.a. Textor et al., 2003).

Die Literaturangaben der Schwefel-Emissionen vulkanischen Ursprungs schwanken zwischen 1 und 25 Tg a⁻¹ (im Mittel < 10 Tg a⁻¹) (Textor et al., 2004), wovon etwa ein Drittel in der Troposphäre verbleibt (Graf et al., 1997). Pyle et al. (1996) beziffern den durchschnittlichen stratosphärischen Schwefeleintrag der letzten 200 Jahre mit 0.3 bis 3 Tg a⁻¹. Die charakteristischen Beträge der SO₂-Emissionen einzelner Eruptionen erscheinen weit eindrucksvoller: So emittierten die Vulkane El Chichón (1982) 7 bis 12 Tg SO₂ (Turco et al., 1983; McCormick et al., 1995) und Mt. Pinatubo (1991) 14 bis 26 Mt SO₂ in die Stratosphäre (Krueger et al., 1995; Guo et al., 2004). Abschätzungen für die Toba-Eruption schwanken zwischen 70 und 6000 Tg emittierten SO₂ (Textor et al., 2004).

Zu direkten stratosphärischen Sulfat-Emissionen (SO₄²⁻) vulkanischen Ursprungs kann gesagt werden, dass diese in Emissionsinventaren gegenüber den Beträgen von Vorläufergasen als unbedeutend betrachtet werden. So geben Turco et al. (1983) für die Eruption des Mt. St. Helens (1980) Schwefelsäure-Emissionen an, die zwei Größenordnungen unterhalb denen von SO₂ liegen (3 ppbv gegenüber 110–170 ppbv).

Neben Injektionen vulkanischen Ursprungs kann ein direkter Materialeintrag in die stratosphärische Aerosolschicht auch durch pyro-konvektive Ereignisse verursacht von großflächigen Waldbränden in borealen Gebieten der Erde hervorgerufen werden (u.a. Trentmann et al., 2006). Anhand verschiedener Satelliten- und Lidar-Daten konnten erhöhte optische Dicken in stratosphärischem Aerosol nachgewiesen werden (u.a. Fromm et al., 2005), die zwar eindeutig mit diesen Extremereignissen korreliert sind,

aber möglicherweise auch mit dem stratosphärischen Eintrag kohlenstoffhaltiger Primärpartikel zusammenhängen (Rosenfeld et al., 2007). Die steigende Zahl entsprechender Beobachtungen lässt vermuten, dass pyro-konvektive Ereignisse eine derzeit unterbewertete Quelle stratosphärischer Aerosole und anderer Spurenstoffe sind (Luderer et al., 2006).

Wie bereits angesprochen, sind die Emissionen des Luftverkehrs ein weiterer Ursprung von Sulfataerosolen in der unteren Stratosphäre (IPCC Special Report, 2000b, und Referenzen darin). Vornehmlich Wasser und SO₂ werden von Triebwerken emittiert, Rußpartikel gelten als (unerwünschte) Verbrennungsrückstände (u.a. Pueschel et al., 1997). Außerdem erfolgt die Freisetzung von CO₂ und Stickoxiden, letztere spielen eine wesentliche Rolle in der stratosphärischen Ozonchemie. Die im Nachlauf von Triebwerken gemessene Anzahlkonzentration von Partikeln verhält sich proportional zum Schwefelgehalt des verwendeten Treibstoffs. Dies ist ein klarer Indikator für homogene Nukleation als dominierenden Aerosolformationsprozess in den Flugkorridoren der kommerziellen Luftfahrt (Ferry et al., 1999).

Hofmann (1990, 1991) schlussfolgert anhand von Beobachtungen, dass im Zuge des weltweit rapide wachsenden Luftverkehrs die stratosphärische Aerosolmasse kontinuierlich um jährliche 5–6 % ansteigt. Arbeiten in den zurückliegenden Jahren konnten dem jedoch keine Relevanz zuweisen, einzelne Messreihen (z.B. SAGE II) zeigen sogar einen gegenläufigen Trend (u.a. Zuev et al., 2001; Deshler et al., 2006; SPARC, 2006).

Senkenprozesse und Tropopausenaustausch

Verdunstung flüssiger Aerosole, Sedimentation und atmosphärendynamische Mischungsvorgänge sind die limitierenden Prozesse der stratosphärischen Aerosolschicht. Die Existenz flüssiger Aerosolpartikel in der Atmosphäre wird aufgrund der stratosphärischen Temperaturinversion auf ca. 30 bis 35 km Höhe begrenzt, da mit steigender Temperatur die Dampfdrücke der Aerosolkomponenten stetig ansteigen und so die Sättigungsgrade der Gasphasenkomponenten gegen Null tendieren (Hamill et al., 1977b). Dies verhindert zunächst die Neuf ormation von Partikeln aus der Gasphase heraus und führt mit steigender Höhe bzw. Temperatur zur Ausbildung eines inversen Sättigungsgrades (die Gasphase einer Substanz ist untersättigt gegenüber dessen Konzentration an der Oberfläche der Partikel). D.h. aufgrund der thermodynamischen Randbedingungen verdunsten Aerosolpartikel zwangsläufig, wenn sie auf ein bestimmtes Höhenniveau in der Stratosphäre gemischt werden.

Die vertikale Struktur der stratosphärischen Aerosolschicht wird geprägt von den Sedimentationseigenschaften der Aerosole, deren Fallgeschwindigkeit mit steigender Höhe relativ stark zunimmt (Kasten, 1968). Sedimentation von Partikeln unter dem Einfluss des Gravitationsfeldes der Erde bestimmt darüber hinaus die Verweildauer vor allem von *Accumulation*- und *Coarse-Mode*-Partikeln (SPARC, 2006).

Der überwiegende Teil der stratosphärischen Aerosole verlässt jedoch die stratosphärische Aerosolschicht aufgrund von extratropischen Transportprozessen (SPARC, 2006). Die Partikel die sich in Luftmassen befinden, die diabatisch in die unterste Stratosphäre absteigen, werden u.a. durch quasi-isentropischen Transport in sogenannten Tropopausenfaltungen und *Cutoff*-Zyklonen irreversibel aus der Stratosphäre entfernt (Hamill et al., 1997; Stohl et al., 2003). Diese Prozesse, die dem Stratosphären-Troposphären-Austausch (*Stratosphere-Troposphere Exchange*, STE) zugerechnet werden, transportieren stratosphärische Luftmassen bis tief in die Troposphäre (u.a. Ansmann et al., 1993; Holton et al., 1995) und sind stark korreliert mit dem UT/LS-Tracertransport (Appenzeller et al., 1996).

In Hamill et al. (1997) wird außerdem auf die Möglichkeit hingewiesen, dass stratosphärische Partikel in den mittleren Breiten aufgrund von sporadisch auftretenden Interaktionen mit in die Stratosphäre eindringenden konvektiven Wolken irreversibel entfernt werden können. Dieser Prozess ist jedoch nach wie vor wenig verstanden, sodass es hier schwer fällt, dessen Bedeutung als Senkterm stratosphärischer Aerosolpartikel einzuschätzen.

Bis in die hohen Breiten transportierte Sulfataerosolpartikel werden in den Wintermonaten effektiv in

diabatisch absteigenden Luftmassen der Polarwirbel aus der Stratosphäre entfernt. Dieser Prozess wird unterstützt von der Sedimentation, wenn Sulfataerosolpartikel in die Bildung von PSCs eingebunden werden (u.a. Arnold et al., 1992; Tabazadeh et al., 1994a). Diese Mechanismen sind insofern von Bedeutung, da sie der Stratosphäre irreversibel reaktiven Stickstoff und Wasser entziehen, also denifizierend bzw. dehydrierend wirken und dadurch die Relaxation des stratosphärischen Ozonabbaus hinauszögern (u.a. Toon et al., 1990; Fahey et al., 1990; Tabazadeh et al., 2000). Der Massenanteil der in den Polarwirbeln aus der Stratosphäre entfernten Aerosole beträgt nach einer Grenzwertabschätzung von Hamill et al. (1997) höchstens ein Viertel des irreversiblen Tropopausentransports in den mittleren Breiten.

Eine der wesentlichen Unsicherheiten in der Beurteilung der von Wolken induzierten Rückkopplungen im Klimasystem stellen Cirrus-Wolken der UT/LS dar (IPCC, 2007). Neben den Aerosolen der UT beeinflussen die durch Mischungsvorgänge in Regionen unterhalb der Tropopause transportierten Aerosole die Eiskernung und somit die Cirrus-Wolkenbildung (u.a. Liu und Penner, 2002; Kärcher und Lohmann, 2002; Kojima et al., 2004). Obwohl die Zusammenhänge zwischen verschiedenen Aerosoleigenschaften und heterogener bzw. homogener Eiskernung derzeit noch nicht zufriedenstellend erfasst werden konnten (u.a. Kärcher et al., 2006), scheinen die von den STE-Prozessen geprägten Aerosol-Wolken-Interaktionen im Strahlungshaushalt der Erde eine signifikante Rolle zu spielen (Lynch et al., 2002).

Dynamik der stratosphärischen Aerosolschicht

Die globale Verteilung von Aerosolen in der Stratosphäre und somit die charakteristische Ausbildung der stratosphärischen Aerosolschicht werden geprägt von den Transportmechanismen der stratosphärischen Residualzirkulation. Der Transport stratosphärischer Spurenstoffe ist untrennbar verbunden mit den Troposphären-Stratosphären-Austauschprozessen und folgt im wesentlichen dem in Holton et al. (1995) zusammengefassten Schema von aufsteigenden Luftmassen in der tropischen Konvergenzzone, dem zu den Winterpolen ausgerichteten Meridionaltransport oberhalb der 380 K Isentrope sowie dem abwärtsgerichteten Transport der in die mittleren bis hohen Breiten transportierten Luftmassen. Der in Verbindung mit der Residualzirkulation am Äquator nahezu symmetrisch aufsteigenden Luftmassen wird eine von der QBO induzierte Asymmetrie überlagert, welche maßgeblich den stratosphärischen Meridionaltransport bis hinein in die Polarwirbel der Winterhemisphären moduliert (Baldwin et al., 2001, *Plate 3*)

Analysen optischer Aerosolparameter der SAM- und SAGE-Instrumente offenbarten die Existenz eines tropischen stratosphärischen Reservoirs (TSR) $\sim \pm 20^\circ$ entlang des Äquators, das eine starke Modulation durch die QBO erfährt (Trepte und Hitchman, 1992; McCormick und Veiga, 1992; Neu et al., 2003). In Richtung Subtropen zeigt sich ein ausgeprägter meridionaler Gradient in den Verteilungen atmosphärischer Spurenstoffe (u.a. Trepte et al., 1994; Choi et al., 1998; Randel et al., 1998). Dieser kennzeichnet die subtropische Mischungsbarriere, welche den meridionalen Transport aus dem TSR heraus behindert (Polvani et al., 1995; Shuckburgh et al., 2001). Grant et al. (1996) zeigen, dass die Ausbildung und Stärke der subtropischen Mischungsbarriere von der saisonalen Variabilität des TSR abhängt und dem Einfluss der QBO unterliegt. Während der östlichen QBO-Phase ist der subtropische Gradient des TSR in der Winterhemisphäre scharf ausgeprägt und etwa 1° breit, in der Sommerhemisphäre dagegen bis zu 20° geweitet.

In den meridionalen Verteilungen des Pinatubo-Aerosols zeigen sich charakteristische, an die jeweiligen QBO-Phasen gekoppelte Merkmale, die sich u.a. in SAGE II (Trepte und Hitchman, 1992) und HALOE-Daten (Choi et al., 1998) gleichermaßen nachweisen lassen. Regionen unterhalb von am Äquator abwärts propagierenden westlichen zonalen Winden sind gekennzeichnet von meridionaler Divergenz. Zonen maximaler Aerosolkonzentrationen innerhalb des TSR erscheinen dann vertikal kompakter und erreichen die höchste subtropische Ausbreitung unter maximalen östlichen zonalen Winden der QBO. Westliche QBO-Phasen sind geprägt von meridionaler Konvergenz, das Aerosolmaximum im TSR erscheint vertikal gestreckt und weist etwas höhere Konzentrationen auf als in der QBO-Ostphase.

Der Transport von Aerosolen und anderen Spurenstoffen aus dem TSR heraus erfolgt durch überlagerte Transportphänomene der Residualzirkulation und der QBO. Tropische und polare Luftmassen in der nördlichen Winterhemisphäre stehen durch sogenannte Filamente in Verbindung: Die von brechenden Rossbywellen aus den Tropen beförderten Luftmassen "wickeln" sich in relativ schmalen Bändern um den polaren Wirbel und mischen so TSR-Spurenstoffe irreversibel in die mittleren und hohen Breiten (Plumb et al., 1994; Polvani et al., 1995; Waugh et al., 1994; Waugh, 1996).

Trepte und Hitchman (1992) identifizierten wenige Kilometer oberhalb der tropischen Tropopause ein unteres Transportregime für TSR-Aerosole, das in westlichen QBO-Phasen bedeutend mehr Material aus dem TSR in die mittleren Breiten transportiert als in östlichen QBO-Phasen, vorzugsweise in Richtung der Winterhemisphäre. Aerosole die in Regionen oberhalb dieses unteren Transportregimes transportiert werden, tendieren dazu, eine gewisse Zeit im TSR zu verbleiben, bevor sie vorzugsweise in östlichen QBO-Scherphasen relativ zur Brewer-Dobson-Zirkulation polwärtig transportiert werden, wobei hier der nordhemisphärische Transport dominiert (Trepte und Hitchman, 1992; Choi et al., 2002).

Betrachtet man die von der Eruption des Mt. Pinatubo verursachten Veränderungen in der TSR-Aerosolkonzentration als eine Art obere Randbedingung für Studien des polwärtigen Transports von Aerosolen, können die von Waugh (1996) und Grant et al. (1996) getroffenen Abschätzungen des Meridionaltransports von vulkanischem Material aus dem TSR heraus auch auf die stratosphärische Aerosolschicht unter Hintergrundbedingungen übertragen werden. Demnach werden während der östlichen QBO-Phase 8 bis 10 % der im TSR residierenden Aerosole in die mittleren Breiten transportiert, wobei der Transportfluss sein Maximum im Winter erreicht. Den verstärkten Meridionaltransport von Aerosolen während der westlichen QBO-Phase beziffern Grant et al. (1996) mit einem Faktor von 1.65 ± 0.45 .

Obwohl die QBO-Modulationen von stratosphärischem Aerosol vulkanischen Ursprungs relativ gut dokumentiert sind, gibt es nur wenige Veröffentlichungen zu beobachteten QBO-Signalen in der stratosphärischen Aerosolschicht im Hintergrundzustand. Dies gilt für Aerosole des TSR und der Extratropen gleichermaßen. Aerosol-Klimatologien über Sibirien, welche anhand von Lidar-Messungen zwischen $52 - 69^\circ\text{N}$ und $73 - 106^\circ\text{O}$ erstellt worden sind, zeigen ein schwaches QBO-Signal im gesamten gemessenen Höhenbereich zwischen 10 und 30 km (Nevzorov et al., 2004; Zuev et al., 2006).

Eine weitere Klimatologie der stratosphärischen Aerosolschicht im Hintergrundzustand ist am *Mouna Loa Observatory* (kurz: MLO, 19.5°N , 155.6°W) anhand von Lidar-Messungen erstellt worden (u.a. Barnes und Hofmann, 1997, 2001). Diese Klimatologie weist eine jährliche Variation von bis zu 50 % auf, mit einer deutlichen Intensivierung im gemessenen Rückstreuoeffizienten (*Backscatter Ratio*) während des nordhemisphärischen Winters. Die Sommerprofile zeigen im Mittel der östlichen QBO-Phasen erhöhte Messwerte oberhalb von 25 km und korrespondieren mit dem von Trepte und Hitchman (1992) gefundenen oberen Transportregime. Bei der Interpretation der MLO-Daten muss beachtet werden, dass sich MLO aufgrund seiner geografischen Lage unter dem Einfluss der sich saisonal variierenden subtropischen Mischungsbarriere befindet, wodurch zeitweise Luftmassen tropischen Ursprungs untersucht werden und zeitweise Luftmassen mit Ursprung in den mittleren Breiten.

Kapitel 3

Das Modell der Aerosolmikrophysik SAM2

Die Experimente dieser Arbeit wurden mit dem gekoppelten Aerosol-Klimamodell MAECHAM5–SAM2 durchgeführt. Als Rahmenmodell dient die Mittelatmosphärenversion des MPI–M–Klimamodells ECHAM5, das die globale Zirkulation der Troposphäre, der Stratosphäre und der unteren Mesosphäre beschreibt. Schnittstellen in den physikalischen Parametrisierungen des Zirkulationsmodells binden die Submodelle der Aerosolmikrophysik (SAM2), der physikalischen Quellen und Senken von Sulfataerosol sowie einen Algorithmus zur Berücksichtigung der quasi–zweijährigen Schwingung der äquatorialen Stratosphäre ein. Das Modell der Aerosolmikrophysik SAM2 basiert auf dem Aerosolmodell SAM (Timmreck, 1997), welches an das Vorgängermodell des hier verwendeten Klimamodells MAECHAM4 gekoppelt ist (Timmreck, 2001). Die physikalischen Quellen und Senken von Sulfataerosol basieren auf entsprechenden Parametrisierungen des MPI–M–Aerosol–Klimamodells ECHAM5–HAM und wurden den Erfordernissen einer diskreten Beschreibung des Aerosolspektrums angepasst. In den folgenden Abschnitten werden diejenigen Komponenten von MAECHAM5–SAM2 ausführlicher behandelt, denen eine essentielle Bedeutung im Rahmen dieser Arbeit beigemessen wird.

3.1 Diskretisierung der Aerosolverteilung

Grundgleichung der Aerosoldynamik

Die zeitliche Änderung einer Aerosolpartikelverteilung $n(r)$ wird durch die allgemeine dynamische Zustandsgleichung für Aerosole beschrieben (u.a. Jacobson, 2005):

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{v}n = \nabla \cdot D\nabla n + \sum_{n=1}^{N_e} R_n, \quad (3.1)$$

wobei \mathbf{v} die Fluidgeschwindigkeit und D die Diffusionskonstante des jeweiligen Mediums bezeichnet. Der Ausdruck $\nabla \cdot \mathbf{v}n$ repräsentiert die Advektion und $\nabla \cdot D\nabla n$ die turbulente Diffusion. Beide Terme beschreiben die räumliche Ausbreitung von Aerosolen in der Atmosphäre (Transport) und werden in ihrer linearisierten Form in einem separaten Modul des Zirkulationsmodells MAECHAM5 numerisch behandelt (siehe auch Kapitel 4).

Die Summe auf der rechten Seiten von Gl. (3.1) fasst sämtliche im Modell berücksichtigten Quellen und Senken des Aerosols zusammen, wobei R_n die zeitliche Änderung einer Aerosolverteilung durch den n -ten externen Prozess und N_e die Anzahl dieser externen Prozesse bezeichnet.

Wie in Kapitel 1 beschrieben, beeinflussen externe Prozesse eine Aerosolverteilung auf vielschichtige Weise. Prozesse rein physikalischer Natur beeinflussen die Aerosolpopulationen hauptsächlich auf lokalen bis synoptischen Skalen. Dem gegenüber unterliegt atmosphärisches Aerosol einer generellen Beeinflussung durch Prozesse mikrophysikalischer Natur in Abhängigkeit der thermodynamischen und chemischen Umgebungsparameter.

Expandiert man den Prozessterm von Gl. (3.1) hinsichtlich der Dynamik von Aerosolpopulationen, erhält man (u.a. Friedlander, 1977):

$$\sum_{n=1}^{N_e} R_n = \left. \frac{\partial n}{\partial t} \right|_{kond/evap} + \left. \frac{\partial n}{\partial t} \right|_{koag} + \left. \frac{\partial}{\partial z}(v_s n) \right|_{sedim} + \left. \frac{\partial n}{\partial t} \right|_{quellen,senken}, \quad (3.2)$$

wobei v_s für die Fallgeschwindigkeit von Aerosolpartikeln steht.

Die Indizierung der Terme in Gl. (3.2) verweist auf die jeweiligen mikrophysikalischen Prozesse des Aerosolwachstums (Kondensation) bzw. der Verdunstung (*Evaporation*) sowie des Aerosol-Massentransports von kleinen zu grosseren Partikeln (Koagulation). Diese drei Prozesse werden im mikrophysikalischen Kern des Modells, dem sektionalen Aerosolmodell SAM2, berücksichtigt. Das Aerosolmodell parametrisiert weiterhin die einzige mikrophysikalische Quelle neuer Aerosolpartikel: Die direkte Formation neuer Partikel durch Gasphasenmolekül-Aggregation, ein Prozess der im Allgemeinen als Nukleation bezeichnet wird (siehe Kapitel 3.2). In Gl. (3.2) wird Nukleation zusammengefasst mit den physikalischen Quellen (Emissionen) und Senken (Trocken- und Nassdeposition) von Aerosolpartikeln.

Der als Sedimentation indizierte Term in Gl. (3.2) bezeichnet das Ausfallen von Aerosolpartikeln aus der Atmosphäre. Sedimentation wird explizit und partikelgrößen aufgelöst im Modell behandelt (Kapitel 4.2.2).

Diskretisierung

Wie sein Vorgängermodell SAM berücksichtigt das sektionale Aerosolmodell SAM2 ausschließlich Sulfataerosol. Dieses wird im Modell idealisiert beschrieben als sphärische Flüssigkeitstropfen des binären Systems Schwefelsäure-Wasser ($\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$). Obwohl andere Aerosolkomponenten in der Stratosphäre für bestimmte klimatologische Prozesse (u.a. PSC-Formation) von Bedeutung sein können bzw. Spuren anderer Komponenten regional nachgewiesen worden sind (Kapitel 2), vernachlässigt der hier vorgestellte Modellansatz derartige Komponenten, da sie für die Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit keine entscheidende Rolle spielen.

Das Partikelspektrum des Aerosolmasse wird im sektionalen Aerosolmodell SAM2 anhand von diskreten Sektionen, sogenannten Bins approximiert, deren Intervallgrenzen fixiert sind. Als in der Literatur gebräuchlicher Name für Aerosolmodelle, die diesem Ansatz folgen, hat sich *Fixed Sectional Aerosol Model* durchgesetzt (Gelbard et al., 1980; Korhonen et al., 2003a).

Kritz (1975) formulierte einen bis heute gebräuchlichen Ansatz, eine kontinuierliche Partikelgrößenverteilung zu diskretisieren. Ausgehend von der Definition der Größe des kleinsten vom Modell zu berücksichtigten Partikels mit dem Radius r_0 erfolgt die Unterteilung in diskrete Sektionen durch Verdoppelung entweder des Volumens oder der Masse der Partikel. Dieser Ansatz führt zwangsläufig auf eine äquidistante Verteilung der mittleren Partikelradien mit fixierten Intervallgrenzen.

SAM2 folgt wie sein Vorgängermodell dem Ansatz der Massenverdopplung, da die Aerosolmasse im Modellsystem als prognostische Variable behandelt wird. Die mittleren Radien des diskreten Spektrums berechnen sich wie folgt:

$$r_k = r_0 \cdot 2^{\frac{k-1}{3}} \quad \text{mit } k = 1 \dots N_k, \quad (3.3)$$

wobei k das jeweilige Bin und N_k die Anzahl der Bins bezeichnet. In einem sektionalen Aerosolmodell repräsentiert somit jede Sektion die mittlere Verteilung eines beliebigen prognostischen Aerosolparameters in seinen Intervallgrenzen $r_k \pm \Delta r/2$.

Folgt man der Theorie der Nukleation des binären Systems Schwefelsäure–Wasser (u.a. Heist und Reiss, 1974), formen sich aus der Gasphase unter bestimmten Bedingungen, die im wesentlichen von der Temperatur und den Dampfdrücken der einbezogenen Komponenten abhängt, zunächst Hydrate aus 1 bis 5 Molekülen Schwefelsäure und mehreren Molekülen Wasser und einem Radius zwischen 0.3 nm und 0.7 nm. Diese Hydrate wachsen rasch zu Clustern aus mehreren hundert Molekülen Schwefelsäure und einer Größe von einigen Nanometern heran und werden als Aerosole bzw. Partikel bezeichnet, wenn sie einen stabilen Zustand erreicht haben (Seinfeld und Pandis, 1998). Aerosolpartikel kleiner 9 nm werden in der Literatur üblicherweise als ultra-feine Partikel bezeichnet (u.a. Lee et al., 2003). Der Partikelbereich zwischen 0.3 und 1 nm stellt jedoch keinen eigenen Mode dar, sondern wird dem *Nucleation Mode* zugerechnet.

In den hier vorgestellten Untersuchungen wird ein Diskretisierungsansatz gewählt, der den Partikelgrößenbereich zwischen 1 nm und 2.6 μm (im Radius) anhand von 35 Bins auflöst und somit explizit den oberen Bereich ultra-feiner Partikel einschließt.

Die aerosol–prognostische Variable

Um in einem dreidimensionalen Zirkulationsmodell die zeitliche Entwicklung der räumlichen Verteilung eines atmosphärischen Spurenstoffs momentenerhaltend beschreiben zu können, muss ein entsprechender, diese Substanzen charakterisierender Zustandsparameter als prognostische Variable definiert werden. In der Familie der Zirkulationsmodelle ECHAM wird als prognostische Variable eines atmosphärischen Spurenstoffs ihr Massenmischungsverhältnis gegenüber der sie einbettenden räumlich diskretisierten Luftmasse definiert. Ein wesentlicher Unterschied des Aerosolmodells SAM2 gegenüber seinem Vorgängermodell SAM besteht in der Behandlung dieser prognostischen Aerosolgröße. Während in ECHAM4–SAM die Aerosolmasse aller Sektionen akkumuliert prognostiziert wird, entspricht jede dieser Sektionen in der hier vorgestellten überarbeiteten Formulierung des Modells jeweils einer prognostischen Variablen.

3.2 Partikelformation

Während natürliche und anthropogene Emissionen bezogen auf ihre emittierende Masse die bedeutendsten Quellen atmosphärischer Aerosole darstellen, ist die direkte Formation neuer Partikel durch Gasphasentransformation die bedeutendste Aerosolquelle bezogen auf die Anzahl der emittierten Partikel.

Obwohl die Bedeutung dieser Quelle sekundärer Partikel schon im ersten Drittel des letzten Jahrhunderts erkannt worden ist (u.a. Wilson, 1927) und sich seither eine Reihe von Ansätzen zur theoretischen Beschreibung dieses Prozesses etabliert haben, sind die dem Prozess zugrundeliegenden Mechanismen derart komplex und nicht-linear, dass es bis heute kaum möglich ist, eine umfassende Beschreibung der möglichen Partikelformationsprozesse in der mehrdimensionalen Aerosolmodellierung zu berücksichtigen. Beispielsweise verhält sich der Prozess der Partikelformation äußerst sensitiv gegenüber sich verändernden

Umgebungsbedingungen (Gasphasenkonzentrationen, Temperatur, Wasserdampfgehalt), die ohne entsprechende *Sub-Grid*-Parametrisierungen von dreidimensionalen Zirkulationsmodellen der Atmosphäre nicht erfasst werden können (u.a. Nilsson et al., 2001). Entsprechend dem heutigen Kenntnisstand werden in diesem Kapitel zunächst die grundlegenden Mechanismen der Partikelformationsprozesse in der Atmosphäre vorgestellt. Anschließend erfolgt die Beschreibung der Berücksichtigung dieses Prozesses im mikrophysikalischen Modell.

Mechanismus

Wenn sich eine kondensierbare Substanz mit geringem Sättigungsdampfdruck in der Gasphase gebildet hat, beispielsweise aufgrund photochemischer Transformationen, befindet sich diese zunächst in einem thermodynamischen Nicht-Gleichgewicht mit der diese Substanz umgebenden Luft. Die Wiederherstellung des thermodynamischen Gleichgewichts führt zu Kondensation der Gasmoleküle auf bereits vorhandenen Partikeln. Sind derartige Kondensationskeime nicht vorhanden, aggregieren einzelne Gasmoleküle, wodurch sogenannte (Hydrat-) Cluster gebildet werden. Mit Erreichen einer kritischen Größe stabilisieren sich diese Cluster, bei weiterer Anlagerung von Gasmolekülen formieren sich schließlich neue Partikel der Gasphase. Dieser Prozess der Gasphasentransformation wird als Nukleation bezeichnet, die typische Größe der Nuclei liegt zwischen 0.3 und 0.7 nm. Durch weitere Kondensation von Gasmolekülen und Kollisionen untereinander wachsen die Partikel auf detektierbare Größen heran (das Detektionslimit liegt derzeit bei Partikeln mit einem Radius von ~ 1 bis 3 nm).

Partikelformation ohne Gegenwart einer vorhandenen Oberfläche wird als homogene Nukleation bezeichnet. Schließen sich Gasmoleküle dagegen unter Einbeziehung einer wie auch immer gearteten Oberfläche, einem sogenannten Keim, zusammen, spricht man von heterogener Nukleation. Weiterhin werden homomolekulare, binäre und ternäre Nukleation unterschieden, wenn sich Partikel aus jeweils ein, zwei oder drei Gasen formieren. Auch höherwertige Mechanismen sind möglich, aber ebenso wie die homomolekulare und heterogene Nukleation nicht Gegenstand dieser Arbeit.

Theoretische Formulierungen

Grundlage der heutigen experimentellen und theoretischen Arbeiten zu Gasphasentransitionsprozessen stellen die von Wilson (1927) durchgeführten Wolkenkammer-Untersuchungen zur Formation von Wassertropfen dar. Die Arbeit von Reiss (1950) gilt als erste theoretische Formulierung des Prozesses der Partikelformation im System Schwefelsäure-Wasser, welche heute als klassische Theorie der binären homogenen Nukleation (BHN) bezeichnet wird. Die BHN ist die derzeit am weitesten entwickelte und in Studien verschiedenster Art angewendete Theorie zur Partikelformation (u.a. Doyle, 1961; Heist und Reiss, 1974; Wilemski, 1984; Jaecker-Voirol et al., 1987; Kulmala et al., 1992, 1998; Noppel et al., 2002). Wie Viisanen et al. (1997) feststellte, liefern Nukleationstheorien auf Basis der Arbeit von Doyle (1961) durch fehlerhafte thermodynamische Zusammenhänge um mehrere Größenordnungen erhöhte Nukleationsraten unter atmosphärischen Bedingungen. Korrekturen durch Viisanen et al. (1997) führten zu der bis dahin striktesten Formulierung der klassischen Theorie der BHN, welche wiederum durch Kulmala et al. (1998) für die atmosphärenchemische Modellierung parametrisiert worden ist.

Während unter bestimmten Bedingungen die klassische Theorie der BHN die in der Atmosphäre beobachteten Partikelformationsprozesse erklären kann (u.a. Clarke et al., 1999; Weber et al., 1999; Pirjola et al., 1998), leiten eine Vielzahl von Feldstudien (u.a. Covert et al., 1992; Clarke et al., 1998a; Birmili et al., 2000) jedoch Nukleationsraten aus gemessenen Konzentrationen von ultra-feinen Partikeln ab, die nicht mit denen der klassischen Theorie der BHN vergleichbar sind und sich darüber hinaus stark von Labormessungen (Wyslouzil et al., 1991; Viisanen et al., 1997) unterscheiden.

Der Nachweis von ionisierten Gasmolekülen, die sich zum Teil unter dem Einfluss von kosmischer Strahlung in der oberen Atmosphäre bilden (Eichkorn et al., 2002), führte zur Entwicklung ioneninduzierter

Nukleationstheorien (u.a. Yu und Turco, 2000; Lovejoy et al., 2004). So zeigen Lee et al. (2003) unter Verwendung von thermodynamischen Randbedingungen einer ausgedehnten UT/LS-Messkampagne in der Nordhemisphäre, dass ein ioneninduziertes Nukleationsmodell von Lovejoy et al. (2004) die beobachteten Konzentrationen ultra-feiner Partikel in 7 bis 21 km Höhe in guter Übereinstimmung wiedergeben kann.

Theoretische Überlegungen (Coffman und Hegg, 1995; Korhonen et al., 1999) und experimentelle Arbeiten (Ball et al., 1999) führten zu der Annahme, dass Ammoniumverbindungen (NH_4^+) eine entscheidende Rolle als dritte Komponente des ternären Systems spielen können. Ammoniumverbindungen sind in hohen Konzentrationen in der Atmosphäre nachgewiesen worden (eine Emissionsabschätzung findet sich beispielsweise in Dentener und Crutzen, 1994). NH_4^+ neutralisiert schwefelsaure Lösungen und verringert gleichzeitig den Gleichgewichtsdampfdruck an den Oberflächen von Sulfatpartikeln (Marti et al., 1997). Die Nukleationsraten im ternären System $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{NH}_3 - \text{H}_2\text{O}$ sind um mehrere Größenordnungen höher als die der binären homogenen Nukleation (Napari et al., 2002). Laboruntersuchungen unter quasi-atmosphärischen Bedingungen von Berndt et al. (2005) geben jedoch Grund zu der Annahme, dass (NH_4^+) im ternären System zugunsten von aromatischen Substanzen eine eher untergeordnete Rolle spielt.

Numerische Studien von Korhonen et al. (2003a) heben die Bedeutung des ternären Nukleationsmechanismus anhand verschiedener Modellansätze mit gekoppelter Aerosoldynamik hervor. Gleichzeitig wird darauf hingewiesen, dass binäre homogene Nukleation bei zu vernachlässigender (NH_4^+)-Konzentration die Entstehung sekundärer Partikel in der Troposphäre sinnvoll beschreiben kann.

Parametrisierungen

Der auf Reiss (1950) basierende Ansatz der klassischen Theorie der BHN prognostiziert die Nukleationsrate J_{nuc} der Bildung von Molekülclustern in Abhängigkeit des Übersättigungsgrades S eines kondensierbaren Gases als Funktion der freien Enthalpie (Gibbs-Energie). Erweiterungen dieses Ansatzes schließen unter anderem einen Hydratationseffekt ein, der dem Prozess der Formation neuer Partikel entgegenwirkt (Kulmala et al., 1998; Noppel et al., 2002). Sowohl Erweiterungen der klassischen Theorie wie auch alternative Nukleationstheorien (u.a. Laaksonen und Oxtoby, 1995) gelten nach wie vor als defizitär in der Beschreibung von Molekülwechselwirkungen nicht-idealer Gase (Vehkamäki et al., 2002). Die Einbeziehung möglichst realitätsnaher Beschreibungen von Molekülinteraktionen geht meist einher mit einem außerordentlich hohen numerischen Lösungsaufwand und macht diese Theorien ineffizient für Anwendungen der globalen Aerosolmodellierung.

Um den numerischen Aufwand in der Modellierung des Partikelformationsprozesses zu minimieren, wurden eine Reihe von Nukleationsparametrisierungen entwickelt (u.a. Zhao und Turco, 1995; Fitzgerald et al., 1998a; Kulmala et al., 1998; Vehkamäki et al., 2002), deren prognostizierte Nukleationsraten sich teilweise deutlich unterscheiden (Zhang et al., 1999). Wie Korhonen et al. (2004) zeigen konnte, hat die Wahl der Nukleationsparametrisierung einen entscheidenden Einfluss auf das von einem Aerosolmodell wiedergegebene Aerosolgrößenspektrum.

Implementierung

Im sektionalen Aerosolmodell SAM2 wird das binäre homogene Parametrisierungsschema nach Vehkamäki et al. (2002) angewendet. Es basiert auf der Parametrisierung von Kulmala et al. (1998), enthält jedoch Korrekturen in der Nukleationskinetik sowie ein erweitertes Hydratmodell nach Noppel et al. (2002). Es ist gültig für Luftfeuchten zwischen 0.01 – 100 % sowie im Temperaturbereich zwischen 190 – 300.15 K. Neben der parametrisierten Nukleationsrate umfasst das Vehkamäki-Schema parametrisierte Formulierungen für Komposition, Größe und Dichte des kritischen Clusters sowie eine Parametrisierung der Oberflächenspannung der Sulfatlösung.

Die Nukleationsparametrisierung nach Vehkamäki et al. (2002) gilt als die derzeit konsistenteste Formulierung der binären homogenen Nukleation unter troposphärischen und stratosphärischen Bedingungen (Yu, 2006). Herzog et al. (2004) und Weisenstein et al. (2007) verwenden die Parametrisierung nach Vehkamäki et al. (2002) in der Validierung des sektionalen Aerosolmodells UMaer unter troposphärischen und stratosphärischen Bedingungen. Stier et al. (2005) führte Langzeitintegrationen troposphärischer Multikomponenten-Aerosols mit dem globalen Aerosol-Klimamodell ECHAM5-HAM unter Anwendung des Vehkamäki-Schemas durch, deren modellierte globale Sulfateaerosolverteilungen gut mit Beobachtungen übereinstimmen.

Repräsentation des Nucleus im Modell

Die binäre homogene Nukleationstheorie, so auch die hier verwendete Parametrisierung, liefert unter Umgebungsbedingungen der freien Troposphäre und Stratosphäre in der Regel Nucleusgrößen von 0.5 bis 0.7 nm (Radius). Liegt die im Modell berücksichtigte Partikelgrößenverteilung oberhalb dieser kritischen Clustergröße, muss die sich aus der Nukleationsrate J_{nucl} berechnende Anzahl sich formierender Partikel dn_{crit} auf die kleinste im Modell definierte Partikelgröße skaliert werden:

$$dn_{1nm} = dn_{crit} \cdot \frac{\bar{c}_{aero}^{crit}}{\bar{c}_{aero}^{1nm}}, \quad (3.4)$$

wobei \bar{c}_{aero}^{crit} die Molekularkonzentration des über Vehkamäki et al. (2002) gefundenen kritischen Clusters bezeichnet und \bar{c}_{aero}^{1nm} die Molekularkonzentration des kleinsten vom Schema berücksichtigten Partikels (derzeit 1 nm im Radius).

Innerhalb der Aerosolmikrophysik von SAM2 wird die Masse chemischer Substanzen durch ihre Molekularkonzentration \bar{c} beschrieben. Dieses Vorgehen ist der Chemie-Modellierung entlehnt und stellt sicher, dass alle im Modell berücksichtigten Substanzen, Aerosole wie Gase, in der gleichen Einheit beschrieben werden. Dies erleichtert nicht zuletzt massenerhaltende Formulierungen in der numerischen Beschreibung von Gas-Partikel-Wechselwirkungen. Die Indizierung mittels *aero* verdeutlicht an dieser Stelle lediglich, dass sich Gl. (3.4) auf Aerosole bezieht.

dn_{crit} in Gl. (3.4) berechnet sich direkt über die Nukleationsrate J_{nucl} des Vehkamäki-Schemas und dem Inkrement der Zeitintegration dt des Modells:

$$dn_{crit} = J_{nucl} \cdot dt. \quad (3.5)$$

Substituiert man dn_{crit} in Gl. (3.5) durch Gl. (3.4) und löst anschließend nach J_{nucl} auf, erhält man eine Formulierung, die dem Quellterm der aerosol-dynamischen Zustandsgleichung Gl. (3.2) zugerechnet werden kann.

3.3 Partikelwachstum

Eine durch äußere Einflüsse (Nukleation, turbulente Mischungsvorgänge) ungestörte Partikelverteilung der Atmosphäre unterliegt zwei prinzipiell unterschiedlichen Wachstumsprozessen. Kondensation einer flüchtigen Substanz auf vorhandene Partikel transferiert Masse von der Gas- in die Partikelphase und stellt einen Quellterm für Aerosolmasse dar. Kollidieren sich bewegende Partikel untereinander und vereinigen sich dadurch zu einem neuen größeren Partikel, reduziert sich die Gesamtpartikelanzahl einer Aerosolpopulation unter Erhaltung der Partikelgesamtmasse. Dieser Prozess wird Koagulation genannt und stellt einen Senkenterm atmosphärischer Aerosolpartikel dar.

Sulfataerosolpartikel sind stark hygroskopisch, d.h. sie nehmen ein Vielfaches ihrer Sulfatmasse an Wasser auf (u.a. Pruppacher und Klett, 1979). Dieser auch als Feuchtwachstum bezeichnete Prozess bestimmt maßgeblich die Größe von Aerosoltropfen, deren Kenntniss für viele physikalische und mikrophysikalische Vorgänge und ihre Parametrisierungen von Bedeutung ist. Die Zusammensetzung eines flüssigen Aerosolpartikel-Tropfens und somit dessen Größe ist abhängig von den thermodynamischen Umgebungsparametern sowie den Konzentrationen der einzelnen Komponenten des Partikels sowohl in der Gas- als auch in der Aerosolphase.

Sulfataerosolpartikel befinden sich in einem thermodynamischen Gleichgewicht mit dem Wasserdampfgehalt der Umgebung, da der Partialdruck von Schwefelsäure $p_P^{H_2SO_4}$ um einige Größenordnungen kleiner ist als der Partialdruck des Wasserdampfes $p_P^{H_2O}$ (Meng und Seinfeld, 1996). Vernachlässigt man Oberflächen- und Lösungseffekte, ist die Komposition und somit der Sulfatmassenanteil eines Partikels w_p eine Funktion der Temperatur sowie der Partialdrücke p_P und Dampfdrücke p_D von H_2O und H_2SO_4 (Hamill et al., 1977b). Die Dampfdrücke von H_2O und H_2SO_4 sind proportional zur Temperatur aber auch abhängig von der Komposition des Partikels selbst (Gmitro und Vermeulen, 1964). Eine Änderung der Umgebungsparameter Temperatur oder spezifische Feuchte, z.B. durch Advektion des Partikels, ist ebenso wie die Änderung des Partialdrucks einer Aerosolkomponente aufgrund photochemischer Prozesse mit einer Änderung des Dampfdrucks der jeweiligen Komponente verbunden, da die in den Partikeln enthaltene Masse der jeweiligen Komponenten erhalten bleiben muss.

Ist der Sättigungsgrad einer Komponente des Partikels, also das Verhältnis von Partial- und Dampfdruck dieser Komponente, kleiner 1, verdunstet die jeweilige Komponente aus dem Partikel (Untersättigung). Dementsprechend werden Gasmoleküle vom Partikel absorbiert, wenn der Sättigungsgrad dieser Komponente 1 übersteigt (Übersättigung).

Absorption von Gasmolekülen eines Mehrkomponenten-Partikels wird als heteromolekulare Kondensation bezeichnet (eine Freisetzung von Gasmolekülen aus dem Partikel entsprechend als heteromolekulare Verdunstung). Der Prozess ist gekennzeichnet von einer alternierenden Änderung der das Partikelgleichgewicht bestimmenden physikalisch-chemischen Parameter (Hamill et al., 1977b): Werden H_2SO_4 -Gasmoleküle von Partikeln absorbiert, steigt deren Sulfatanteil. Folglich verringert sich der H_2O -Dampfdruck entsprechend und die flüssigen Aerosolpartikel sind gegenüber dem Wasserdampfgehalt ihrer Umgebung übersättigt. Die Partikel absorbieren daraufhin Wassermoleküle bis das thermodynamische Gleichgewicht wiederhergestellt ist. Da die Anzahl der Wassermoleküle in der Umgebung des Partikels wegen $p_P^{H_2O} \gg p_P^{H_2SO_4}$ weit größer ist als die Anzahl der H_2SO_4 -Moleküle, kann man die Wiederherstellung des thermodynamischen Gleichgewichts durch Kondensation bzw. Verdunstung von Wassermolekülen als quasi-instantanen Vorgang betrachten.

Erfolgt die Modellierung der Dynamik stratosphärischer Sulfataerosole auf einer Zeitskala, welche die Zeitskala der Wiederherstellung des Partikelgleichgewichts gegenüber dem Wasserdampfgehalt ihrer Umgebung um mindestens den Faktor 100 überschreitet, befinden sich zudem alle Partikel eines Aerosolspektrums untereinander im Gleichgewicht (Gelbard, 1990). Die Wiederherstellung dieses Partikel-Gleichgewichts erfolgt unter simultaner Verdunstung kleiner Partikel, während größere Partikel durch Absorption von Gasmolekülen wachsen. Das Gleichgewicht gegenüber dem Wasserdampfgehalt der Umgebung stellt sich unter typischen atmosphärischen Bedingungen in weniger als einer Sekunde ein (Steele und Hamill, 1981). Die Wiederherstellung des Partikelgleichgewichts innerhalb einer Aerosolpopulation beansprucht einen Zeitraum von etwa 100 Sekunden (Gelbard, 1990). Die üblicherweise um ein Vielfaches höheren Zeitschrittweiten globaler Modelle erlauben es somit, auf die Abbildung des simultan stattfindenden reversiblen Massentransfers beim Wachstum der Aerosolpartikel eines Spektrums zu verzichten.

Das Feuchtwachstum eines Aerosolpartikels kann somit als instantaner, im Gleichgewicht stehender Prozess mittels einer einfachen Massenbilanzierung modelliert werden, wie im folgendem Abschnitt erläutert wird. Die Modellierung der Kondensations- und Verdunstungsraten von Aerosolkomponenten mit geringem Partialdruck (z.B. Schwefelsäure) muss dagegen über eine Lösung der Erhaltungsgleichungen Gl. (3.1) und (3.2) erfolgen, da sich ein Gleichgewicht dieser Komponenten nach Steele und Hamill (1981) mindestens sieben Größenordnungen langsamer einstellt als das Gleichgewicht gegenüber dem Wasserdampf.

Dieses Kapitel gliedert sich wie folgt: Zunächst wird die Modellierung des Feuchtwachstums der Partikel behandelt, im Anschluss wird auf die explizite Modellierung des Massentransfers zwischen Gas- und Partikelphase der flüchtigen Komponente Schwefelsäure eingegangen. Verdunstung von H_2SO_4 wird als separater Prozess beschrieben, obwohl die physikalischen Grundlagen die gleichen sind wie die der Kondensation. Die Modellierung des Verdunstungsflusses von H_2SO_4 weist jedoch einige Besonderheiten auf, welche unabhängig von der Sulfatkondensation beschrieben werden sollen. Abschließend erfolgt eine Übersicht der Modellierung des nur in der Troposphäre relevanten Partikelwachstums durch Sulfatbildung in den Wolken.

3.3.1 Feuchtwachstum

Das Feuchtwachstum von Sulfataerosolpartikeln kann über Kenntnisse der Temperatur und des Wassergehalts in der Atmosphäre berechnet werden. Die Absorption und Verdunstung von Wassermolekülen ändert die Konzentration des im Partikel gelösten Sulfats und somit auch die Dichte der Lösung. Beide Parameter sind eine Funktion der Temperatur, der Partialdrücke von Wasser $p_P^{\text{H}_2\text{O}}$ und Schwefelsäure $p_P^{\text{H}_2\text{SO}_4}$ sowie der Dampfdrücke beider Substanzen an der Partikeloberfläche $p_D^{\text{H}_2\text{O}}$ bzw. $p_D^{\text{H}_2\text{SO}_4}$ (Hamill et al., 1977b). Wählt man die Zeitskala der Modellierung des Feuchtwachstums hinreichend lang, kann man diesen Prozess als quasi-instantanen Vorgang beschreiben, wobei ein Sulfataerosolpartikel mit dem Wasserdampfgehalt der Umgebung im thermodynamischen Gleichgewicht steht und der Partialdruck des Wasserdampfes der Atmosphäre gleich dem Dampfdruck des Wassers an der Partikeloberfläche ist: $p_P^{\text{H}_2\text{O}} = p_D^{\text{H}_2\text{O}}$ (Meng und Seinfeld, 1996).

Der Dampfdruck von Wasser $\bar{p}_D^{\text{H}_2\text{O}}$ wird im Modell als Funktion der Temperatur nach einer auf Goff (1957) basierenden Formulierung von McDonald (1965) parametrisiert. Der Dampfdruck von Schwefelsäure $\bar{p}_D^{\text{H}_2\text{SO}_4}$ berechnet sich nach Ayers et al. (1980) und Kulmala und Laaksonen (1990).

Der Sulfatmassenanteil verringert die Dampfdrücke der einzelnen Aerosolkomponenten, womit sich die Notwendigkeit ergibt, diese in Abhängigkeit der Sulfatmassenkonzentration zu korrigieren (Steele und Hamill, 1981). Die entsprechenden Korrekturfaktoren für H_2O und H_2SO_4 basieren auf Giauque et al. (1960) und werden wie der prozentuale Sulfatmassenanteil w_p der Partikel aus einer von Timmreck (1997) kompilierten Aerosolparameter-Tabelle eingelesen, wobei das Minimum der Partial-Dampfdruck-Kombination von Wasser $(p_P^{\text{H}_2\text{O}} - p_D^{\text{H}_2\text{O}})^2$ der jeweiligen Umgebungsbedingungen als Kriterium für den *table look-up* herangezogen wird.

Die zum Sulfatanteil w_p korrespondierende Dichte der Schwefelsäurelösung in Partikel ρ_p wird nach Vehkamäki et al. (2002) parametrisiert.

Die Größe eines Sulfataerosolpartikels durch reversible Aufnahme von Wasser wird in SAM2 anhand der Massenbilanzierung des Partikels modelliert. Eine Änderung der Umgebungsbedingungen beeinflusst sowohl die Dichte ρ_p der Schwefelsäure als auch die Schwefelsäure-Konzentration w_p des Partikels, hält jedoch den Sulfatanteil des Partikels, also dessen Netto-Sulfatmasse $m^{n_{\text{sulf}}}$ konstant:

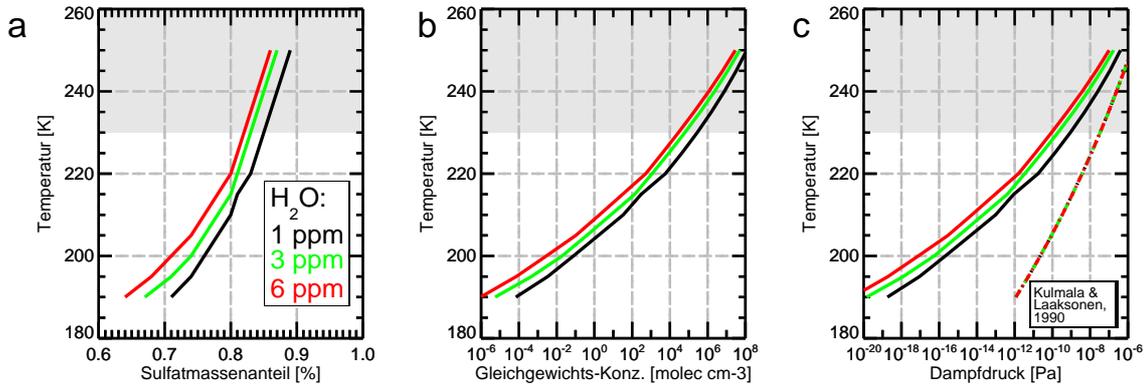


Abbildung 3.1: SAM2-Gleichgewichtsparameter stratosphärischen Sulfataerosols in Abhängigkeit der Temperatur und des Wasserdampfgehalts nach Timmreck (1997). Grau unterlegt ist der Temperaturbereich, in dem Sulfataerosole oberhalb von 10 hPa vollständig verdunsten. (a) Prozentualer Sulfatmassenanteil der Partikel, (b) H₂SO₄-Gleichgewichtskonzentration und (c) H₂SO₄-Dampfdruck an den Partikeloberflächen korrespondierend zum Sulfatmassenanteil in (a). Stich-punktierte Linien in (c) kennzeichnen die Parametrisierung nach Kulmala und Laaksonen (1990).

$$m_k^{1,n_{sulf}} = m_k^{0,n_{sulf}} \quad \text{mit} \quad m_k^{n_{sulf}} = \frac{4}{3} \pi \rho_p w r_k^3, \quad (3.6)$$

wobei k den Index des jeweiligen Bins der diskreten Partikelgrößenverteilung bezeichnet, die Indizes 0 und 1 markieren die Zeitintegration des Modells. Solange der Kelvin-Effekt nicht im Modell berücksichtigt wird, sind ρ_p und w_p keine Funktion des Partikelradius r_k . Der Skalierungsfaktor f der Partikelgröße muss für jeden Zeitschritt und an allen Gitterpunkten berechnet werden und ergibt sich aus Gl. (3.6) unter der Voraussetzung einer Massenerhaltung des Sulfatanteils im Partikel zu:

$$f = \sqrt[3]{\frac{\rho_p^0 w_p^0}{\rho_p^1 w_p^1}}. \quad (3.7)$$

Aufgrund des Kelvin-Effekts steigen die Dampfdrücke beider Aerosolkomponenten mit wachsender Krümmung der Partikeloberfläche an. Der Sulfatanteil eines Partikels im *Nucleation Mode* ist daher um einige Prozent größer als der eines Partikels im *Accumulation Mode* oder *Coarse Mode*. Der Effekt kann für Partikel mit $R < 10$ nm von Bedeutung sein (u.a Seinfeld und Pandis, 1998), wird jedoch im Rahmen der Evaluierung des neu-implimentierten sektionalen Aerosolmodells SAM2 zunächst vernachlässigt.

Im Rahmen dieser Arbeit wird weiterhin angenommen, dass Schwefelsäure in den Partikeln in nicht dissoziierter Form vorliegt, so dass Lösungseffekte die Dampfdrücke von H₂O und H₂SO₄ nicht beeinflussen (Köhler, 1936; Jacobson, 2005). Ist der Sulfatanteil der Partikel kleiner 60 %, dissoziiert H₂SO₄ in den Sulfataerosolen jedoch nahezu vollständig (Tabazadeh et al., 1994b). Da der Sulfatanteil eines Partikels im Bereich der Tropopause gegen 50 % tendiert und mit sinkender Höhe weiter abnimmt (Hamill et al., 1977b), werden unter troposphärischen Bedingungen Sulfatanteil und Sulfatdichte auf 0.75 % bzw. 1700 kg m⁻³ fixiert, so dass Lösungseffekte im mikrophysikalischen Modell mit guter Näherung zunächst vernachlässigt werden können. Letztendlich bedeutet dies aber auch eine Fixierung der hygroskopischen Eigenschaften von Sulfataerosolen in der Troposphäre.

Experimentelle Arbeiten zur Bestimmung des Dampfdrucks stratosphärischer Sulfataerosole von Zhang et al. (1993 a,b) weisen außerdem darauf hin, dass bei Temperaturen < 200 K der HNO_3 -Anteil der Partikel signifikant zunimmt (1 bis 10 % bezogen auf das Partikelgewicht), wodurch die Dampfdrücke aller Aerosolkomponenten, deren Kondensations- und Verdunstungseigenschaften und letztlich auch die Partikelgröße beeinflusst werden. Nach Zhang et al. (1993b) sind lösliche Komponenten wie HNO_3 oder HCl oberhalb von 215 K lediglich Spurenstoffe stratosphärischen Sulfataerosols, die zwar keine direkte Bedeutung für die Gas-Partikel-Partitionierung haben, jedoch bereits heterogene Reaktionen an den Partikeloberflächen aktivieren können.

Die Laboruntersuchungen von (Zhang et al., 1993a,b) bestätigen, dass stratosphärische Sulfataerosolpartikel bis mindestens ~ 200 K als unterkühlte, nicht gefrorene, flüssige Aerosoltröpfchen Bestand haben. Eine Temperatur von 200 K wird daher als untere Grenze des Gültigkeitsbereichs der thermodynamischen Parametrisierungen in SAM2 festgelegt.

3.3.2 Kondensation von H_2SO_4

Der Massentransfer zwischen Gas- und Partikelphase in der Atmosphäre ist gekennzeichnet von einer Reihe physikalischer Prozesse und chemischer Reaktionen. Molekulare Wechselwirkungen unter Gasmolekülen können unter Energieaufnahme zur direkten Neubildung von Partikeln führen und transferieren so Masse von der Gas- in die Partikelphase (homogene Nukleation, siehe Kapitel 3.2). In Abhängigkeit des Sättigungsgrades sowie der Löslichkeit eines atmosphärischen Spurenstoffes werden Gasmoleküle an Partikeloberflächen absorbiert oder freigesetzt. Der damit einhergehende Fluss von Gasmolekülen transferiert Masse in die Partikelphase (heteromolekulare Kondensation) oder aus dieser heraus (Evaporation). Weiterhin können Oberflächenreaktionen der Spurenstoffe von Bedeutung für die Beschreibung des Massentransfers sein, ebenso wie chemische Transformationen im Lösungstropfen selbst (Hanson et al., 1994). Im Aerosolmodell SAM2 werden chemische Transformationen in oder an der Aerosolphase nicht berücksichtigt. Stattdessen konzentriert sich diese Arbeit auf die Modellierung der Dynamik des Massentransfers zwischen Aerosolen und Gasphase.

Im Folgenden soll näher auf die numerische Behandlung des reversiblen Massentransfers eingegangen werden. Der Kondensationsfluss wird ausschließlich für das im Modell berücksichtigte binäre System Schwefelsäure-Wasser angegeben. Das Hintergrundmedium Luft wird mit a indiziert, das Spurengas H_2SO_4 mit b .

Die dem Kondensationsfluss zugrunde liegenden Mechanismen folgen sowohl den Gesetzmäßigkeiten des Kontinuums als auch denen der Gaskinetik.

Es ist üblich, die Kondensations-Regime in Abhängigkeit der Knudsen-Zahl Kn eines Gases zu definieren (u.a. Friedlander, 1977):

$$Kn = \frac{\lambda_b}{r_p}, \quad (3.8)$$

wobei λ_b die mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle des Spurenstoffes b (u.a. Seinfeld und Pandis, 1998) und r_p den Partikelradius bezeichnet. In den Abbildungen 3.2 (a) und (b) werden mögliche Verteilungen der Knudsen-Zahlen in dem vom Modell aufgelösten Größenbereich der Aerosolpartikel für zwei Höhenbereiche der Atmosphäre dargestellt. Für $r_p \gg \lambda_b$ tendiert $Kn \rightarrow 0$, und es gelten die Gesetze des Kontinuums. Der Fluss von Gasmolekülen auf die Partikeloberfläche F_{cond} hat dann rein diffusiven Charakter. Es gilt nach Erreichen eines quasi-stationären Zustands (Maxwell, 1877):

$$F_{cond} = 4\pi r_p D_b (c_{b\infty} - c_{bGGW}) , \quad (3.9)$$

wobei F_{cond} die Zahl der vom Partikel aufgenommenen Moleküle ist. $c_{b\infty}$ bezeichnet die Gasphasenkonzentration von Schwefelsäure in unendlicher Entfernung vom Partikel und c_{bGGW} die H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration der Lösungsoberfläche (Seinfeld und Pandis, 1998). Für den Diffusionskoeffizienten D_b wird in SAM2 eine für ideale Gase gültige Formulierung verwendet (Timmreck, 1997).

Ist ein Partikel weit kleiner als die mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle $r_p \ll \lambda_b$, tendiert $Kn \rightarrow \infty$ und der Massentransfer muss nach den Gesetzmäßigkeiten der Gaskinetik berechnet werden. Aus den Abbildungen 3.2 (a) und (b) wird ersichtlich, dass *Nucleation*- und *Aitken-Mode*-Partikel generell den Gesetzmäßigkeiten der Gaskinetik unterliegen. Aus Abbildung 3.2 (a) wird darüber hinaus ersichtlich, dass sich in der Stratosphäre der Gültigkeitsbereich der Gaskinetik auch auf Partikel im *Accumulation Mode* ausdehnt. Die Größe von Partikeln von in der Atmosphäre üblichen Aerosolpopulationen umfasst vier bis fünf Größenordnungen, sie reicht vom Sub-Nanometerbereich bis hin zu Partikeln von einigen Mikrometern im Durchmesser. Die Schwierigkeit in der theoretischen Formulierung des Massentransfers besteht darin, die Gesetzmäßigkeiten des Kontinuums mit denen der Gaskinetik zu koppeln. Ein entsprechender Algorithmus sollte für alle in der Aerosoldynamik in Betracht kommenden Knudsen-Zahlen anwendbar sein. In der Literatur finden sich verschiedene Ansätze. In der Aerosolmodellierung weithin angewendet (u.a. Hamill et al., 1977b) wird der Ansatz von Fuchs und Sutugin (1971) der den Maxwell'schen Fluss nach Gl. (3.9) um einen gaskinetischen Korrekturterm erweitert. Die Zahl der pro Zeiteinheit vom Aerosolpartikel absorbierten Gasmoleküle berechnet sich im Modell für beide Regime unter Einbeziehung des Transitionsbereiches wie folgt (Hamill et al., 1977b):

$$F_{cond} = \frac{4\pi r_p D_b (c_{bM} - c_{bGGW})}{(1 + C Kn)} , \quad C = \frac{1.333 + 0.71 Kn^{-1}}{1 + Kn^{-1}} + \frac{4}{3} \frac{1 - \alpha}{\alpha} . \quad (3.10)$$

$c_{b\infty}$ aus Gl. (3.9) ist hier durch die vom Modell berechnete makroskopische H_2SO_4 -Gasphasenkonzentration c_{bM} ersetzt worden. α bezeichnet den Aufnahmekoeffizienten der Aerosoloberfläche (in der Literatur als *Mass Accommodation Coefficient* bezeichnet), wobei $\alpha = 1$ für die vollständige Absorption der Gasmoleküle an den Partikeln steht. Abbildung 3.2 (c) zeigt die Abhängigkeit des gaskinetischen Korrekturterms $1/(1 + C \cdot Kn)$ aus Gl. (3.10) von der Größe dieses Koeffizienten.

Zieht man in Betracht, dass in der ungestörten freien Troposphäre sowie in der Stratosphäre die Konzentration von Partikeln im Mikrometerbereich (*Coarse Mode*) gegen Null tendiert (sogenannte Aerosol-Hintergrundbedingungen), wird aus Abbildung 3.2 ersichtlich, dass die gaskinetische Korrektur des Kondensationsflusses nach Gl. (3.10) unter troposphärischen Bedingungen von geringerer Bedeutung ist als unter stratosphärischen Bedingungen. Dies ist in Übereinstimmung mit experimentellen Untersuchungen (Van Dingen und Raes, 1991) gleichbedeutend mit einer reduzierten Absorption ($\alpha < 1$) unter troposphärischen Bedingungen.

Timmreck (1997) führte Sensitivitätsstudien zum Einfluss des Akkommodationskoeffizienten α auf das Partikelwachstum durch Kondensation bei gleichzeitiger Beeinflussung der Partikelformation anhand einer Boxmodelversion von SAM durch. Dazu wurden auf Van Dingen und Raes (1991) basierende Akkommodationskoeffizienten unter Anwendung verschiedener Nukleationstheorien untersucht. Aus den in Timmreck (1997) gezogenen Schlussfolgerungen lässt sich ableiten, dass die Wahl von $\alpha = 1$ (100% Absorption der Gasmoleküle an den Partikeln) unter stratosphärischen Bedingungen für das binäre System $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ zur Ausbildung einer Partikelverteilung führt, deren effektiver Radius in einem mit Beobachtungen übereinstimmenden Bereich liegt ($\sim 0.1 - 0.2 \mu\text{m}$, vulkanisch ungestörte Atmosphäre) und somit eine sinnvolle Wahl auch für das Nachfolgemodell SAM2 darstellt.

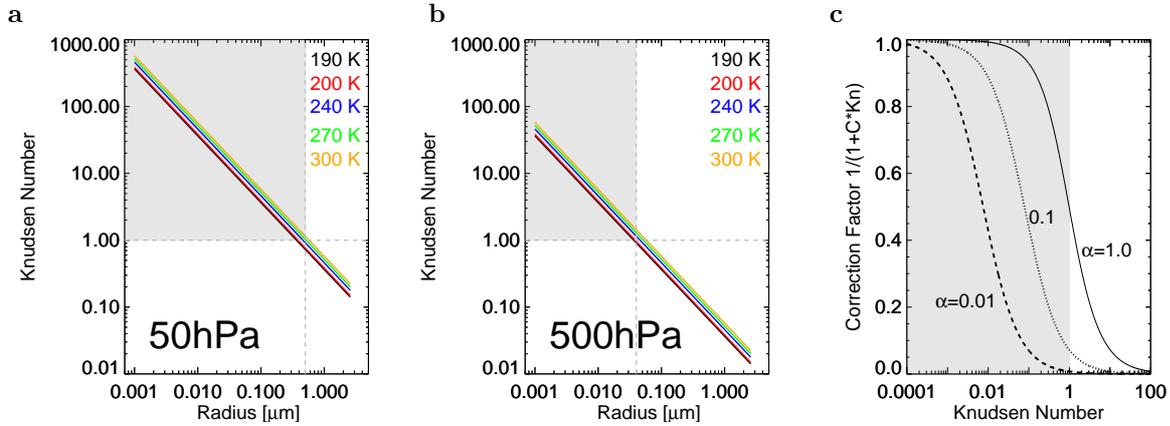


Abbildung 3.2: Temperaturabhängigkeit der Knudsen-Zahl als Funktion der Partikelgröße für (a) 50 hPa und (b) 500 hPa sowie (c) die Abhängigkeit des gaskinetischen Korrekturterms vom Massenakkommodationskoeffizienten α als Funktion der Knudsen-Zahl. Die grau markierten Flächen markieren den Einflussbereich der Gaskinetik.

Das Wachstum von Partikeln durch heterogene Kondensation eines atmosphärischen Spurengases wird im Modell als Partikelfluss im Größenbereich seiner Partikelverteilung $\partial n/\partial r$ abstrahiert (Timmreck, 1997). Für eine diskrete Partikelverteilung bedeutet dies, dass man die Änderung der Partikelanzahl eines Bins dn_k pro Zeiteinheit dt durch Integration der Partikel-Wachstumsgeschwindigkeit in einem virtuellem Radien-Raum $x = \ln r$ berechnet.

Die Entwicklung des numerischen Verfahrens erfolgt analog zu Timmreck (1997), dessen wesentlichen Formulierungen im Folgenden zusammengefasst wiedergegeben werden. Grundidee des Ansatzes ist es, den Wachstumsterm aus Gl. (3.2) $\left. \frac{\partial n}{\partial t} \right|_{kond}$ in eine Form zu überführen, die den virtuellen Fluss von wachsenden Partikeln in Abhängigkeit ihres Radius dn/dr beschreibt:

$$\left. \frac{\partial n}{\partial t} \right|_{kond} = \frac{\partial n}{\partial r} \frac{\partial r}{\partial t}. \quad (3.11)$$

Der Term dr/dt ist die Wachstumsgeschwindigkeit der Partikel v_r , die in Analogie zur Beschreibung aus der Atmosphäre ausfallender Partikel (Sedimentation, Gl. (3.2)) wie folgt formuliert werden kann:

$$\frac{\partial n}{\partial r} \frac{\partial r}{\partial t} = \frac{\partial n}{\partial r} v_r = \frac{\partial}{\partial r} v_r n = \frac{\partial \int_0^\infty v_r n}{\partial r}. \quad (3.12)$$

Ziel ist es, das Wachstum von Partikeln über die Absorption von Gasmolekülen zu beschreiben. Dieser Fluss F von Molekülen in Gl. (3.10) kann als $\partial c_b/\partial t$ formuliert werden, und es gilt (Turco et al., 1979a):

$$v_r = \frac{\partial r}{\partial t} = \frac{\partial r}{\partial c_b} \frac{\partial c_b}{\partial t}. \quad (3.13)$$

Bezieht man Gl. (3.10) und die in Timmreck (1997) gegebene Formulierung für $\partial r/\partial c_b$ in Gl. (3.13) ein, erhält man den zu integrierenden Ausdruck für die Wachstumsgeschwindigkeit:

$$\frac{\partial r}{\partial t} = \frac{m_b D_b (c_{bM} - c_{bGGW})}{r_p \rho_p w_p (1 + C Kn)}, \quad (3.14)$$

mit m_b als Masse eines Moleküls H_2SO_4 . Der Index p kennzeichnet hier die Partikelphase, w_p bezeichnet die an die jeweiligen Umgebungsbedingungen angepasste prozentuale Konzentration von H_2SO_4 -Molekülen im Partikel, auf welche in Kapitel 3.3.1 näher eingegangen wird.

Die Koordinatentransformation in den virtuellen Radien-Raum $r \rightarrow x$ überführt die Wachstumsgeschwindigkeit $v_r \rightarrow v_r^*$ in die Form einer Radialgeschwindigkeit. Es wird nicht Gl. (3.14) integriert, sondern:

$$v_r^* = \frac{1}{r} v_r. \quad (3.15)$$

Integration im Radien-Raum Wie auch in SAM wird die Wachstumsgeschwindigkeit v_r^* nach Gl.(3.15) unter Anwendung eines hybriden Advektionsschemas (Timmreck, 1997) integriert. Das Schema verwendet an monotonen Sektionen der zu integrierenden Funktion ein Exponential-Advektionsschema basierend auf Spalding (1972) und Chlond (1994). An Gitterpunkten lokaler Extrema kommt ein erster Ordnung genaues Upwind-Schema zur Anwendung. Das Exponentialschema repräsentiert steile Gradienten in hoher Genauigkeit und ist zudem wenig numerisch diffusiv und partikelzahlerhaltend (Chlond, 1994). Aufgrund letzterer Eigenschaft erfüllt es per Definition die Bilanzgleichung der Kondensation, wonach diese ein partikelzahlerhaltender Prozess ist.

Zeitintegration Die Zeitintegration erfolgt explizit. Das CFL-Kriterium limitiert dabei das Wachstum der Partikel eines Bins dn_k pro Zeitschritt Δt auf das jeweilige benachbarte Bin:

$$1 > \frac{v_r^* \Delta t}{\Delta x}, \quad (3.16)$$

wobei Δx den Gitterabstand im virtuellen Radienraum x (siehe oben) bezeichnet.

Da die Massentransferrate bei ultra-feinen Partikeln sehr hoch sein kann, unterliegen vor allem diese Partikel dem Einfluss des CFL-Kriteriums. In Folge dessen wird der Massentransfer auf die Partikel in entsprechenden Teilbereichen des Aerosolspektrums u.U. stark limitiert. Die Partikel wachsen demnach langsamer, als entsprechende Parametrisierungen es ermöglichen würden (Toon et al., 1988). Dieser Effekt kann unter sehr hohen Wachstumsraten, wie sie z.B. in der planetaren Grenzschicht auftreten, eine extrem unphysikalische Modellcharakteristik induzieren und ist möglicherweise einer der limitierenden Faktoren in der troposphärischen Leistungsfähigkeit des Modells.

Partitionierung Die numerische Behandlung simultan stattfindender Prozesse des teilreversiblen Massentransfers durch *Operator Splitting* erfordern eine Partitionierung beteiligter Prozesse, wenn jeder dieser Prozesse einen Teil bzw. das gesamte Reservoir der modellierten Gasphasenkonzentration beansprucht. Im Modell wird diesem Umstand Rechnung getragen, indem ein Partitionierungsfaktor einen festzulegenden prozentualen Anteil der H_2SO_4 -Gasphasenkonzentration für die homogene Nukleation reserviert (z.Z. werden für HAM/M7 5 % vorgeschlagen). In der hier vorliegenden Arbeit erfolgt jedoch keine Partitionierung, d.h. Kondensation von H_2SO_4 wird als dominierender mikrophysikalischer Prozess betrachtet. Nukleation erfolgt auf Basis der nicht durch Kondensation auf die Partikel transferierten H_2SO_4 -Gasphasenkonzentration.

3.3.3 Verdunstung von Sulfataerosol

Die thermodynamischen Zusammenhänge, welche die Neubildung und das Wachstum von Aerosolpartikeln durch Kondensation bestimmen, limitieren gleichzeitig die vertikale Ausdehnung der stratosphärischen Aerosolschicht. Der mit zunehmender Höhe um mehrere Größenordnungen ansteigende H_2SO_4 -Dampfdruck an der Oberfläche der Aerosoltropfen limitiert den Sättigungsgrad von H_2SO_4 -Gasphasenmolekülen soweit, dass weder Partikelwachstum durch Kondensation stattfinden kann, noch Partikelneubildung durch Nukleationsprozesse möglich ist (Hamill et al., 1977b). Können Gasphasentransformationsprozesse, beispielsweise sulfatbildende photochemische Reaktionen, ein Gleichgewicht zwischen Partikel- und Gasphase nicht aufrecht erhalten, verdunsten H_2SO_4 -Moleküle aus den Aerosoltropfen in Abhängigkeit des Untersättigungs-Grades von Schwefelsäure $p_P^{\text{H}_2\text{SO}_4}/p_D^{\text{H}_2\text{SO}_4} < 1$. Werden Aerosole von vertikalen Mischungsprozessen über diese thermodynamische Grenzschicht hinaus transportiert, verdunsten sie nahezu augenblicklich. Partikel, die oberhalb der stratosphärischen Aerosolschicht nachgewiesen worden sind, können allein aus thermodynamischen Gründen nicht zum überwiegenden Teil aus Schwefelsäure bestehen (u.a. Gerding et al., 2003; Deshler et al., 2003b).

Obwohl eine direkte messtechnische Erfassung der Verdunstungsraten von Partikeln der stratosphärischen Aerosolschicht bislang nicht möglich war, können über Kenntnisse der Entwicklung der vergleichsweise gut bekannten vertikalen Verteilung des stratosphärischen Wasserdampfgehalts, der damit einhergehenden höhenabhängigen Entwicklung der Dampfdrücke aller Aerosolkomponenten sowie der Sulfatkonzentration der Partikel diejenigen Höhenbereiche examiniert werden, in denen Verdunstung sich zum dominierenden Prozess der Aerosolmikrophysik entwickelt. Eine solche thermodynamische Zustandsanalyse bietet darüber hinaus die Möglichkeit die Verdunstungsraten stratosphärischer Aerosole anhand von Grenzwertanalysen abzuschätzen. In einer der ersten theoretischen Arbeiten, die die Verdunstung stratosphärischer Aerosole einbezog, zeigen Hamill et al. (1977b) über eine solche Grenzwertanalyse, dass Partikel mit einem Durchmesser von $1 \mu\text{m}$ in 30 km Höhe innerhalb eines Tages verdunsten und die Verdunstungsrate umgekehrt proportional an den Wasserdampfgehalt der Stratosphäre gekoppelt ist.

Effekt in der Modellierung

Erlauben die Sättigungsbedingungen an den Partikeloberflächen die vollständige Verdunstung aller Aerosolpartikel eines endlichen Luftvolumenelements in einem bestimmten Höhenbereich, ist in der Modellierung der Verdunstung vollständig gelöster flüssiger Aerosole zu beachten, dass vollständige Verdunstung sowohl ein Senkterm der Aerosolmasse ist (ein Prozess invers zur Kondensation) aber auch gleichzeitig ein Senkterm der Partikelanzahl. Verdunsten die Aerosolpartikel nicht spontan innerhalb eines diskreten Zeitintervalls sondern kontinuierlich, ist nur der Senkterm der Aerosolmasse zu modellieren.

Der Senkterm der Aerosolmasse bei Verdunstung von H_2SO_4 -Molekülen wird modelliert wie der in Kapitel 3.3.2 beschriebene Quellterm der Aerosolmasse bei Partikelwachstum durch Kondensation von $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$. Aufgrund der Untersättigung der H_2SO_4 -Gasphasenkonzentration gegenüber dem H_2SO_4 -Dampfdruck an der Partikeloberfläche entwickelt sich die Wachstumsgeschwindigkeit der Partikel $\partial r/\partial t$ in Gl. (3.11) jedoch mit negativem Vorzeichen, wodurch der virtuelle Fluss von Partikeln im Radial-Raum $\partial n/\partial r$ immer in Richtung *Nucleation Mode* gerichtet ist.

Ist die Summe aus Gasphasen- und Aerosolkonzentration von H_2SO_4 kleiner als die H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration kann eine vollständige Verdunstung aller Partikel innerhalb eines Zeitschritts angenommen werden:

$$c_{bM} + \sum_{k=1}^{N_k} c_k \leq c_{bGGW} , \quad (3.17)$$

wobei der Summenterm in Gl. (3.17) die Gesamt- H_2SO_4 -Aerosolkonzentration von Partikeln aller Größeklassen von 1 bis N_k bezeichnet. In Abbildung 3.1 ist der Temperaturbereich der vollständigen Verdunstung von Sulfataerosolen in 2 hPa gekennzeichnet. Gl. (3.17) stellt den Senkenterm der Partikelanzahl verdunstender Aerosole dar, welcher keine explizite Lösung des Verdunstungsflusses erfordert. Die Aerosolmasse wird stattdessen vollständig der Gasphase zugerechnet und die Anzahl verdunstender Partikel auf Null gesetzt (Massenerhaltung).

Wird das Kriterium in Gl. (3.17) nicht erfüllt, muss der Verdunstungsfluss der Partikel explizit berechnet werden. Das partikelzahlerhaltende Advektionsschema, welches zur Modellierung des Partikelflusses angewendet wird, erlaubt jedoch keine vollständige Verdunstung aller Partikel innerhalb eines Zeitschrittes, wodurch u.a. numerische Artefakte in die Lösung des Prozesses der Gas-Partikel-Partitionierung eingeführt werden können: Die in Gelbard (1990) ausführlich beschriebene nominelle numerische Diffusion sektionaler Aerosolmodelle kann unter hinreichend hohen Verdunstungsflüssen in Abhängigkeit der Form des Aerosolanzahlspektrums unrealistisch geweitete Aerosolspektren verursachen. Im Modell bleibt dann in vollständig verdunsteten Bereichen des Partikelspektrums eine gewisse Partikelanzahlkonzentration erhalten (numerisches Rauschen). Obwohl die Konzentrationen in diesen Bereichen gegen Null tendieren, ziehen sie unrealistische, artefaktbehaftete Partikelverteilungen nach sich, wenn die betreffende Partikelpopulation nachfolgend in Regionen transportiert wird, die von kondensationsbedingtem Wachstum geprägt sind. Diese Artefakte führen bei weiterer Integration des Modells zu oszillierenden, in Teilbereichen des Spektrums nicht länger kontinuierlichen Partikelverteilungen und gefährden so die Stabilität des Modells.

Während der Entwicklung des Modells SAM2 wurde dieses Phänomen eingehend untersucht. Es konnte ausschließlich in der eindimensionalen, ungekoppelten Aerosolmikrophysik (Kondensations- bzw. Verdunstungsroutine entkoppelt von allen anderen Sektionen des mikrophysikalischen Modells) nachgewiesen werden, wenn entsprechende Modellparameter (Temperatur, Sättigungsgrad) so fixiert wurden, dass sie unrealistisch für die globale Aerosolmodellierung sind. Im gekoppelten globalen Modell konnten diese Artefakte bislang nicht nachgewiesen werden.

Bei ausreichend hohen Verdunstungsflüssen kann theoretisch die Gesamtpartikelanzahl eines Aerosolspektrums in das kleinste definierte Bin transferiert werden. Dieser Fall setzt jedoch extrem hohe Partikelflüsse an großen Partikeln voraus (*Accumulation* und *Coarse Mode*), ein derart hoher Partikelfluss wäre aber mit einer extrem hohen Untersättigung verbunden, die wiederum eine sofortige vollständige Verdunstung aller Aerosolpartikel induzieren würde.

Wie oben bereits erwähnt, ist die Aufweitung der Partikelspektren (Partikelgröße, Aerosolmasse und Anzahl der Partikel) hin zu ultra-feinen Partikeln ein charakteristisches Merkmal verdunstender Aerosole. Dies hat die Konsequenz, dass sich eine Partikelverteilung, die einem gewissen Grad an Verdunstung ausgesetzt worden ist, nicht mehr als normalverteilt beschreiben lässt (u.a. Tsang und Brock, 1983). Größenaufgelöste sektionale Aerosolmodelle sind daher prädestiniert zur Modellierung verdunstender Aerosole, da sie sich nicht über normalverteilte Partikelspektren definieren.

3.3.4 Sulfatbildung in troposphärischen Wolken

Der Prozess der Sulfatbildung in troposphärischen Wolken ist einerseits ein Prozess, welcher der troposphärischen Chemie zuzurechnen ist, andererseits wird hier Schwefelmasse ausgehend von SO_2 direkt in die Partikelphase von H_2SO_4 transferiert.

Integriert in den troposphärischen Schwefel-Kreislauf ist ein Schema der heterogenen Flüssigphasen-Chemie in troposphärischen Wolken (Feichter et al., 1996, siehe auch Kapitel 4.3.1, *Schwefelchemie der Troposphäre*), in welchem Sulfat (SO_4^{2-}) über die Oxidation von SO_2 mit H_2O_2 und O_3 gebildet wird. Da nur Partikel im *Accumulation* und *Coarse Mode* die Wolkenbildung aktivieren (Pruppacher und Klett, 1979), wird die gebildete Sulfatmasse jeweils zur Hälfte ausschließlich diesen Moden zugerechnet. Die Partitionierung auf einzelne Bins erfolgt in Abhängigkeit des Massenanteils jedes *Accumulation*- und *Coarse Mode*-Bins in Bezug auf die Gesamtaerosolmasse des jeweiligen Modes.

Die Konzentrationen der Oxidanten werden vorgeschrieben und basieren auf zonalen monatlichen Mitteln des CTM MOZART2 (Horowitz et al., 2003, siehe Kapitel 4.3.1).

3.3.5 Wachstum durch Koagulation

Hochdisperse Partikelverteilungen, wie Aerosole in der Atmosphäre, kollidieren aufgrund ihrer Brownschen Eigenbewegung untereinander und absorbieren sich dadurch selbst unter Einhaltung ihrer Gesamtmasse. Dieser als Brownsche Koagulation bezeichnete Prozess ist ein mikrophysikalischer Senkenterm der Partikelanzahl. Die Kollisions-Effizienz nimmt mit wachsender Partikelgröße ab, ist aber umso höher, je ausgeprägter das Größenverhältnis der koagulierenden Partikel ist. In einem geschlossenen System würde sich der Prozess verlangsamen, je mehr Partikel koagulieren. Kondensation und Brownsche Koagulation finden prinzipiell simultan statt. Welcher der Prozesse dominiert, hängt neben dem Sättigungsgrad der kondensierenden Gase auch von der Gesamtanzahl existierender Partikel ab. Die numerische Methode, diesen Prozess im sektionalen Aerosolmodell SAM2 zu berücksichtigen, wird in diesem Kapitel vorgestellt. Zunächst folgen einige Ausführungen zur Bedeutung der Koagulation im Partikelwachstum und zu den sich daraus ableitenden Konsequenzen für die numerische Beschreibung von Aerosolpopulationen.

Die Bedeutung ultra-feiner Partikel beim Wachstum von Aerosolen

In der Aerosolmodellierung befassten sich eine Reihe von Arbeiten mit dem Einfluss des Wachstums, insbesondere der Bedeutung der Koagulation auf die zeitliche Entwicklung einer Partikelverteilung (u.a. Jacobson et al., 1994; Jacobson und Turco, 1995; Jacobson, 1997a). Viele dieser Arbeiten verzichteten jedoch auf die Einbeziehung ultra-feiner Partikel, da Aerosole kleiner 10 nm keinen nennenswerten Beitrag zur Gesamtaerosolmasse liefern und so lange Zeit in der größen aufgelösten Aerosolmodellierung unbeachtet blieben.

Für die Modellierung von klimatologischen Prozessen, die wie die Wolkenbildung durch Partikel in der Atmosphäre aktiviert werden, ist jedoch eine möglichst realistische Wiedergabe der Form der Aerosolspektren, der Konzentrationen im gesamten Partikelgrößenbereich sowie der zeitlichen Entwicklung entsprechender Aerosolkenngrößen von besonderer Bedeutung (u.a. Zhang et al., 2002).

Eine Reihe von Arbeiten der letzten Jahre hat das anfängliche, von zwei Prozessen geprägte Bild des Partikelwachstums (Kondensation, Koagulation) um die Bedeutung der für diesen Prozess wichtigen Partikelformation erweitert, wie im Folgenden kurz erläutert werden soll.

Aerosolpartikelwachstum durch Kondensation von Spurengasen ist physikalisch untrennbar verknüpft mit der direkten Formation neuer Partikel in der Atmosphäre. Sowohl experimentelle als auch theoretische Arbeiten in diesen Bereichen haben in den letzten Jahren weitere Einblicke in die Bedeutung der Koagulation in der qualitativen Ausbildung von Partikelverteilungen gewährt. Vor allem die (bis heute bestehende) Diskrepanz zwischen experimentell gefundenen und theoretisch vorhergesagten Nukleationsraten in der Atmosphäre führte zur Erkenntnis, dass andere Substanzen als Schwefelsäure in den Nukleationsvorgang involviert sein müssen, darüber hinaus das frühe Wachstum der Nuclei eine entscheidende Rolle sowohl in den qualitativen als auch in den quantitativen Ausbildungen von Aerosolpopulationen in der Atmosphäre spielen müssen.

Erst im Laufe der letzten Jahre konnten die Mechanismen der initialen Schritte des Partikelwachstums differenziert (u.a. Kerminen et al., 2001, 2004b; Kulmala et al., 2000, 2004a,b,c) und in entsprechenden Theorien zusammengefasst werden (Kerminen et al., 2001; Kulmala et al., 2001; Dal Maso et al., 2002; Lehtinen et al., 2003). Diese Theorien beinhalten sowohl die Mechanismen der Partikelformation selbst als auch die Mechanismen des initialen Wachstums der Cluster durch Kondensation und Koagulation und können daher als Theorien der scheinbaren Partikelformation im Nanometerbereich gewertet werden. Im Folgenden werden die Erkenntnisse dieser Arbeiten zum initialen Partikelwachstum zusammengefasst, ohne jedoch an dieser Stelle detaillierter auf einzelne Punkte einzugehen, die Bedeutung der Koagulation soll jedoch hervorgehoben werden:

- Koagulation von (Sub-)Nanometer-Partikeln mit größeren Partikeln ist eine extrem starke Senke für kritische Cluster des Partikelformationsprozesses (Kerminen et al., 2001).
- Koagulation behindert das Partikelwachstum durch Kondensation (Kulmala et al., 2004b).
- Koagulation von kritischen Clustern mit größeren Partikeln wirkt dem Partikelformationsprozess entgegen (Kerminen et al., 2004a; Kulmala et al., 2004b).
- Die Bedeutung der Eigen-Koagulation kritischer Cluster bzw. ultra-feiner Partikel nimmt mit wachsenden Nukleationsraten zu (Korhonen et al., 2003b).
- Partikelwachstum auf detektierbare Größen benötigt das Vorhandensein von anderen kondensierbaren Substanzen als $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$ (Kerminen et al., 2001).
- Die Wachstumsrate eines Nucleus steigt in den ersten Nanometern des Wachstums an (Kulmala et al., 2004b; Kerminen et al., 2004a), konträr zu den klassischen Annahmen, wonach die Wachstumsrate eine asymptotisch fallende Funktion ist, mit einem endlichen Maximum am kritischen Cluster.
- Dies ist konsistent mit der Nano-Köhler-Theorie, wonach Wachstum von Partikeln bei Erreichen einer kritischen Größe die Kondensation von (wahrscheinlich) organischen Substanzen aktiviert, was mit einer deutlichen Intensivierung des Partikelwachstums an diesem kritischen Punkt einhergeht (Kulmala et al., 2004a).
- Nukleation findet weit häufiger statt als in früheren experimentellen und theoretischen Arbeiten angenommen, da Koagulation die Nuclei eliminiert, bevor sie auf eine Größe heranwachsen, die detektiert werden kann (Kerminen et al., 2001).
- Experimentell gefundene Nukleationsraten sind weit niedriger als die "wahren" Nukleationsraten mit denen neue, aufgrund ihrer Größe nicht detektierbare Partikel in der Atmosphäre entstehen (Kerminen et al., 2001).

- Partikelformation ist eine sehr sensitive Funktion gegenüber der Verteilung existierender Partikel (Kerminen et al., 2004a).
- Nukleation und Wachstum scheinen voneinander entkoppelte Prozesse zu sein, da unterschiedliche Gase diese Prozesse beanspruchen (u.a. Kulmala et al., 2000, 2004b, im binären System $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ allerdings ist dies von untergeordneter Bedeutung).
- Der initiale Nukleationsschritt scheint hauptsächlich von H_2SO_4 abhängig zu sein (Kerminen et al., 2004a).

Kerminen und Kulmala (2002) und Kerminen et al. (2004a) entwickelten Parametrisierungen der scheinbaren Partikelformation für eine zu spezifizierenden Partikelgröße, welche sowohl das initiale Wachstum durch Kondensation entsprechend der Nano-Köhler-Theorie, die Partikelsenken von Koagulation und Eigen-Koagulation als auch die Abhängigkeit des Prozesses von der Größenverteilung bereits existierender Partikel umfasst. Die Parametrisierung nach Kerminen et al. (2004a) ist geeignet für großskalige Anwendungen wie die regionale und globale Aerosolmodellierung, konnte sich aber bislang in globalen klimatologischen Studien aber nicht manifestieren.

Die wesentliche Unsicherheit in den Theorien des initialen Partikelwachstums ist nicht die Bedeutung der organischen Substanzen an sich, sondern vielmehr die Diversität und Identifizierung dieser Substanzen und ihrer chemischen Eigenschaften (Kerminen et al., 2004a). Ein positiver Nebeneffekt für die hier vorliegende Arbeit ist, dass die oben vorgestellten Erkenntnisse zum initialen Partikelwachstum zum Teil auch im binären System $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ Gültigkeit haben (Kerminen et al., 2004a). Bevor jedoch daraus Rückschlüsse für die mikrophysikalischen Parametrisierungen des sektionalen Aerosolmodells SAM2 gezogen werden, soll zunächst auf einige numerische Arbeiten der Aerosoldynamik hingewiesen werden.

Einige wenige Aerosolmodellstudien befassten sich innerhalb der letzten Dekade mit der Bedeutung der Koagulation in der Aerosoldynamik unter der Einbeziehung ultra-feiner Partikel. Ausführliche Untersuchungen zum Einfluss der Koagulation auf das Partikelwachstum wurden von Jacobson (1997a) anhand eines sektionalen Aerosolmodells (aufgelöster Partikelbereich $0.02 - 10 \mu\text{m}$) unter besonderer Berücksichtigung der Partikelformation durchgeführt. Jacobson (1997a) stellte fest, dass nur Koagulation gekoppelt an die Kondensation die von Nukleationsprozessen verursachten teilweise extrem hohen Partikelzahlen im Nanometerbereich reduzieren kann (in diesem Fall eine Reduktion von $10^5 \text{ cm}^{-3} \rightarrow 0$). Kondensation bleibt dabei der maßgebliche Wachstumsprozess, der den Mode-Radius einer Partikelverteilung hin zu größeren Radien verschiebt (genauer: Den Mode-Radius des betreffenden Modes einer mehr-modalen Partikelverteilung). Wird Koagulation von ultra-feinen Partikeln in der numerischen Behandlung des Wachstumsprozesses vernachlässigt, bleiben die von der Partikelformation induzierten hohen Partikelkonzentrationen am unteren Ende des Spektrums auch bei sogenannten "gealterten" Aerosolpopulationen erhalten. Die simultane Behandlung beider Wachstumsprozesse führt dagegen zur Ausbildung von charakteristischen Aerosolspektren, wie sie im Zuge von Partikelformationsprozessen beobachtet worden sind (u.a. Clarke et al., 1998b; Weber et al., 1999; Kulmala et al., 2001, 2004b). Jacobson (1997a) stellte darüber hinaus fest, dass das Wachstum von Partikeln im Sub-Mikrometerbereich und somit auch das Wachstum ultra-feiner Partikel von einem Aerosolmodell nur dann reproduziert werden kann, wenn 1) das Partikelgrößenspektrum auch am unteren Rand des Spektrums hoch genug aufgelöst wird und 2) gleichzeitig möglichst realistische Annahmen für die von Partikelformationsprozessen verursachten hohen Partikelzahlen im Sub-Mikrometerbereich getroffen werden.

Der zweite Punkt ist insofern wichtig, als dass Studien der Aerosoldynamik ohne Einbeziehung der Nukleation die Bedeutung der Koagulation im Gesamtsystem vollkommen unterschätzen, da die Wachstumsraten von Kondensation und Koagulation sich dann ausschließlich aus der Verschiebung der Mode-Radien

einer Partikelverteilung hin zu größeren Radien ableitet (diese wird unter "normalen" atmosphärischen Bedingungen immer von der Kondensation dominiert).

Die Aussagen von Jacobson (1997a) wurden von Korhonen et al. (2003a, 2004) unter expliziter Einbeziehung ultra-feiner Partikel ($D \geq 0.7$ nm) bestätigt. Beide Studien wägen die Eignung verschiedener numerischer Verfahren (mehrmodal, monodispers, *Fixed Sectional* in vier Auflösungen und verschiedene *Moving-Center*-Methoden) auf die Repräsentation von Partikelanzahl- und Partikelgrößenverteilungen ab und erlauben erste Abschätzungen der Bedeutung des initialen Wachstums von Partikeln in der globalen Aerosolmodellierung.

Aus den vorangegangenen Ausführungen zum initialen Partikelwachstum sowie zu den vorgestellten numerischen Arbeiten lassen sich eine Reihe von Schlussfolgerungen für die Untersuchungen der Aerodynamik im globalen Zirkulationsmodell MAECHAM5-SAM2 treffen, wie im Folgenden erläutert werden soll.

Löst man den Größenbereich ultra-feiner Partikel in Aerosolmodellen explizit auf und bezieht Koagulation gemeinsam mit den klassischen Theorien zur Gas-Partikel-Partitionierung ein, sind folgende Punkte bei der Interpretation eines solchen Modells zu beachten:

- Wie in Kapitel 3.2 beschrieben, muss die Partikelformationsrate auf die kleinste vom Modell berücksichtigte Partikelgröße transformiert werden. Die vom Modell berechnete Nukleationsrate ist auch dann, entsprechend Kulmala et al. (2004c) und Kerminen et al. (2004a) als eine scheinbare Nukleationsrate bei x nm zu bewerten, wobei x die Größe des kleinsten Partikels im Modell bezeichnet. Die entsprechende scheinbare Nukleationsrate muss daher zwangsläufig kleiner sein als jene der korrespondierenden kritischen Clustergröße. Gleiches gilt für die Konzentration der Nuclei bzw. ultra-feiner Partikel, welche aus Gründen der Massenerhaltung vom Modell drastisch reduziert wiedergegeben wird und ebenfalls als scheinbare Konzentration der Nuclei bei x nm interpretiert werden muss. Es ist leicht ersichtlich, dass ein Vergleich dieser angepassten Nukleationsparameter mit experimentell gewonnenen Nukleationsdaten zwangsläufig quantitative Unterschiede aufzeigen muss.
- Der mit der Partikelformation einhergehende Kondensationsfluss auf bereits existierende Partikel hat sein Maximum im Größenbereich am bzw. etwas oberhalb des kritischen Clusters und fällt dann asymptotisch bis auf wenige Prozent im *Accumulation* und *Coarse Mode* ab. Bezieht man ultra-feine Partikel nicht in die Definition des Aerosolmodell-Partikelspektrums ein, wie in Jacobson (1997a), ergibt sich quasi eine verzerrte Wiedergabe der Partikelwachstumseigenschaften hin zu einer Überschätzung des Kondensationsflusses an Aerosolen im unteren Grenzbereich des jeweiligen im Modell definierten Spektrums.
- Wenn man die Nano-Köhler-Theorie in der arithmetischen Beschreibung der Wachstumsraten von Partikeln bzw. des Massentransfers von Gasmolekülen in die Partikelphase berücksichtigt, wird die Wachstumsrate in den ersten Nanometern des Wachstums mit positivem Gradienten $\partial n / \partial r$ wiedergegeben. Außerdem wird mit der Definition einer kritischen Aktivierungsgröße das Maximum des Kondensationsflusses quasi fixiert, und zwar einige wenige Nanometer oberhalb des kritischen Radius der Partikelformation. Eine Verzerrung der Abbildung des von der Partikelgröße abhängigen kondensationsbedingten Wachstums im Modell, wie im vorigen Punkt erläutert, wäre durch Einbeziehung der Nano-Köhler-Theorie quasi nicht existent.
- Koagulation ist eine starke Senke im ultra-feinen Partikelbereich (Kerminen et al., 2001). Somit beeinflusst Koagulation vor allem die Form einer Partikelverteilung im unteren Grenzbereich des

Spektrums. Berücksichtigen Aerosolmodelle ultra–feine Partikel nicht, kann dieses wichtige qualitative Merkmal der Aerosoldynamik vom Modell nicht reproduziert werden. Entsprechende Einschränkungen bei der Repräsentation des Partikelspektrums sind auch in Modellen zu erwarten, die den ultra–feinen Bereich nicht vollständig auflösen.

- Eigen–Koagulation trägt vor allem unter hohen Partikelformationsraten bedeutend zur Ausbildung der Partikelgrößenverteilung bei (Korhonen et al., 2003b; Kerminen et al., 2004a). Die Linearisierung der Quell- und Senkenterme der Koagulationsgleichung in einem Aerosolmodell als Funktion der Nukleationrate zu gestalten, wird, zumindest im Rahmen dieser Arbeit, als nicht praktikabel eingeschätzt.

Berücksichtigung der Koagulation im Modell SAM2

Die zeitliche Änderung einer Partikelanzahlverteilung durch Koagulation, siehe Gl. (3.2), wird durch eine Integro–Differentialgleichung beschrieben (Friedlander, 1977):

$$\left. \frac{\partial n_m}{\partial t} \right|_{\text{koag}} = \frac{1}{2} \int_0^{m-\bar{m}} K_{m-\bar{m},\bar{m}} n_{m-\bar{m}} n_{\bar{m}} d\bar{m} - n_m \int_0^\infty K_{m,\bar{m}} n_{\bar{m}} d\bar{m}, \quad (3.18)$$

wobei n die zeitlich abhängige Partikelanzahl von Partikeln mit den Massen m , $m - \bar{m}$ oder \bar{m} bezeichnet. Der Koeffizient K beschreibt die Rate, mit der Partikel verschiedener bzw. gleicher Massen koagulieren.

Der erste Term der rechten Seite von Gl. (3.18) ist der Quellterm, der zweite Term der rechten Seite der Senkenterm der Partikelanzahl. Der Quellterm beschreibt die Formationsrate von Partikeln der Masse m aufgrund von Kollisionen mit kleineren Partikeln. Der Senkenterm beschreibt die Abnahme der Anzahl von Partikeln mit der Masse m aufgrund von Kollisionen mit Partikeln jeder Größe.

Die Implementierung der numerischen Formulierung der Brownschen Koagulation in SAM2 ist identisch mit der des Vorgängermodells SAM in der Version ohne Berücksichtigung des Kelvin–Effektes (Timmreck, 1997). Die in SAM/SAM2 verwendete mathematische Beschreibung des Koagulationskoeffizienten K beruht auf Fuchs (1964) in der Formulierung für die Interpolation zwischen den thermalen Regimen des Kontinuums und der Gaskinetik (siehe auch Jacobson et al., 1994). Die Berechnung der in K enthaltenen Diffusionskoeffizienten kollidierender Partikel nach Phillips (1975) berücksichtigt eine Korrektur für Nicht–Kontinuumseffekte der Partikelbewegung nach Cunningham (1910), siehe auch Seinfeld und Pandis (1998) sowie Kapitel 4.2.2. Für eine ausführliche Beschreibung der mathematischen Formulierung des Koagulationskoeffizienten sei an dieser Stelle auf Timmreck (1997) und Timmreck und Graf (2000) verwiesen.

Die diskrete Formulierung der Koagulationsgleichung Gl. (3.18) basiert auf Seinfeld (1986) und wurde von Toon et al. (1988) in eine semi-implizite, das Partikelgesamtvolumen erhaltende sowie für beliebige Diskretisierungen einer Partikelanzahlverteilung anwendbare Form überführt. Die volumenerhaltende Formulierung von Toon et al. (1988) wurde von Timmreck (1997) für SAM durch eine massenerhaltende Formulierung ersetzt. Jacobson et al. (1994) weist darauf hin, dass eine solche semi-implizite volumen- bzw. massenerhaltende Formulierung der Koagulationsgleichung einen geringen Fehler in der Erhaltung der Partikelzahlkonzentration induziert, die Lösung der Erhaltungsgleichung selbst aber unabhängig vom Zeitschritt bedingungslos stabil ist. Eine voll-implizite Formulierung, wie sie von Jacobson et al. (1994) angegeben wird, wäre sowohl volumen- bzw. massen- als auch partikelzahlerhaltend, müsste aber iterativ gelöst werden und steht daher für Anwendungen in der globalen Aerosolmodellierung nicht zur Diskussion.

Eine nicht-iterative und gleichzeitig beide Momente erhaltende Formulierung der Koagulationsgleichung bedarf der gleichzeitigen und separaten Lösung der allgemeinen dynamischen Zustandsgleichung der Aerosole Gl. (3.1) und Gl. (3.2) für die Momente Aerosolpartikelanzahl N und Aerosolmasse M . Für sektionale Modelle geeignete Verfahren werden in Jacobson (1997a) und Adams und Seinfeld (2002) vorgestellt, lassen sich jedoch aufgrund des Ein-Momenten-Ansatzes von SAM/SAM2 nicht in dieses Modell übertragen.

Der numerische Lösungsaufwand der semi-impliziten Koagulationsgleichung ist hoch, verglichen mit anderen (mikro-)physikalischen Parametrisierungen, da jedes Bin der diskretisierten Partikelanzahlverteilung zweifach abgetastet werden muss, je einmal zur Berechnung des Quell- und des Senkenterms von Gl.(3.18). In SAM/SAM2 wird es dadurch allen Partikeln eines Bins erlaubt, sowohl mit Partikeln der gleichen Größe (Eigen-Koagulation) als auch mit kleineren und größeren Partikeln zu koagulieren.

In der Entwicklung von monodispersen, modalen und sektionalen Aerosolmodellen hat man versucht, den hohen numerischen Aufwand der Lösung des Koagulationsproblems zu minimieren, indem Kollisionen unter Partikeln bestimmter Größenbereiche per Definition maskiert und so von der Lösung ausgeschlossen werden. Zwei Beispiele: Das modale Aerosolmodell HAM/M7 (Stier et al., 2005) vernachlässigt die Quellterme jedes Modes für Koagulation mit kleineren Partikeln sowie den Senkenterm im *Coarse Mode*. Dal Maso et al. (2002) zeigen anhand eines analytischen sektionalen Aerosolmodells der gekoppelten Aerosoldynamik unter Einbeziehung gemessener Partikelformationsraten bei 3 nm, dass der Koagulationsquellterm um mehrere Größenordnungen kleiner ist als der Quellterm der Kondensation in der allgemeinen dynamischen Zustandsgleichung der Aerosole Gl. (3.2). Dal Maso et al. (2002) schließen daraus, dass der Quellterm der Koagulationsgleichung generell vernachlässigt werden kann. Kerminen et al. (2004b) weisen anhand von Zeitskalenanalysen des Wachstumsprozesses von Partikelnuclei darauf hin, dass die Vernachlässigung einzelner Quell- oder Senkenterme des Aerosolwachstums unter bestimmten Fragestellungen sinnvoll sein kann, dass aber diese Maßnahmen aufgrund der hohen Diversität der den Wachstumsprozess beeinflussenden Bedingungen keine Allgemeingültigkeit haben können.

SAM2 folgt dem Ansatz seines Vorgängermodells SAM und berücksichtigt alle Quell- und Senkenterme der Koagulationsgleichung unter allen atmosphärischen Bedingungen, inklusive der Berücksichtigung der Eigen-Koagulation. Die vollständige Behandlung der Koagulationsgleichung, gekoppelt mit der expliziten Formulierung des Gas-Partikel-Massentransfers durch ein Advektionsschema, sollte das Wachstum auch von ultra-feinen Partikeln sowohl unter troposphärischen als auch unter stratosphärischen Bedingungen realistisch abbilden können. Da der Fokus dieser Arbeit auf der numerischen Beschreibung der vulkanisch ungestörten stratosphärischen Aerosolschicht liegt, wird Koagulation durch turbulente Diffusion nicht berücksichtigt, denn dieser Prozess affiziert hauptsächlich Partikel im Mikrometerbereich (Seinfeld und Pandis, 1998). Diese sind jedoch in der vulkanisch ungestörten Stratosphäre so gut wie nicht präsent. Koagulation unter sedimentierenden Partikeln wird vernachlässigt, ein entsprechender Mechanismus zwischen Aerosolen und Wassertropfen wird in Kapitel 4.2.2 behandelt.

Für die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen der Aerosoldynamik der oberen Atmosphäre lässt sich aus Korhonen et al. (2003a, 2004) schlussfolgern, dass eine stationäre 35-Bin-Approximation des Partikelgrößenbereiches (*Fixed Sectional*) in der Lage sein sollte, die Wachstumseigenschaften der Aerosolpartikel zu reproduzieren und numerische Diffusions- und Dispersionseffekte nicht zu erwarten sind bzw. moderat ausfallen sollten.

An dieser Stelle soll nicht unerwähnt bleiben, dass die Zusammenhänge der Nano-Köhler-Theorie, wonach die Wachstumsrate neu formierter Partikel in den ersten Nanometern des Wachstums ansteigt, in dieser Arbeit aufgrund der eher klassischen Annahmen zum Partikelwachstum und der Beschränkung auf ein binäres System nicht berücksichtigt werden können.

3.4 Spezifische Parametrisierungen

Massenfilter–Algorithmus

In den vorangegangenen Kapiteln ist bereits erwähnt worden, dass sich numerische Dispersion störend auf die modellierten Prozessinteraktionen der Aerosolmikrophysik auswirkt und darüber hinaus kritisch für die Stabilität des gesamten globalen Modells sein kann. Numerische Dispersion kann von einer Reihe von sogenannten Ausnahmesituationen hervorgerufen werden, welche wiederum von einer hohen Bandbreite gesamtatmosphärischer Bedingungen induziert werden können. In der Definitionsphase eines sektionalen Aerosolmodells lassen sich derartige Ausnahmesituationen schwer abschätzen und erfordern ein sorgfältiges Testen gekoppelter Modellkomponenten.

Eine solche Ausnahmesituation kann das Auftreten von negativen Partikelanzahlkonzentrationen in Teilbereichen des Partikelspektrums sein. Die Parametrisierungen der Gas–Partikel–Partitionierung (Kapitel 3.2, 3.3.2 und 3.3.3) können unter Umständen eine solche unphysikalische Lösung liefern. Ohne weitere numerische Behandlung dieser Artefakte bleibt die Lösung der aerosol–mikrophysikalischen Erhaltungsgleichung bei voranschreitender Integration des Modells gestört, bis numerisch diffusive Effekte diese Dispersionen im Partikelspektrum abbauen können. Vielmehr besteht die Gefahr, dass sich diese zunächst lokal auftretenden Artefakte in den Partikelspektren ausbreiten und die Amplitude dieser Störungen stetig ansteigt.

Unter bestimmten Voraussetzungen, die im wesentlichen mit der lokalen Steigung einer Partikelgrößenverteilung zusammenhängen, ist es arithmetisch möglich, dass die vom Kondensationsschema berechnete Partikelzahländerung eines Bins Δn_k negativ ausfällt und in ihrem Betrag die eingangs eines Zeitschritts vorhandene Partikelzahl n_k^0 übersteigt:

$$n_k^0 + \Delta n_k < n_k^0 \quad \text{und} \quad n_k^0 + \Delta n_k < 0. \quad (3.19)$$

Eine einfache Limitierung der resultierenden Größe am Ende des Zeitschritts (Index 1):

$$n_k^1 = \text{MAX}(n_k^0 + \Delta n_k, 0) \quad (3.20)$$

wäre mit einer Verletzung der Massenbilanz des Aerosolmodells verknüpft.

Die Algorithmen der Gas–Partikel–Partitionierung des mikrophysikalischen Kernmoduls von SAM2 wurden daher mit einem in dieser Arbeit erstmals vorgestellten Filteralgorithmus gekoppelt, der das Auftreten und die Ausbreitung von Oszillationen in der Partikelanzahlverteilung und der prognostischen Aerosolmassenverteilung unter strikter Einhaltung der Partikelgesamtmasse dämpft. Dieser Filteralgorithmus hat in ausgedehnten Testreihen (auf deren Wiedergabe an dieser Stelle verzichtet werden soll) seine Eignung auch an Partikelverteilungen bewiesen, die extrem steile Gradienten aufweisen, wie sie in der oberen Troposphäre sowie der unteren und mittleren Stratosphäre nach Partikelformationsprozessen und relativ geringen Wachstumsraten auftreten können (nicht selten über sechs Größenordnungen abfallende Spektren an benachbarten Gitterpunkten des Radianraums).

Der Filteralgorithmus eliminiert negative Konzentrationen durch Einführung eines nicht–iterativen arithmetisch einfachen Transferterms, der eine leichte Erhöhung der numerischen Diffusion in der unmittelbaren Umgebung der Störungen induziert, diese aber keine nennenswerten Auswirkungen auf die Modellierung der größen aufgelösten Partikelspektren hat. Da sich für eine solche Aufgabe kein physikali-

scher Zusammenhang herstellen lässt, darüber hinaus der numerische Aufwand möglichst gering gehalten werden soll, wurde für SAM2 ein einfacher arithmetischer Ansatz zur Redistributionierung der gefilterten Partikelmassen gewählt. In einem ersten Schritt werden alle negativen Partikelmassen benachbarter Bins akkumuliert:

$$m_f = \sum_{i=k}^{k+(x-1)} |m_i^1|, \quad m_i^1 < 0 \quad \text{und} \quad m_f > 0, \quad (3.21)$$

wobei Index f die gefilterte Masse bezeichnet und x die Anzahl benachbarter Bins mit resultierenden negativen Massenkonzentrationen. k ist der Index des Bins mit negativer Masse, welches vom Filter innerhalb einer Sektion zuerst detektiert wird. Der Index 1 kennzeichnet die Konzentration ausgangs des Zeitschritts, 0 entsprechend eingangs des Zeitschritts.

Im zweiten Schritt wird die gefilterte Masse m_f dem in Flussrichtung von v_r^* , Gl. (3.15), liegenden Bin m_{k+x} zugerechnet, welches einen nicht-negativen Wert in der Partikelmassenverteilung aufweist ($m_{k+x} > 0$):

$$m_{k+x}^1 = m_{k+x}^0 + \Delta m_{k+x} + m_f, \quad (3.22)$$

wobei Δm_{k+x} die Veränderung im Partikelspektrum im Bin $k+x$ durch Kondensation von H_2SO_4 bezeichnet.

Der Filter hat keine Wirkung, wenn keine negativen Konzentrationen innerhalb eines Spektrums nach durchlaufen der Kondensationsroutine festgestellt werden, d.h. es gilt $m_f = 0$, wenn für alle resultierenden Massenkonzentrationen eines Spektrums $m_k^0 + \Delta m_k > 0$, $k = 1 \dots N_k$ gilt. An dieser Stelle sei noch einmal betont, dass der hier vorgestellte Algorithmus zwingend Aerosolmassen filtern muss. Denn diese sind die in SAM2 definierten prognostischen Variablen, obwohl vom Kondensationsschema unter Umständen negative Anzahlkonzentrationen induziert werden (Kondensation ist ein die Partikelanzahlkonzentration erhaltender Prozess).

Der hier vorgestellte Algorithmus zur Vermeidung negativer Konzentrationen ist numerisch einfach formuliert und strikt massenerhaltend. Die Methode verursacht einen künstlichen Anstieg der Partikelanzahlverteilung in nur einem Bin, jeweils in unmittelbarer Nachbarschaft der gefilterten Sektionen. Diese künstliche Anhebung des Spektrums der Partikelanzahl "verschmiert" durch Partikelwachstum im nächsten Zeitschritt und ist bei weiterer Integration des Modells praktisch nicht mehr nachweisbar. Es soll dennoch darauf hingewiesen werden, dass diese im positiven Sinne zu wertenden Artefakte in den Partikelverteilungen unter Umständen nachweisbar sein können, wenn die Diagnostik in jedem Zeitschritt des Modells erfolgen sollte.

Kapitel 4

Das globale Aerosol-Zirkulationsmodell MAECHAM5-SAM2

In diesem Kapitel werden diejenigen Komponenten des in dieser Arbeit vorgestellten Aerosol-Zirkulationsmodells MAECHAM5-SAM2 beschrieben, die nicht Teil des im vorigen Kapitel behandelten aerosol-mikrophysikalischen Kernmoduls sind. Es erfolgt die Vorstellung der Parametrisierungen der physikalischen Quellen- und Senkenterme von Sulfataerosolen in der Atmosphäre sowie eine Übersicht der berücksichtigten chemischen Transformationswege. Einleitend wird das allgemeine Zirkulationsmodell der Atmosphäre vorgestellt, welches im Rahmen dieser Arbeit in einer die Troposphäre, die Stratosphäre und die untere Mesosphäre auflösenden Version zur Anwendung kommt.

4.1 Modellbeschreibung

ECHAM5

ECHAM ist ein globales Zirkulationsmodell der Atmosphäre (*General Circulation Model*, GCM), eine vom Max-Planck-Institut für Meteorologie modifizierte Version des Wettervorhersagemodells des *European Centre for Medium-Range Weather Forecasts* (ECMWF), welches derzeit in seiner fünften Generation vorliegt (Roeckner et al., 2003). ECHAM5 ist ein spektrales, hydrostatisches Zirkulationsmodell, welches im horizontalen Raum die prognostischen Variablen Wirbelstärke, Divergenz, Oberflächendruck und Temperatur als Serie abgeschnittener Kugelfunktionen repräsentiert. Physikalische Parametrisierungen und nicht-lineare Terme werden im Gaußschen Gitterpunktraum gelöst. Ebenfalls im Gitterpunktraum erfolgt der Transport von chemischen Spurenstoffen (*Tracer*), zur Anwendung kommt hier ein Semi-Lagrange-Transportschema nach Lin und Rood (1996). Die vertikale Auflösung definiert sich über sogenannte σ -Hybrid-Koordinaten. Die vertikale Schichtung des Gitters passt sich in Bodennähe der Erdoberflächenkontur an und entwickelt sich quasi-isentropisch in der Stratosphäre. Die Zeitintegration erfolgt mittels eines semi-impliziten *Leapfrog*-Verfahrens.

Das stratiforme Wolkenschema prognostiziert die spezifische Feuchte der Atmosphäre sowie Wolkenflüssigwasser und Wolkeneis. Die Wolkenmikrophysik (Lohmann und Roeckner, 1996) umfasst prognostische

Gleichungen der Phasenübergänge von Flüssigwasser und Eis sowie für Niederschlag, Verdunstung, Schneeschmelze und Sedimentation von Wolkeneis. Ein statistisches Schema von Tompkins (2002) ermittelt den Wolkenbedeckungsgrad in troposphärischen Gitterzellen, wobei die Verteilung des Gesamtwassergehalts prognostisch behandelt wird. Konvektive Wolken und konvektiver Transport werden in ECHAM5 mittels eines von Nordeng (1994) modifizierten Massenfluss-Schemas nach Tiedtke (1989) berücksichtigt.

Das Strahlungsschema der hier verwendeten ECHAM5-Version 5.3.02 berücksichtigt im kurzwelligen Bereich vier spektrale Bänder, ein Band für sichtbares und ultra-violettes Licht und drei Bänder im nahen Infrarot-Bereich (Fouquart und Bonnel, 1980). Im langwelligen Bereich wird ein 16 spektrale Bänder umfassendes RRTM-Schema (*Rapid Radiative Transfer Model*) nach Mlawer et al. (1997) zur Berechnung des Strahlungstransfers verwendet. Die vom mikrophysikalischen Aerosolmodell SAM2 interaktiv berechneten Spektren des Sulfataerosols sind nicht mit dem Strahlungsschema des GCM gekoppelt. Stattdessen kommt eine nach Tanre et al. (1984) vorgeschriebene Aerosolklimatologie zur Berechnung des Strahlungstransfers zur Anwendung. Die Kopplung des sektionalen Aerosolmodells SAM2 mit dem ECHAM5-Strahlungsschema ist Gegenstand zukünftiger Entwicklungen.

Eine detaillierte technische Beschreibung des Zirkulationsmodells ECHAM5 findet sich in Roeckner et al. (2003), die troposphärische Klimatologie wird in Roeckner et al. (2006) unter besonderer Beachtung der horizontalen und vertikalen Auflösung diskutiert.

Das Mittelatmosphärenmodell

MAECHAM5 (Manzini et al., 2006) erweitert die numerische Beschreibung der atmosphärischen Zirkulation auf die gesamte Stratosphäre sowie die untere Mesosphäre bis in eine Höhe von 0.01 hPa (ca. 80 km). Aufsteigen, Interaktionen und Dissipation der vom Modell nicht aufgelösten Gravitationswellen troposphärischen Ursprungs werden in einem kontinuierlichen Spektrum nach Hines (1997) und Manzini et al. (2006) parametrisiert.

Wie Giorgetta et al. (2002) zeigen konnten, ist die vertikale Auflösung ein entscheidender Parameter in der realistischen Repräsentation der quasi-zweijährigen Schwingung im Zirkulationsmodell. Werden 90 Schichten (L90) berücksichtigt, gibt MAECHAM5 die QBO realitätsnah wieder (Giorgetta et al., 2006; Charlton et al., 2007).

Diese hochaufgelöste Version stellt jedoch nach wie vor hohe Anforderungen an die zu verwendende *Hardware*, sowohl hinsichtlich der benötigten CPU-Leistung als auch hinsichtlich der Bereitstellung des virtuellen und physikalischen Speichers. Ein vergleichsweise rechenzeitintensives Aerosolmodell wie SAM2 (siehe Kapitel 3.3.5) in die Atmosphärenmodellierung anhand der L90-Version einzubeziehen, ist derzeit technisch zwar möglich, aber nicht praktikabel. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente erfolgten unter Anwendung einer 39 Schichten umfassenden Modellversion (L39), dessen vertikale Auflösung kontinuierlich von 1.5 km im Bereich der Tropopause auf 3 km im Bereich der Stratopause ansteigt (L90: 700 m bzw. 1 km). In der L39-Version kann die QBO von MAECHAM5 jedoch nicht reproduziert werden (Giorgetta et al., 2002, 2006; Manzini et al., 2006), sodass ein bereits in ECHAM4 evaluiertes Assimilationsverfahren nach Giorgetta und Bengtsson (1999) zur Anwendung kommt, um die zonalen Winde in der tropischen unteren Stratosphäre äquatorialsymmetrisch in einer latitudinal $\pm 7^\circ$ umfassenden Kerndomäne auf Basis der in Singapore (1.17°N) beobachteten äquatorialen zonalen Winde (Naujokat, 1986) vorzuschreiben.

4.2 Physikalische Quellen- und Senkenprozesse

4.2.1 Emissionen

Derzeit stehen folgende Emissionsszenarien in MAECHAM5–SAM2 zur Verfügung:

- AEROCOM, Experiment B: Emissionsinventar repräsentativ für das Jahr 2000 für klimatologische Simulationen unter heutigen Bedingungen (Dentener et al. (2006), <http://dataips1.ips1.jussieu.fr/AEROCOM/emissions.html>).
- GEIA, repräsentativ für die Emissionsquellen und -Stärken der Achtziger Jahre (<http://www.geiacenter.org>).
- IPCC SRES A1B basierend auf einem Inventar des *Japanese National Institute for Environmental Studies* (NIES)

Allen weiteren Ausführungen beziehen sich auf die Emissionen des AEROCOM Experiment B Szenarios, welches ausschließlich in dieser Arbeit Anwendung fand. Die Implementierung des Emissions-Moduls entspricht dem von ECHAM5–HAM (Stier et al., 2005), wobei in MAECHAM5–SAM2 ausschließlich die Primärquellen der Sulfataerosol-Vorläuferverbindungen DMS und SO_2 berücksichtigt werden. Gemäß AEROCOM werden 2.5 % der direkten SO_2 -Emissionen als Primärsulfat-Emissionen behandelt.

Die Flüsse von ozeanisch gebildetem DMS werden interaktiv über eine Parametrisierung nach Nightingale et al. (2000) aus DMS-Seewasserkonzentrationen (Kettle und Andreae, 2000) berechnet, wohingegen terrestrische biogene DMS-Emissionen (Pham et al., 1995) auf Basis monatlich gemittelter Datensätze vorgeschrieben werden.

Ebenfalls vorgeschrieben werden alle SO_2 -Emissionen in ihrer Stärke, der Emissionshöhen und in ihrer globalen Verteilung: Anthropogene Emissionen fossiler Brennstoffe und Emissionen aus Industrie, Kraftwerken und Schiffsverkehr (Cofala et al., 2005) auf Basis jährlicher Mittel, ebenso wie explosive und kontinuierliche Vulkanemissionen (Halmer et al., 2002; Andres und Kasgnoc, 1998). Auf Basis monatlicher Mittel erfolgt die Einbindung der Emissionen aus Vegetationsfeuern (van der Werf et al., 2003).

Das Sulfataerosol-Vorläufergas Carbonylsulfid (OCS) wird in der derzeitigen Version von MAECHAM5–SAM2 nicht emittiert sondern auf Basis monatlicher Mittel vorgeschrieben (siehe Kapitel 4.3) und ist so im Gegensatz zu den anderen hier beschriebenen Sulfataerosol-Vorläufergasen kein prognostischer Parameter.

Die Partitionierung der Primäremissionen von (SO_4^{2-}) erfolgt entsprechend Stier et al. (2005) für Schiffs-, Industrie- und Kraftwerksemissionen jeweils zur Hälfte im *Accumulation Mode* und *Coarse Mode*, alle anderen (SO_4^{2-}) Primäremissionen jeweils zu 50 % im *Aitken Mode* und *Accumulation Mode*. Abweichend von ECHAM5–HAM erfolgt die Distributionierung des Primärsulfats ausschließlich als emittierte Aerosolmasse innerhalb der in SAM2 fixierten Mode-Grenzen, anteilig der pro Mode definierten Anzahl Bins. Aufgrund der in der 35-Bin Diskretisierung fixierten obere Grenze bei Partikeln mit einem Radius von $2.6 \mu\text{m}$, wird in diesem Ansatz jedem Bin des *Coarse Mode* eine um den Faktor 1.86 höhere Primärsulfatmasse zugerechnet als jedem Bin des *Accumulation Mode*, da in letzterem 13 Bins definiert sind, im *Coarse Mode* dagegen nur 7 Bins.

4.2.2 Physikalische Senken

Verschiedene physikalische Prozesse kennzeichnen die räumliche Verteilung und Verweildauer von Aerosolen in der Troposphäre und Stratosphäre. Die vertikale Verteilung stratosphärischen Aerosols wird maßgeblich bestimmt von der Partikelsedimentation, die vor allem schwere Partikel effizient aus der Stratosphäre entfernt (Toon et al., 1979). Vertikale und Tropopausen–Austauschprozesse bestimmen vorrangig die Verweildauer von kleinen und leichten Sub-Mikrometer–Partikeln der Stratosphäre (u.a. Reiter, 1975; Hamill et al., 1977b). In der Troposphäre wird die Verweildauer von Aerosolen maßgeblich von an die Nassphase der Atmosphäre gekoppelten physikalischen Prozessen bestimmt, darüber hinaus wird ein nicht unerheblicher Anteil der globalen Aerosolmasse in der planetaren Grenzschicht deponiert.

Auf Basis entsprechender Module des modalen Aerosolmodells ECHAM5–HAM (Stier et al., 2005) werden physikalische Senkenprozesse von SO_2 und (SO_4^{2-}) , die in Verbindung mit dem troposphärischen Wasserdampfgehalt stehen, in MAECHAM5–SAM2 als Nassdeposition betrachtet, physikalische Senkenprozesse von DMS, SO_2 und (SO_4^{2-}) auf der Erdoberfläche als Trockendeposition. Die physikalischen Parametrisierungen und die Diagnostik beider Prozesse wurden von ECHAM5–HAM adaptiert und sind lediglich den numerischen Erfordernissen der sektionalen Beschreibung des Aerosolspektrums angepasst worden. Da der Fokus dieser Arbeit auf die stratosphärische Aerosoldynamik gerichtet ist, soll im Folgenden nur kurz auf die troposphärischen physikalischen Aerosolsenkerterme eingegangen werden. Im Anschluss erfolgt eine ausführliche Beschreibung der Repräsentation der Sedimentationseigenschaften stratosphärischer Aerosolpartikel im sektionalen Aerosolmodell SAM2.

Troposphärische Senkenprozesse

Trockendepositionsfluss F_i^{td} ist das Produkt aus der Oberflächenkonzentration eines Tracers i und dessen Depositionsgeschwindigkeit v_i^{td} :

$$F_i^{td} = C_i \rho_L v_i^{td}, \quad (4.1)$$

wobei C_i das Massenmischungsverhältnis eines Tracers und ρ_L die Luftdichte bezeichnet. Die Trockendepositionsgeschwindigkeit wird nach Ganzeveld et al. (1998) in Abhängigkeit der Widerstandseigenschaften von Gasen und Aerosolen in der quasi-laminaren Bodengrenzschicht der Atmosphäre parametrisiert, wobei die Löslichkeit von SO_2 in feuchter Umgebung berücksichtigt wird. Die Trockendepositionsflüsse der planetaren Grenzschicht der Atmosphäre werden von den Emissionsflüssen des jeweiligen Tracers subtrahiert und stellen so die untere Randbedingung für die vertikale Diffusion in MAECHAM5.

Nassdeposition ist die an das ECHAM5–Wolkenschema gekoppelte Behandlung zweier troposphärischer Prozesse: Die Aufnahme von SO_2 und von Sulfat aus der Gas- und Aerosolphase in Wolkentropfen sowie die kollisionsbedingte Aufnahme durch Regentropfen unterhalb der Wolken. Beide Prozesse sind vom stratiformen und konvektiven Wolkenbedeckungsgrad abhängig. Die zur Aerosolmasse proportionale Effizienz der Aufnahme von Aerosolen in Eis-, Wasser- und gemischten Wolken sowie die Auswascheffizienz von Regen und Schnee werden modeweise vorgeschrieben. Das Schema ist an die heterogene Nassphasen–Chemie gekoppelt (Kapitel 3.3.4), sodass beim Auswaschen von SO_2 dessen Lösungseigenschaften gemäß dem Henryschen Gesetz berücksichtigt werden. Eine detaillierte Beschreibung der Nassdepositions–Parametrisierungen findet sich in Stier et al. (2005).

Sedimentation

Neben der Verdunstung von Sulfataerosolen in der Stratopshäre ist Sedimentation der Partikel unter dem Einfluss der Gravitationskraft ein wichtiger Senkterm stratosphärischem Aerosols. Beide Prozesse sind sowohl Senkenterme der Aerosolmasse als auch der Partikelanzahl (letzterer im Fall von Verdunstung nur bei totaler Verdunstung aller Partikel). Die Sedimentationseigenschaften von Aerosolen spielen vor allem in Zusammenhang mit heterogenen Reaktionen an Partikeloberflächen und innerhalb von Partikeln eine wichtige Rolle und lassen sich darüber hinaus auf polare stratosphärische Wolken übertragen. Sedimentation von Partikeln wirkt in bestimmten Regionen der Stratosphäre dehydrierend bzw. denitrifizierend (u.a. Fahey et al., 1990; Tabazadeh et al., 2000).

Die Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikel hängt von ihren Reibungseigenschaften im Medium Luft ab und ist eine Funktion der Partikelgröße. Die Sedimentationsgeschwindigkeit stratosphärischer Aerosolpartikel ist um 1 bis 3 Größenordnungen höher als in bodennahen Schichten der Troposphäre, wobei sich die mit der Höhe z steigende mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle reibungsmindernd auf Partikel im Sub-Mikrometerbereich auswirkt (Kasten, 1968). Daher ist der Gradient der Sedimentationsgeschwindigkeit $\partial v_s / \partial z$ für Partikel im *Nucleation Mode* in etwa dreimal größer als bei *Coarse-Mode*-Partikeln. Letztere sinken jedoch mehrere Größenordnungen schneller als Partikel im Sub-Mikrometerbereich: Ein Sulfataerosolpartikel von 1 μm Radius fällt in etwa 200 Tagen aus einer Höhe von 20 km auf eine Höhe von 10 km, während ein 0.1 μm großes Partikel dafür etwa 10 Jahre benötigt (Hamill et al., 1977b; Li und Boer, 2000). Somit lässt sich unter numerischen Gesichtspunkten schlussfolgern, dass Partikelnuclei bzw. ultra-feine Partikel quasi in der Stratosphäre verbleiben bzw. nur durch vertikale Austauschprozesse der Atmosphärendynamik aus der Stratopshäre entfernt werden können.

SAM2 folgt der modularisierten Implementierung der Berechnung des Sedimentationsflusses von ECHAM5-HAM, modifiziert jedoch die Größenabhängigkeit der Partikel entsprechend der diskreten Partikelgrößenverteilung in SAM2. Die Berechnung der Sedimentationsgeschwindigkeit v_s ist identisch mit der von ECHAM4-SAM, siehe Timmreck (1997). Sie berechnet sich aus dem laminaren Reibungswiderstand sphärischer Partikel in Gasen gemäß dem Gesetz von Stokes, korrigiert um Nicht-Kontinuumseffekte nach Cunningham (Seinfeld und Pandis, 1998).

Die zeitliche Änderung der Partikelanzahl durch Sedimentation nach Gl. (3.2):

$$\frac{\partial n(r)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}(v_s(r, t) n(r, t)) \Big|_{\text{sedim}} \quad (4.2)$$

entwickelt sich analytisch zu (Tzivion et al., 1989):

$$n(r, z, t + \Delta t) = n(r, z - v_s(r)\Delta t, t) . \quad (4.3)$$

Die Linearisierung von Gl. (4.3) ergibt eine Formulierung für die vertikale Integration über alle Modellschichten für eine diskrete Partikelverteilung:

$$n_k^1|_z = n_k^0|_z - \frac{n_k^0 v_{s,k} \Delta t}{\Delta z} \Big|_z + \frac{n_k^0 v_{s,k} \Delta t}{\Delta z} \Big|_{z-1} , \quad (4.4)$$

wobei $v_{s,k}$ die Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikel einer Klasse k und Δz die Höhe der Modellschicht bezeichnet. Der erste Term der rechten Seite von Gl. (4.4) ist der Senkenterm für Partikel der

Sektion k in Modellschicht z , der zweite Term der rechten Seite ist der Quellterm in Schicht z von Partikeln, die aus der darüber liegenden Modellschicht $z - 1$ ausfallen.

Diese Formulierung der expliziten Zeitintegration erfordert die Einhaltung des CFL-Kriteriums, Gl. (3.16). Da sowohl die Höhe einer Modellschicht als auch der Zeitschritt fixierte Modellparameter sind, ist die Sedimentationsgeschwindigkeit v_s die im Modell limitierbare Größe:

$$v_s < \frac{\Delta z}{\Delta t} \quad \text{bzw.} \quad \Delta z > v_s \Delta t. \quad (4.5)$$

Da der Sedimentationsfluss von Partikeln in der Stratosphäre im wesentlichen von der Masse der Partikel bestimmt wird, kann die Anwendung von Gl. (4.5) in der Modellierung dieses Senkenterms unter entsprechend hohen Aerosolmassenmischungsverhältnissen zu einer unerwünschten Limitierung des modellierten Sedimentationsflusses führen. Der in der jeweiligen vertikalen Auflösung höchste in MAECHAM5-SAM2 zu erwartende Sedimentationsfluss lässt sich über eine Grenzwertabschätzung der Sedimentationsgeschwindigkeiten der Partikel vornehmen. Da in SAM2 das Aerosolmassenspektrum wie in SAM diskretisiert wird, lassen sich die von Timmreck (1997) für SAM hergeleiteten Zusammenhänge auch für SAM2 anwenden: Die Sedimentationsgeschwindigkeit der größten im Modell berücksichtigten Partikel mit einem Durchmesser von $\sim 5 \mu\text{m}$ entspräche in 50 km Höhe etwa 1 m s^{-1} . Erfolgt die Zeitintegration unter Anwendung des Standard-Zeitschritts des Mittelatmosphärenmodells MAECHAM5 von 900 Sekunden, ergibt sich anhand des Kriteriums von Gl. (4.5) eine stabile bzw. unlimitierte Lösung des Sedimentationsflusses Gl. (4.4) im gesamten Partikelgrößenbereich bei Schichtdicken $\Delta z > 900 \text{ m}$. In 20 - 30 km Höhe ist die Fallgeschwindigkeit der Aerosole zudem mindestens eine Größenordnung niedriger, entsprechend reduziert sich die über Gl. (4.5) geforderte Mindesthöhe stratosphärischer Modellschichten auf $\Delta z > 90 \text{ m}$.

4.3 Atmosphärenchemie

Neben Quellen und Senken von Vorläufergasen bestimmen chemische Prozesse der Gasphase maßgeblich die Verweildauer von Aerosolen in der Atmosphäre sowie deren hohe räumliche Variabilität. Die Vorläufergase selbst können einer hohen räumlichen und zeitlichen Variabilität unterliegen, sie können sich aber auch auf synoptischen Skalen nahezu homogen verteilen. Zur ersten Gruppe gehört Schwefeldioxid (SO_2), dessen Verweildauer in der Stratosphäre unter Hintergrundbedingungen etwa 30 Tage beträgt, in der Troposphäre dagegen in Abhängigkeit der Entfernung zu den Emissionsquellen sowie der Wolkenbedeckung schon nach wenigen Tagen oxidiert. Zur zweiten Gruppe gehört Carbonylsulfid (OCS), das Sulfataerosol-Vorläufergas mit der höchsten Konzentration in der unteren Stratosphäre, dessen Verweildauer ~ 600 Tage beträgt. Es wird photochemisch in Höhen zwischen 10 und 35 km abgebaut, nach dem heutigen Kenntnisstand (SPARC, 2006) sind die Umwandlungsraten allerdings eher gering. Es wird vielmehr davon ausgegangen, dass der größte Teil dieses Gases die Stratosphäre wieder verlässt und in der Troposphäre deponiert. Nach Andreae und Crutzen (1997) sind die Depositionsraten von OCS in etwa so hoch wie dessen Emissionsraten.

Eine möglichst realistische Modellierung der Verteilungen und der Interaktion von Aerosol-Vorläufergasen ist nicht allein für die modellierte zeitliche Entwicklung von Aerosolen von Bedeutung, sie bestimmt darüber hinaus maßgeblich die qualitative Einschätzung der modellierten Luftqualität. Ein vorläufiger Schritt in Richtung einer interaktiven Chemiemodul-Kopplung des Aerosol-Zirkulationsmodells MAECHAM5-SAM2 ist die Berücksichtigung der Atmosphärenchemie im

Modell unter Verzicht der zeitlichen Integration aller reaktiven Komponenten zugunsten von zeitlich konstanten und vorgeschriebenen Konzentrationen einzelner Substanzen. Eine derartige *Offline*-Chemiekopplung wird in dieser Arbeit vorgestellt. In der hier verwendeten Version des globalen Aerosol-Zirkulationsmodells MAECHAM5-SAM2 werden Chemiemodule der Troposphäre und der Stratosphäre an die physikalischen Parametrisierungen des Zirkulationsmodells gekoppelt, um die Bildung der äußerst kurzlebigen gasförmigen Schwefelsäure zu modellieren. In dieser Arbeit werden die Lösungseigenschaften von SO_2 in stratosphärischen Sulfatpartikeln nicht berücksichtigt, ebenso wie heterogene Reaktionen an Aerosoloberflächen.

4.3.1 Schwefelchemie der Troposphäre

Die troposphärische Schwefelchemie basiert auf dem Schwefelkreislaufmodell von Feichter et al. (1996). Dieses Schema umfasst Reaktionszyklen der homogenen Chemie in der Gasphase sowie die in Kapitel 3.3 behandelte heterogene Flüssigphasen-Chemie, die Bildung von (SO_4^{2-}) durch Oxidation von SO_2 in konvektiven und stratiformen Wolken. Prognostische Variablen des Schwefelkreislaufmodells sind DMS, SO_2 und gasförmige Schwefelsäure (H_2SO_4). Die Konzentrationen der Oxidanten OH, H_2O_2 , NO_2 und O_3 werden dreidimensional vorgeschrieben und basieren auf monatlich zonal gemittelten Daten einer Simulationen des CTM MOZART2 (Horowitz et al., 2003). In Anhang A, Abbildung A.1 werden die Oxidanten-Felder als zonale Jahresmittel der entsprechenden Volumenmischungsverhältnisse (VMR) dargestellt.

Die homogene Chemie der Gasphase unterscheidet zwei Reaktionswege: DMS und SO_2 oxidieren am Tag mit dem Hydroxyl-Radikal (OH) zu SO_2 bzw. anderen Sulfataerosol-Vorläufergasen, wobei im Schwefelkreislaufmodell nach Feichter et al. (1996) angenommen wird, dass die sehr kurze Lebensdauer der letztgenannten Komponenten zu einer augenblicklichen Umformung nach $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$ führt. DMS oxidiert in der Nacht mit NO_3 zu SO_2 , wobei sich die Konzentration des Radikals NO_3 über eine Gleichgewichtsannahme nach Feichter et al. (1996) aus den vorgeschriebenen Konzentrationen von NO_2 und O_3 ergibt.

Die Implementierung des Schemas basiert auf der von ECHAM5-HAM (Stier et al., 2005), sie ist jedoch vollständig von der Tropopause und den darüber befindlichen Modellschichten entkoppelt und vermeidet so eine Überlappung mit der im nächsten Abschnitt behandelten Schwefelchemie der Stratosphäre. Diese technische Maßnahme hat den positiven Nebeneffekt, keine artifizielle Nassphasenchemie in und oberhalb der Tropopause berücksichtigen zu wollen.

4.3.2 Schwefelchemie der Stratosphäre

ECHAM4-SAM wurde von Timmreck (2001) in der standardmäßigen vertikalen Auflösung von 10 hPa um ein Schema der stratosphärischen Schwefelchemie unter der Verwendung von monatlichen zonal gemittelten Oxidanten-Konzentrationen erweitert. MAECHAM5-SAM2 enthält eine neu implementierte Schwefelchemie der Stratosphäre, eine Offline-Adaption einer erweiterten Version des Chemietransportmodells CHEM (Steil, 1999; Steil et al., 2003). Dieses Schema umfasst homogene Gasphasenreaktionen der Sulfataerosolvorläufergase SO, SO_2 , SO_3 , HOSO_3 , H_2SO_4 und OCS sowie die Photolyse von SO_2 , SO_3 , H_2SO_4 , OCS und O_3 . Eine Zusammenfassung aller berücksichtigten Reaktionen findet sich in Tabelle 4.1.

Homogene Chemie der Stratosphäre			
Reaktion		Reaktionsrate	[cm ⁻³ s ⁻¹]
SO + O ₂	→	SO ₂ + O	$R_2 = 2.6 \cdot 10^{-13} e^{-2400/T}$
SO + O ₃	→	SO ₂ + O ₂	$R_8 = 2.6 \cdot 10^{-13} e^{-2400/T}$
SO + NO ₂	→	SO ₂ + NO	$R_1 = 1.4 \cdot 10^{-11}$
SO ₂ + O	→	SO ₃	$R_{10} = f(K_0), \quad K_0 = 1.3 \cdot 10^{-33} (T/300)^{-3.6}$
SO ₂ + O ₃	→	SO ₃ + O ₂	$R_9 = 3.0 \cdot 10^{-12} e^{-7000/T}$
SO ₂ + OH	→	HOSO ₂	$R_5 = f(K_0, K_\infty), \quad K_0 = 3.0 \cdot 10^{-31} (T/300)^{-3.3},$ $K_\infty = 1.5 \cdot 10^{-12}$
SO ₃ + H ₂ O	→	H ₂ SO ₄	$R_7 = 2.26 \cdot 10^{-43} \cdot T \cdot e^{6544/T} \cdot H_2O$
HOSO ₂ + O ₂	→	SO ₃ + HO ₂	$R_6 = 1.3 \cdot 10^{-12} e^{-330/T}$
OCS + O	→	SO + CO	$R_3 = 2.1 \cdot 10^{-11} e^{-2200/T}$
OCS + OH	→	(Produkte)	$R_4 = 1.1 \cdot 10^{-13} e^{-1200/T}$

Photolyse in der Stratosphäre			
Reaktion		Photonenwellenlänge	
OCS + <i>hν</i>	→	CO + S	$\lambda < 260 \text{ nm}$
H ₂ SO ₄ + <i>hν</i>	→	SO ₃ + H ₂ O	$\lambda < 222 \text{ nm}^1$
SO ₂ + <i>hν</i>	→	SO + O	$\lambda < 220 \text{ nm}$
SO ₃ + <i>hν</i>	→	SO ₂ + O	$\lambda < 220 \text{ nm}$
O ₃ + <i>hν</i>	→	O ₂ + O	$\lambda < 410 \text{ nm} \ \& \ \lambda < 850 \text{ nm}$

Tabelle 4.1: Reaktionsgleichungen und Reaktionsraten–Koeffizienten der stratosphärischen Schwefelchemie in MAECHAM5–SAM2. ¹ Vorläufig angepasst auf Basis der Photolyserate von SO₃.

Die Konstanten der Reaktionsraten in Tabelle 4.1 sind dem NASA–JPL–Report von 2003 entnommen (Sander et al., 2003). Als Endprodukt des OCS–Oxidationswegs OCS+OH wird gasförmige Schwefelsäure angenommen. Die prognostischen Variablen des Schemas sind SO₂ und H₂SO₄(g), wobei erstere nach dem in der Chemiemodellierung üblichen Familienkonzept (u.a. Jacobson, 2005) alle im Schema berücksichtigten gasförmigen Schwefel–Verbindungen außer H₂SO₄(g) und OCS zusammenfasst:

$$\text{SO}_2^{\text{prog}} = \text{SO}_x = \text{SO} + \text{SO}_2 + \text{SO}_3 + \text{HOSO}_2. \quad (4.6)$$

Entsprechende Teile der Schwefel–Nachtchemie von CHEM sind zur Zeit nicht implementiert. Wegen der äußerst geringen Konzentrationen von DMS in der Stratosphäre wird derzeit von der Berücksichtigung entsprechender Reaktionen der DMS–Oxidation in der Stratosphäre abgesehen.

Wie in der Vorgängerversion ECHAM4–SAM werden die Oxidanten OH, O₃ und NO₂ monatlich zonal gemittelt vorgeschrieben. Die Felder basieren auf Ergebnissen einer Mehrjahresintegration des Erdsystemmodells MESSy (Jöckel et al., 2005; Sander et al., 2005) in Version 0.9, Auflösung T31/L39. OCS kann derzeit mangels Emissionsinventar im Modell nicht als Emission behandelt werden, stattdessen werden monatlich zonal gemittelte Volumennischungsverhältnisse aus einer Simulation des interaktiv gekoppelten Aerosol–Chemie–Klimamodells MAECHAM4–CHEM–SAM vorgeschrieben.

Eine Analyse der Photolyseraten J^{hv} von H₂SO₄ und SO₃ des zweidimensionalen Chemiemodells Mainz 2D (Groß, 1996; Groß et al., 1998) zeigten, dass sich die qualitative Ausbildung beider Photolyseraten gleicht, wobei $J_{\text{H}_2\text{SO}_4}^{hv}$ in etwa eine Größenordnung kleiner ist als $J_{\text{SO}_3}^{hv}$. Der in dieser Arbeit verwendete

Datensatz der Photolyserate von H_2SO_4 wurde entsprechend diesen Erkenntnissen aus entsprechenden Daten von $J_{\text{SO}_3}^{hv}$ des Erdsystemmodells MESSy (Version 0.9) angepasst.

Die zonal und jährlich gemittelten meridionalen Verteilungen der Volumenmischungsverhältnisse der in der stratosphärischen Schwefelchemie verwendeten Oxidantenfelder werden in Anhang A, Abbildung A.2 dargestellt, die Photolyseraten in Abbildung A.3.

Dieses neu implementierte, auf dem CTM CHEM basierende Chemie-Schema ist technisch nicht an den troposphärischen Schwefelkreislauf nach Feichter et al. (1996) gekoppelt, sondern integriert sich konsistent und vollständig massenerhaltend in den aerosol-mikrophysikalischen Kern von SAM2. Die Erweiterung des Schemas um die Schwefel-Nachtchemie von CHEM ist zukünftigen Versionen des Modells vorbehalten, ebenso wie die Vereinheitlichung der Schwefelchemie-Schemen von Troposphäre und Stratosphäre.

Kapitel 5

Globale Modellierung des stratosphärischen Hintergrund–Aerosols

Stratosphärische Aerosole sind seit dem Nachweis der erdumspannenden Aerosolschicht oberhalb der Tropopause (Junge et al., 1961) in einer Reihe von Modellstudien untersucht worden (u.a. Turco et al., 1983; Timmreck, 1997; Liu und Penner, 2002). Die überwiegende Zahl der Arbeiten konzentrierte sich auf die Wiedergabe der direkten Klimafolgen starker explosiver Vulkanausbrüche (u.a. Stenchikov et al., 1998; Kirchner et al., 1999; Timmreck et al., 1999; Thomas, 2007), die u.a. große Mengen an Aerosolvorläufergasen in die Stratosphäre befördern und in relativ kurzer Zeit zu Sulfataerosolen konvertieren (u.a. McCormick et al., 1995). Die globale Verteilung der vulkanischen Belastung der Stratosphäre, die Beeinflussung der globalen Strahlungsbilanz durch Partikel vulkanischen Ursprungs, die damit verbundene Erwärmung der Stratosphäre und Abkühlung bodennaher Schichten sowie die Relaxation der stratosphärischen Aerosolschicht auf ein sogenanntes Hintergrundniveau standen im Mittelpunkt vieler dieser Arbeiten (u.a. zusammengefasst in Robock, 2000). Die Quantifizierung des Hintergrundniveaus der stratosphärischen Partikelhaushalts war lange Zeit geprägt von Unsicherheiten, die sich zum Teil durch gering auflösende Beobachtungen der globalen stratosphärischen Aerosolverteilung begründen und teilweise auch auf unzureichende Annahmen der tatsächlichen Verteilung der Partikel in ihrem Größenspektrum zurückzuführen sind (Pinnick et al., 1976; Hofmann und Rosen, 1981). Seit dem Abbau des vulkanischen Materials, das die Eruption des Mt. Pinatubo 1991 in der Stratosphäre hinterließ, befindet sich die stratosphärische Aerosolschicht nunmehr seit einer Dekade in einem relativ ungestörten Zustand, der im allgemeinen Konsens als stratosphärischer Hintergrundzustand angesehen wird (SPARC, 2006). Dennoch sind zahlreiche Fragen derzeit unvollständig beantwortet, diese betreffen vor allem den Ursprung der Partikel, aber auch die Transportmechanismen innerhalb der Stratosphäre und die physikalischen Senkenprozesse der Partikel (STE) sind Gegenstand der Diskussion (u.a. Hofmann, 1990; Hamill et al., 1997; Deshler et al., 2006).

Die größenaufgelöste globale Aerosolmodellierung hilft an dieser Stelle, zumindest Teilaspekte der weitreichenden chemischen und physikalischen Interaktionen stratosphärischer Partikel im Erdsystem zu untersuchen. In diesem Kapitel erfolgt die Validierung des überarbeiteten sektionalen Aerosolmodells SAM2 gekoppelt an das dreidimensionale Zirkulationsmodell der mittleren Atmosphäre MAECHAM5 unter stratosphärischen Hintergrundbedingungen der Post–Pinatubo–Periode. Die

modellierten Aerosolparameter der Stratosphäre werden Klimatologien physikalischer Aerosolkenngrößen gegenübergestellt, die aus SAGE-II-Aerosolextinktionsmessungen abgeleitet worden sind. Darüber hinaus erfolgt in diesem Kapitel ein Direktvergleich der modellierten Partikelanzahlkonzentrationen mit In-Situ-Beobachtungen. Eine Validierung unter Hintergrundbedingungen stellt insofern eine Herausforderung dar, als dass die zu untersuchenden Signalstärken sowohl in den modellierten Prozessen als auch in denen, die von der Sensorik detektiert werden müssen, deutlich geringer ausfallen als jene, die von Prozessen der vulkanisch belasteten Stratosphäre erwirkt werden (u.a. SPARC, 2006). Kleinste Verlagerungen in der Wiedergabe bzw. Abbildung einzelner Parameter führen u.U. zu weitreichenden Konsequenzen im Vergleich von Modell und Beobachtung. Die erhöhte Empfindlichkeit des Systems (Modell contra Beobachtung unter stratosphärischen Hintergrundbedingungen) offenbart aber auch eher Unzulänglichkeiten in dessen Teilsystemen, wie sie unter hohen Signalstärken möglicherweise nicht offensichtlich wären (dies betrifft u.a. die numerische Diffusion des Modells oder die Raten von Formation und Wachstum von Partikeln).

Dieses Kapitel einleitend erfolgt eine Übersicht der experimentellen Randbedingungen, gefolgt von der Untersuchung des Modells hinsichtlich Drift nach Assimilation einer auf Satellitenbeobachtungen basierenden initialen stratosphärischen Aerosolschicht. Anschließend wird auf modellierte Aerosolvorgläufergase eingegangen, gefolgt von der Vorstellung spezifischer Parameter der modellierten stratosphärischen Aerosolschicht. Abschließend erfolgt die bereits erwähnte Validierung gegenüber Satellitendaten und In-Situ-Messungen.

5.1 Randbedingungen des Experiments

Die Validierung des Aerosol-Zirkulationsmodells MAECHAM5-SAM2 erfolgt anhand einer 11 Jahre umfassenden Modellintegration, die auf einer sechsjährigen *Spin-Up*-Phase aufsetzt. Das Experiment verwendet als untere Randbedingung der Integration klimatologisch mittlere Meeresoberflächentemperaturen (SST) und Seeisskonzentrationen (SIC) des *Atmospheric Model Intercomparison Project 2* (AMIP2, <http://www-pcmdi.llnl.gov/projects/amip/AMIP2EXPDSN/BCS/amip2bcs.php>).

Die spektrale Auflösung prognostischer Variablen im dynamischen Kern von ECHAM5 erfolgt bis zur Wellenzahl 42 (T42), dies entspricht einer horizontalen Auflösung des Gausschen Gitterpunktraums von $2.81^\circ \times 2.81^\circ$. Vertikal lösen 39 terrainfolgende σ -Hybrid-Schichten (L39) die Atmosphäre bis 0.01 hPa in die Mesosphäre hinein auf, wobei die unteren 5 Schichten mit der 19 Schichten umfassenden troposphärischen Standardkonfiguration von ECHAM5 (Roeckner et al., 2003) übereinstimmen.

Die Emissionen von Primärpartikeln und deren Vorläufergasen basieren auf dem AEROCOM-Emissionsinventar, repräsentativ für das Jahr 2000 (siehe Kapitel 4.2.1). Die in Stier et al. (2005) gezeigte globale Verteilung der AEROCOM-Schwefelemissionen in ECHAM5-HAM und die in Kloster (2006) dargestellten globalen Verteilungen der saisonalen DMS-Meeresoberflächen-Konzentrationen sowie der modellierten DMS-Flüsse in die Atmosphäre unterscheiden sich zu denen dieser Arbeit quantitativ nur geringfügig aufgrund der hier reduzierten horizontalen Auflösung von T42 gegenüber T63 in ECHAM5-HAM und sollen daher an dieser Stelle nicht wiedergegeben werden.

Initialisierung stratosphärischer Aerosole

Dreidimensionale größen aufgelöste Aerosol-Zirkulationsmodelle benötigen eine vergleichsweise lange Einschwingzeit (*Spin-Up*) bis zum Erreichen eines quasi-stationären Gleichgewichtszustandes. In

vorangegangenen Untersuchungen an der 19 Schichten umfassenden 10-hPa-Version ECHAM5-SAM2 wurde festgestellt, dass modellierte stratosphärische Aerosole nach einer *Spin-Up*-Zeit von 10 Jahren noch einem deutlichen Drift in Richtung eines Gleichgewichtszustandes unterliegen. Dies deckt sich mit der in (Timmreck, 1997) für das Vorgängermodell ECHAM4-SAM empfohlenen *Spin-Up*-Zeit von mindestens 10 Jahren.

Um die Einschwingzeit des Modells auf ein Minimum zu reduzieren, wurde MAECHAM5-SAM2 um ein Modul zur dreidimensionalen größen aufgelösten Initialisierung von Aerosolpartikeln der Atmosphäre erweitert. Dieses Modul ist an den ECHAM5-Tracer-Initialisierungsmodus (`call_init_tracer.f90`) gekoppelt und erlaubt die Initialisierung einer globalen Aerosolverteilung entweder auf Basis einer eindimensionalen vertikalen Verteilung der Partikelanzahl oder auf Basis eines dreidimensionalen globalen Feldes der Massenmischungsverhältnisse jedes angeforderten Tracers. Während die erste Methode derzeit nur über eine ASCII-Schnittstelle verfügt, ist letztere an eine NetCDF-Schnittstelle gekoppelt und ermöglicht so die schnelle und einfache Assimilation von beobachteten Aerosolverteilungen, beispielsweise auf Basis von Satellitendatensätzen. Diese neue globale Initialisierungsmethode ist allgemeingültig für jede Art von ECHAM5-Tracer und verfügbar sowohl in der bis 10 hPa auflösenden Standardversion von ECHAM5 als auch in der Mittelatmosphärenversion. Zur Verifikation der assimilierten Tracerdaten wird zum entsprechenden Initialisierungszeitschritt (üblicherweise der ECHAM5-Initialisierungszeitschritt $t = 0$) ein zusätzlicher NetCDF-Ausgabestrom (`experimentname_bgms4.nc`) erzeugt, dessen Differenz zum assimilierten Initialisierungsdatensatz gegen Null tendieren sollte. Zusätzliche Diagnostik der vertikalen Verteilung bestimmter Aerosolparameter (Mischungsverhältnis, Größe, Anzahl) an einer frei definierbaren Station runden die Verifikation der assimilierten Daten ab und werden in den ECHAM5-Ausgabestrom geschrieben (ASCII).

Für die hier vorgestellten Experimente wurde eine Initialisierung der stratosphärischen Aerosolschicht auf Basis eines SAGE-II-Datensatzes der *University of Oxford* (PARTS, 2004) gewählt, welcher die Aerosolparameter Partikelanzahl, Oberflächen- und Volumendichte, den effektiven Radius sowie den Mode-Radius und die Standardabweichung der gefitteten Partikelgrößenspektren enthält. Eigenschaften dieses SAGE-II-Datensatzes werden in Kapitel 5.2.4 beschrieben. Das zur Tracerinitialisierung benötigte Massenmischungsverhältnis ist aus der zonal gemittelten SAGE-II-Volumendichte des Jahresmittels von 1998 abgeleitet worden. Die Transformation basiert auf einer unimodalen Partikelverteilung mit einem Mode-Radius und einer Standardabweichung nach Pinnick et al. (1976) unter den in SAM2 definierten Standard-Partikeleigenschaften (Sulfatdichte 1700 kg m^{-3} , prozentualer Sulfatmassenanteil 75 %). Das zur Transformation benötigte zonale Mittel der Luftdichte basiert auf den zonalen Mitteln von Temperatur und spezifischer Feuchte eines MAECHAM5-Experiments in T42/L39 von Thomas (2007).

Gleichgewichtszustand des Modells

Alle in der derzeitigen Modellversion diagnostizierten Aerosolparameter sowie die prognostisch behandelten Tracermassenmischungsverhältnisse wurden hinsichtlich der Einstellung eines Gleichgewichtszustandes bzw. einem möglichen Drift entgegen dem Gleichgewichtszustand in den Druckniveaus der freien Troposphäre ($\sim 340 \text{ hPa}$) bis in den Bereich der Stratosphäre, in dem Sulfataerosole vollständig verdunsten ($\sim 4 \text{ hPa}$), in den ersten 11 Jahren der Integration untersucht. Dieses Einschwingverhalten wird im Folgenden für die modellierten Aerosolgrößenparameter (Abbildung 5.1 a bis c), des Massenmischungsverhältnisses (Abbildung 5.1, d) sowie anhand der modeweise integrierten Partikelanzahl (Abbildung 5.2) exemplarisch für die zeitliche Entwicklung der Parameter in σ -Hybrid-Schicht 19 ($\sim 54 \text{ hPa}$) dargestellt.

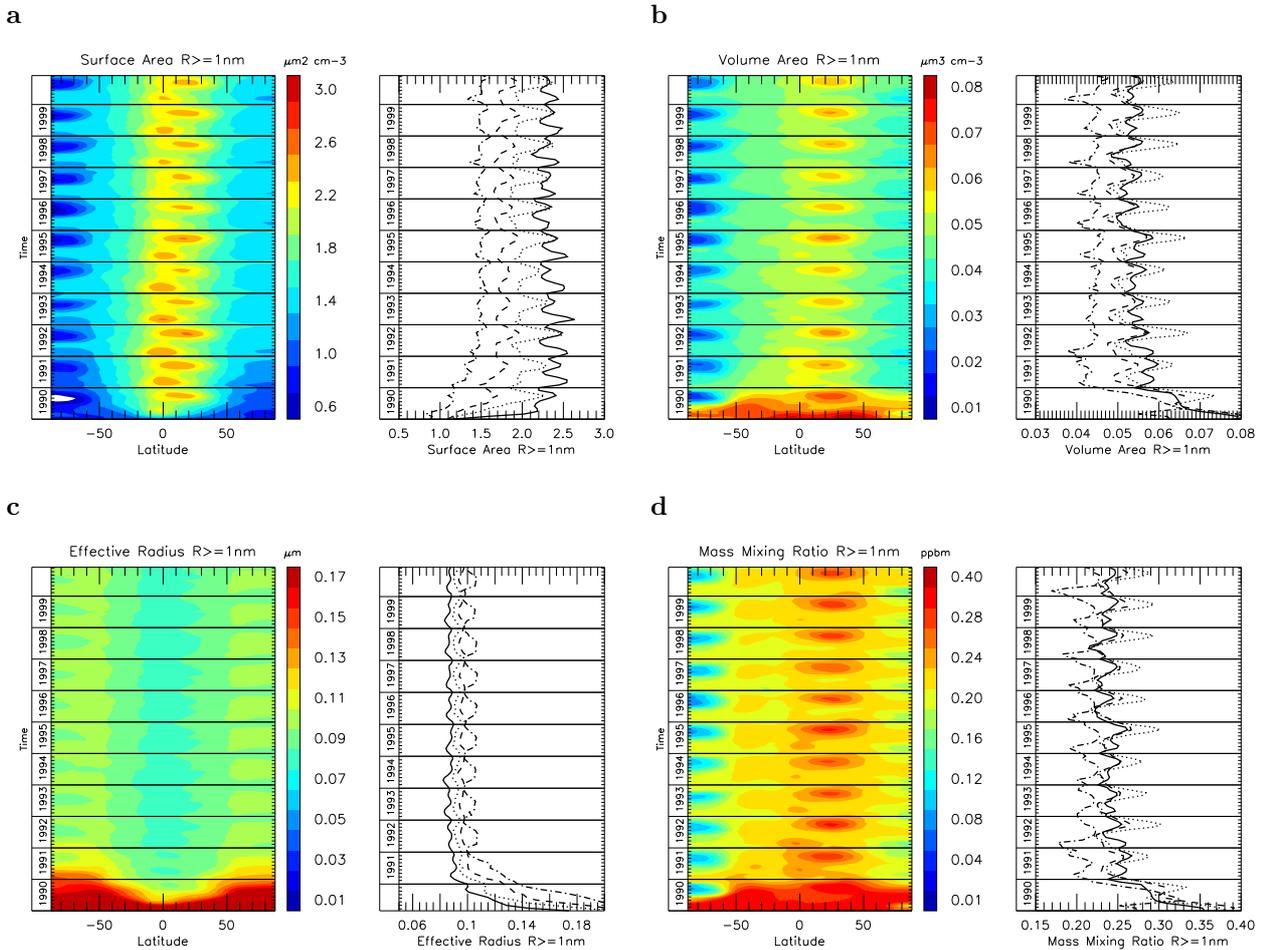


Abbildung 5.1: Einschwingverhalten von MAECHAM5–SAM2 in T42/L39 anhand der zeitlichen Entwicklung zentraler Monatsmittel (farbig) in Modellschicht 21 (~ 54 hPa) für die Aerosolgrößenparameter (a) Oberflächendichte, (b) Volumendichte um (c) effektiver Radius sowie (d) im Aerosolmassenmischungsverhältnis des Partikelgesamtspektrums. Die jeweils rechten Diagramme zeigen die entsprechenden Entwicklungen der Parameter an vier Breiten der nördlichen Hemisphäre: (durchgehende Linie) 1.4°N , (punktiert) 29.3°N , (gestrichelt) 43.2°N und (strich-punktiert) 76.7°N .

Es zeigt sich, dass sich in den Aerosolgrößenparametern, dem Aerosolmassenmischungsverhältnis (welches nachfolgend der Einfachheit halber auch als Aerosolkonzentration bezeichnet werden soll) sowie in den modeweise integrierten Partikelanzahlverteilungen des *Aitken* und *Accumulation Mode* Gleichgewichtszustände sowohl in den Tropen als auch den Extratropen innerhalb der ersten drei Jahre der Integration einstellen. Da die initialisierte Partikelanzahl in der *Nucleation Mode* auf Basis der unimodalen Lognormalverteilung nach Pinnick et al. (1976) gegen Null tendiert, weist die Anzahlverteilung in diesem Mode keinen nennenswerten Drift auf (Abbildung 5.2, a). *Coarse-Mode*-Partikel werden im derzeitigen Initialisierungsdatensatz derart überschätzt, dass die Partikelkonzentration dieses Modes um mehrere Größenordnungen driftet, zum Initialisierungszeitpunkt die stärkste Abweichung vom Gleichgewichtszustand aller diagnostizierten Aerosolparameter aufweist und erst nach fünf Jahren einen quasi-stationären Zustand erreicht.

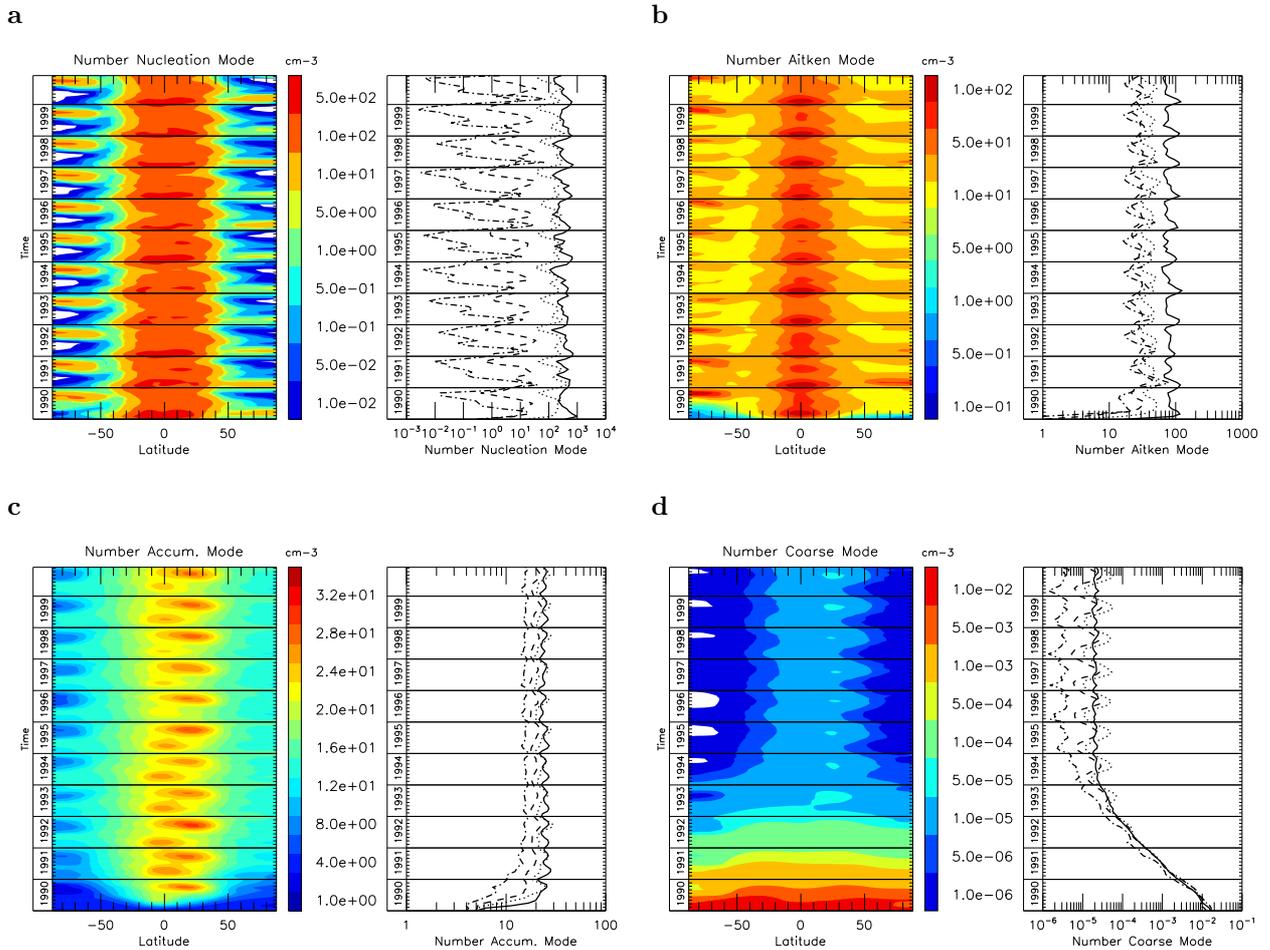


Abbildung 5.2: wie in Abbildung 5.1, aber hier anhand der modeweise integrierten Partikelanzahl.

Die entgegengesetzt gerichtete Drift der Größenparameter Oberflächendichte (Abbildung 5.1, a) und Volumendichte (Abbildung 5.1, b) muss interpretiert werden als Initialisierung eines Größenspektrums, das nicht dem Gleichgewichtszustand der implementierten aerosol-mikrophysikalischen Parametrisierungen entspricht. Wie später noch gezeigt werden wird, weisen die in SAM2 modellierten Partikelspektren eine klare Bi- bis Trimodalität auf. Der Gleichgewichtszustand des effektiven Radius als repräsentativer Parameter des modellierten Partikelgrößenspektrums stellt sich demzufolge ca. 50 % unterhalb der in verschiedenen Literaturstellen (u.a. Russell et al., 1996) genannten effektiven Radien ein (in Kapitel 5.2.5 wird auf diese Modellcharakteristik näher eingegangen).

Die in den Abbildungen 5.1 und 5.2 dargestellten Zusammenhänge sind repräsentativ für den gesamten zentralen Bereich der stratosphärischen Aerosolschicht oberhalb von 100 hPa. In tieferliegenden Schichten der Atmosphäre (nicht dargestellt) gelten die gleichen Schlussfolgerungen wie oben dargelegt, der effektive Radius weist z.B. in ~ 110 hPa eine klare Drift um den Faktor 2 bis 3 auf und die Partikelanzahl im *Coarse Mode* eine Drift in etwa um den Faktor 10.

5.2 Ergebnisse und Diskussion

In den folgenden Kapiteln werden die Ergebnisse des Experiments in der Standardkonfiguration von MAECHAM5 in einer vertikalen Auflösung von 39 Schichten unter klimatologisch mittleren Bedingungen vorgestellt. Einleitend werden die modellierten Konzentrationen der Sulfataerosolvorläufergase beschrieben, gefolgt von der Vorstellung der klimatologisch mittleren globalen Aerosolverteilung sowie deren charakteristischen vertikalen und meridionalen Verteilungen anhand zonaler Mittel. Danach erfolgt die Gegenüberstellung von modellierten Aerosolparametern und jenen, die in verschiedenen Klimatologien aus SAGE-II-Beobachtungen abgeleitet worden sind. Abschließend werden die modellierten Partikelanzahlspektren und die vertikale Verteilung der Aerosolgröße mit In-Situ-Messungen der nördlichen Hemisphäre verglichen. Auf die jahreszeitlich bedingte Variabilität der modellierten Gasphasen- und Aerosolparameter soll zunächst nicht gesondert eingegangen werden, diese werden ausführlich im nachfolgenden Kapitel behandelt, wenn die Variabilität stratosphärischer Aerosole unter Einbeziehung der quasi-zweijährigen Schwingung untersucht wird.

5.2.1 Sulfataerosol-Vorläufergase

Die modellierte globale Verteilung der prognostischen Sulfataerosol-Vorläufergase DMS, SO_2 und gasförmige Schwefelsäure wird in Abbildung 5.3 als vertikal integrierte Masse (*Column Burden*) dargestellt, die Daten basieren auf Jahresmitteln des 11. Jahres im Analysezeitraum des Experiments. Da in der derzeitigen Version von MAECHAM5-SAM2 troposphärische Aerosole und deren Vorläufergase wie in ECHAM5-HAM behandelt werden (Kapitel 4.3), darüber hinaus das hier vorgestellte Modell über die gleiche Emissionsbehandlung wie ECHAM5-HAM verfügt (Kapitel 4.2.1), sind die modellierten *Column Burden* von SO_2 und DMS sowohl qualitativ als auch quantitativ mit denen von ECHAM5-HAM vergleichbar (u.a. Kloster et al., 2006). Das *Column Burden* der gasförmigen Schwefelsäure zeigt ein auffälliges räumliches Minimum zentriert über den Industrienationen der nördlichen Hemisphäre, welches auf intensivierete Gasphasentransformationsprozesse (Nukleation, Kondensation) in diesen Regionen hindeutet.

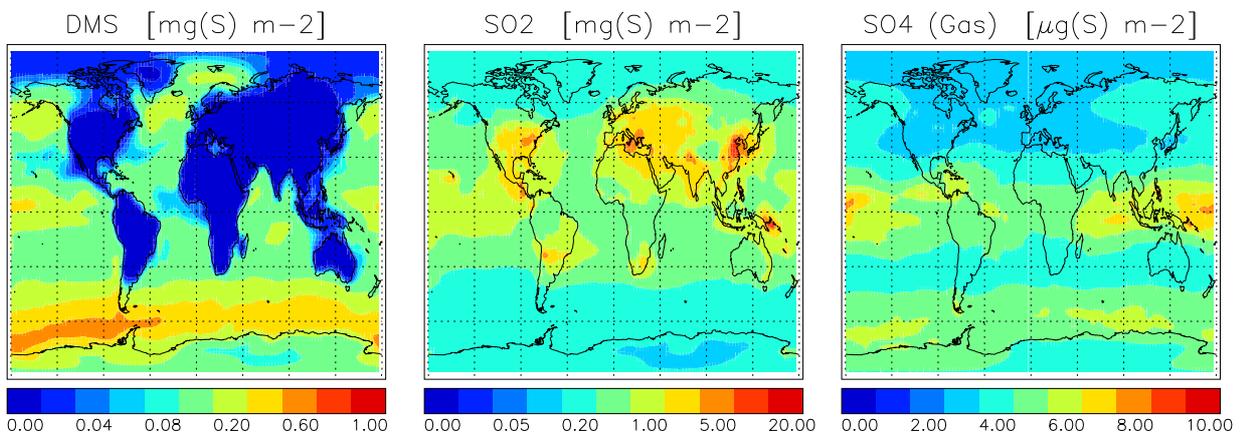


Abbildung 5.3: Jahresmittel der vertikal integrierten Masse der prognostischen Sulfataerosol-Vorläufergase: (a) DMS, (b) SO_2 und (c) gasförmige Schwefelsäure. Hier exemplarisch für das Jahr 11.

In Abbildung 5.4 sind die entsprechende zonalen Mittel der Konzentrationen prognostischer Sulfataerosol-Vorläufergase dargestellt, ergänzt um das derzeit auf Basis von Monatsmitteln vorgeschriebene zonale Mittel der OCS-Konzentration. Die zu dieser Abbildung korrespondierenden überlagerten vertikalen Verteilungen der Gase werden in Abbildung 5.5 für unterschiedliche Breiten der Nordhemisphäre gezeigt.

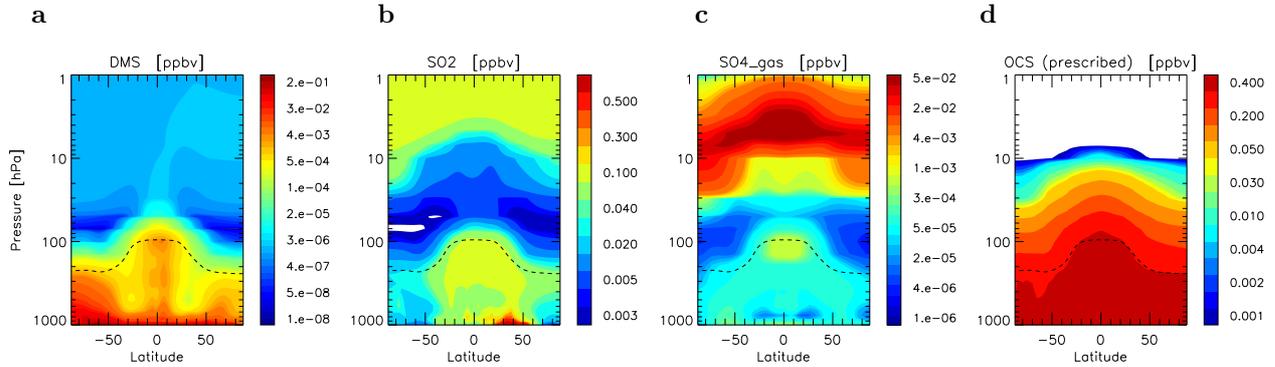


Abbildung 5.4: Meridionale Verteilungen der Konzentrationen modellierter Sulfataerosol-Vorläufergase anhand zentraler Mittel sowie gemittelt über den 11-jährigen Integrationszyklus: (a) Dimethylsulfid, (b) Schwefeldioxid, (c) gasförmige Schwefelsäure und (d) Carbonylsulfid. Während (a) bis (c) prognostisch behandelt werden, wird (d) auf Basis monatlich gemittelter Felder vorgeschrieben.

Die oberhalb von 20 hPa rasch ansteigende SO_2 -Konzentration liefert verglichen mit Kloster et al. (2006) einen nur geringen Beitrag zur globalen SO_2 -Masse (Abbildung 5.3). Die SO_2 -Oxidation mit OH führt zur Ausbildung einer ausgeprägten latitudinalen Bandstruktur, welche gekennzeichnet ist durch steile Gradienten oberhalb der Tropopause und dem SO_2 -Minimum in der unteren Stratosphäre in ca. 18 km Höhe. Während ECHAM4-SAM (Timmreck, 2001) ein SO_2 -Minimum am Äquator in ca. 15 km Höhe modelliert, sind für MAECHAM5-SAM2 ausgeprägte Minima in den modellierten SO_2 -Konzentrationen der mittleren bis hohen Breiten der unteren Stratosphäre charakteristisch, wobei die Minima in beiden Modellen 3 bis 5 pptv betragen. Das ebenfalls an ein GCM gekoppelte sektionale Aerosolmodell der mittleren Atmosphäre ULAQ (*University of L'Aquila*) von Pitari et al. (2002) weist eine ähnliche Charakteristik in der meridionalen Verteilung von SO_2 auf. Das latitudinale Band des SO_2 -Minimums verläuft in ULAQ in ca. 20 km Höhe, zudem weist ULAQ ein ausgeprägtes äquatoriales Maximum in der SO_2 -Konzentration in ca. 30 km Höhe innerhalb von $\pm 30^\circ$ auf. Dieses wird zwar von MAECHAM5-SAM2 reproduziert, fällt aber deutlich geringer aus als in ULAQ, dem zweidimensionalen Modell AER (Weisenstein et al., 1997), ECHAM4-SAM und anderen in SPARC (2006) veröffentlichten Modellen, wie aus Abbildung 5.6 hervor geht.

Die vertikale Verteilung der gasförmigen Schwefelsäure, Abbildung 5.4 (c), ist von einem sich oberhalb von 30 hPa ausbildenden Reservoir gekennzeichnet. Dieses hat seinen Ursprung zum einen in der Verdunstung von Sulfataerosolpartikeln, welche hauptsächlich oberhalb von 30 hPa stattfindet, zum anderen in der Oxidation von SO_3 (Reiner und Arnold, 1993). Dieses sich ausbildende stratosphärische H_2SO_4 -Reservoir kann oberhalb der Aerosolschicht nicht durch Photolyse abgebaut werden (Schlager und Arnold, 1987; Turco et al., 1979a).

Veröffentlichte Messungen der stratosphärischen Konzentration gasförmiger Schwefelsäure liegen nur in einer äußerst limitierten Zahl vor, überwiegend sind H_2SO_4 -Gasphasenkonzentrationen in bodennahen Instrumentierungen im Rahmen der Detektion von Partikelformationsereignissen gemessen worden (u.a. Birmili et al., 2000). Einige wenige Messungen existieren in der freien Troposphäre (eine Zusammenfassung findet sich in Liu et al., 2005). Die von Möhler und Arnold (1992) im Februar 1987 in

Nordskandinavien in Tropopausenhöhe (± 4 km) gemessenen H_2SO_4 -Gasphasenkonzentrationen weisen ein Maximum von $4 \cdot 10^{-5}$ ppbv im Bereich der polaren Tropopause auf. Oberhalb und unterhalb der Tropopause fallen die Konzentrationen graduell innerhalb von 2 km auf ca. $1 \cdot 10^{-5}$ ppbv ab. Entsprechende MAECHAM5-SAM2-Konzentrationen bei 71°N liegen im klimatologischen zonalen Mittel weniger als eine Größenordnung darüber (Abbildung 5.5). ECHAM4-SAM kann das Tropopausenmaximum und entsprechende Gradienten in der UT/LS nicht reproduzieren (Timmreck, 2001).

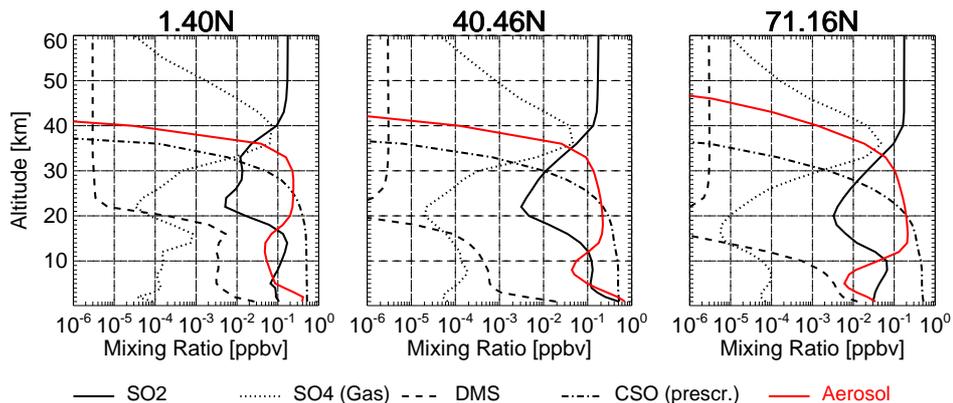


Abbildung 5.5: Vertikalprofile der Mischungsverhältnisse aller modellierten Schwefelkomponenten inklusive des Aerosols sowie des vorgeschriebenen OCS für drei ausgewählten Breiten der nördlichen Hemisphäre. Die Daten sind zonal gemittelt sowie gemittelt über den gesamten Analysezeitraum von 11 Jahren.

Messungen von Arnold und Fabian (1980) Anfang November 1977 über dem Südwesten Frankreichs in 36.5 km weisen ein $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$ -Mischungsverhältnis von $1.7 \cdot 10^{-3}$ ppbv (1.7 pptv) aus, Messungen in etwa gleicher geografischer Lage Mitte Oktober 1982 von Arnold (1984) in ~ 41 km zeigen $5.9 \cdot 10^{-2}$ ppbv. Die hier vorgestellten zonalen klimatologischen Mittel der H_2SO_4 -Gasphasenkonzentrationen von MAECHAM5-SAM2 befinden sich auch gegenüber diesen Daten in guter Übereinstimmung.

MAECHAM5-SAM2 weist gegenüber einem der ersten Modelle, das stratosphärische Aerosole unter Einbeziehung mikropysikalischer Prozesse an größen aufgelösten Sulfataerosolen und der Schwefelchemie der Atmosphäre umfassend beschrieb, das eindimensionale Modell des *NASA Ames Research Centers* (Turco et al., 1979a,b; Toon et al., 1979), sehr ähnliche vertikale Verteilungen von SO_2 , $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$ und OCS auf (Abbildung 5.5). Ergebnisse des dreidimensionalen stratosphärischen Aerosolmodells mit interaktiver Photochemie von Takigawa et al. (2002) unter stratosphärischen Hintergrundbedingungen zeigen eine bis 0.02 ppbv oberhalb von 30 km ansteigende $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$ -Konzentration, die in MAECHAM5-SAM2 etwa 50 % höher ausfällt (Abbildung 5.5). Ebenfalls 0.02 ppbv modelliert das zweidimensionale Modell AER (Weisenstein et al., 1997), wobei AER gegenüber MAECHAM5-SAM2 einen ähnlich starken Gradienten in der vertikalen $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$ -Konzentration oberhalb von 20 km aufweist.

Abbildung 5.4 (a) zeigt die modellierte Vertikalverteilung von DMS. Obwohl sich im Bereich der tropischen Konvergenzzone ein ausgeprägter DMS-Vertikaltransport bis in die untere Stratosphäre zeigt, spielt DMS in der Komposition der Schwefelgase oberhalb der Tropopause eine untergeordnete Rolle (SPARC, 2006), wie auch aus den Vertikalprofilen in Abbildung 5.5 ersichtlich ist. Qualitativ ähnliche troposphärische Vertikalverteilungen von DMS weisen Ergebnisse von Liu et al. (2005) unter Anwendung des Aerosolmodells UMaer gekoppelt an das CTM IMPACT auf. Die modellierten DMS-Konzentrationen im Bereich der Hadley-Zelle mit 10 bis 50 pptv stimmt in beiden Modellen gut überein.

Da OCS derzeit nicht prognostisch behandelt werden kann, soll nur kurz auf dessen charakteristische Verteilung in der Atmosphäre eingegangen werden. Wie die Abbildungen 5.4 (d) und 5.5 zeigen, weist OCS das höchste Mischungsverhältnis unter den Schwefelgasen der Atmosphäre auf (für eine Zusammenfassung hierzu siehe SPARC, 2006). Die in der Troposphäre relativ homogene Konzentration von 0.5 ppbv stimmt sehr gut mit verfügbaren Messungen und anderen Modellen überein, ebenso wie die durch Photolyse und Oxidation mit freien Radikalen der Atmosphäre oberhalb von 20 km Höhe hervorgerufene Reduktion der stratosphärischen OCS-Konzentration.

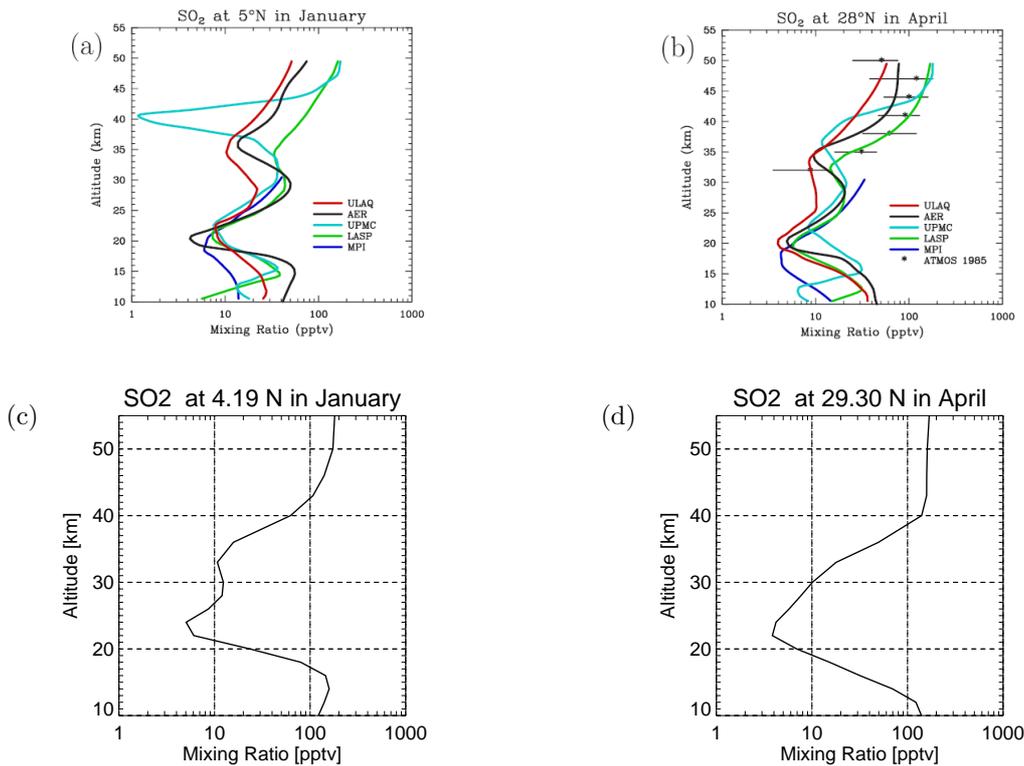


Abbildung 5.6: Vergleich der vertikalen Verteilung von SO_2 in den Tropen und mittleren Breiten: (a) und (b) Vergleich verschiedener Modelle, u.a. ECHAM4-SAM, aus SPARC (2006), (c) und (d) zonale Monatsmittel der elfjährigen Klimatologie MAECHAM5-SAM2. (b) bezieht die von Rinsland et al. (1995) veröffentlichten SO_2 -Messungen der NASA-Kampagne ATMOS von 1985 ein.

Der Vollständigkeit halber sei an dieser Stelle erwähnt, dass die in den hier vorgestellten Modellläufen verwendeten Eingabefelder der chemischen Oxidanten sowie die der Photolyseraten in Anhang A, in den Abbildungen A.1 bis A.3 anhand der meridionalen Verteilungen der zonalen Jahresmittel dargestellt sind.

5.2.2 Die globale stratosphärische Aerosolverteilung

Budget und Verweildauer

Die globale Bilanzierung der modellierten Quellen- und Senkenprozesse stratosphärischer Aerosole unter Einbeziehung der chemischen und mikrophysikalischen Transformationswege erlaubt die Validierung spezifischer Kenngrößen der Aerosoldynamik, deren unmittelbare messtechnische Erfassungen derzeit nicht oder nur teilweise möglich sind. Die in Abbildung 5.7 dargestellten global integrierten Emissions-,

Depositions- und Transformationsflüsse basieren auf Jahresmitteln des elften Jahres des Analysezeitraums dieses Experiments. Aufgrund der technisch bedingten Gemeinsamkeiten in der Behandlung der atmosphärischen Schwefelkomponenten in den ECHAM5-Aerosolmodulen HAM und SAM2 befinden sich sowohl die hier modellierten Emissionsflüsse als auch die chemischen und mikrophysikalischen Konversionsraten in guter Übereinstimmung.

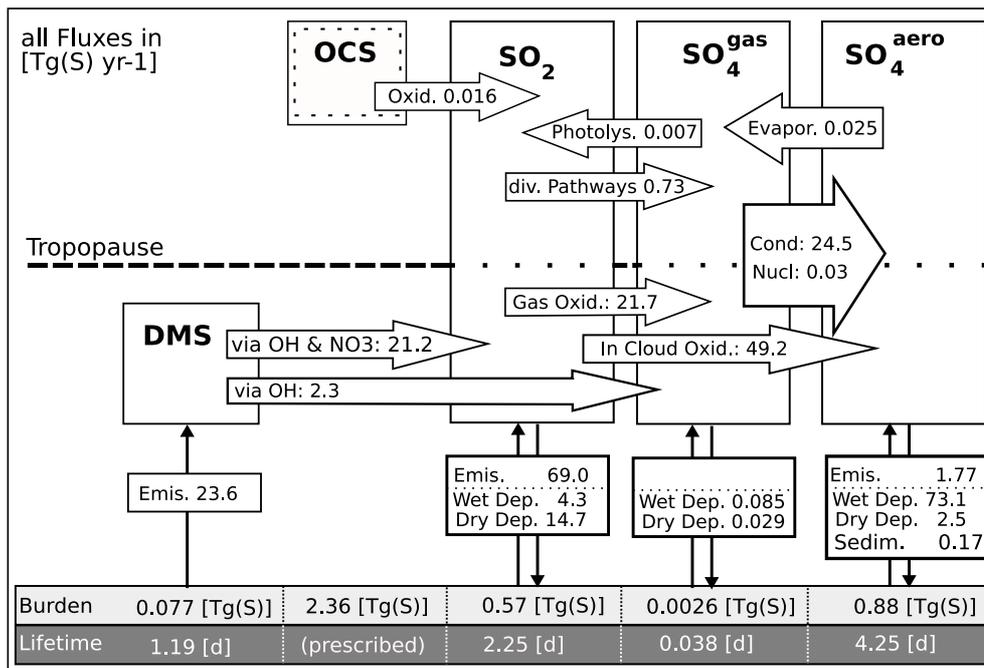


Abbildung 5.7: Globale Bilanzierung der in MAECHAM5-SAM2 diagnostizierten Umwandlungsraten [Tg(S) Jahr-1] schwefelhaltiger Komponenten, der berücksichtigten Emissions- und Depositionsflüsse [Tg(S) Jahr-1], der vertikal integrierten Massen [Tg(S)] und der resultierenden Verteildauer [Tage] prognostischer Schwefelkomponenten in der Atmosphäre, jeweils auf Basis der Jahresmittel des elften Jahres im analysierten Zeitraum.

Das globale *Column Burden* von Sulfataerosol fällt mit 0.88 Tg(S) in MAECHAM5-SAM2 etwa 17 [10] % höher aus als das von Kloster et al. (2006) [Stier et al. (2005)] veröffentlichte Sulfataerosolburden in ECHAM5-HAM. Die entsprechende globale und gesamtatmosphärische Lebenszeit von Sulfataerosol, also das Verhältnis des *Column Burden* zu den Gesamtemissionen, ist dementsprechend in MAECHAM5-SAM2 mit 4.25 Tage um 20 [10] % höher als in Kloster et al. (2006) [Stier et al. (2005)]. Beide Parameter liegen im Rahmen veröffentlichter entsprechender Daten anderer globaler Aerosolmodelle, deren Fokus jedoch auf die Modellierung troposphärischer Aerosole ausgerichtet ist (teilweise Mehrkomponenten-Aerosolmodelle). Beispielsweise liefern Feichter et al. (1996) für Burden und Verweildauer 0.57 Tg(S) / 4.3 Tage, Barth et al. (2000) 0.57 Tg(S) / 3.8 Tage, Easter et al. (2004) 1.07 Tg(S) / 6.8 Tage und Liu et al. (2005) 0.89 Tg(S) / 2.6 Tage.

Vergleichbare Werte von an Mittelatmosphären-GCMs gekoppelten Aerosolmodellen liegen derzeit nur von Takigawa et al. (2002) (CCSR/NIES Aerosol-GCM) vor, welche für das gesamtatmosphärische Burden 0.36 Tg(S) diagnostizieren, 0.149 Tg(S) davon in der Stratosphäre. MAECHAM5-SAM2 liefert, korrespondierend zu Abbildung 5.7, ein mit Takigawa et al. (2002) übereinstimmendes stratosphärisches Sulfataerosolburden von 0.1468 Tg(S) (146.8 kT(S)). Dies sind 17 % des gesamtatmosphärischen

Sulfataerosolburdens von 0.88 Tg(S). Die große Diskrepanz im troposphärischen Burden des CCSR/NIES-Modells gegenüber anderen Aerosol-GCMs erklärt sich durch Defizite in der Emissionsbehandlung und einer vernachlässigten Flüssigphasenchemie in CCSR/NIES. Zahlreiche Studien (u.a. Chin et al., 1996) haben gezeigt, dass die troposphärische Flüssigphasenoxidation von SO₂ zu mindestens zwei Dritteln zur Gesamtquellstärke des troposphärischen Sulfats beiträgt. Pitari et al. (2002) (Modell ULAQ) modellieren die gesamtstratosphärische Schwefelmasse mit 0.151 Tg(S). Vergleichbare Werte des stratosphärischen Aerosolburdens finden sich in SPARC (2006) für das zweidimensionale stratosphärische Aerosolmodell AER, welches wie SAM2 das Partikelmassenspektrum stratosphärischer Sulfataerosole anhand der sektionalen Methode prognostiziert (40 Bins, Weisenstein et al., 1997). AER weist mit 187.2 kT(S) ein um 28 % höheres stratosphärisches Burden als MAECHAM5-SAM2 auf. In Abhängigkeit der in AER spezifizierten troposphärischen Parametrisierungen variiert das modellierte stratosphärische Sulfataerosolburden zwischen 145 und 221 kT(S). Wird beispielsweise auf die explizite Parametrisierung des Tropopausenaustausches von Primäraerosolen in AER verzichtet, liegt das stratosphärische Aerosolburden dieses Modells mit 145 kT(S) sehr nah an dem von MAECHAM5-SAM2.

An dieser Stelle sei auf das von Pitari et al. (2002) aus SAGEII-Extinktionsdaten von Kent und McCormick (1984) abgeleitete stratosphärische Schwefelburden von 0.156 Tg(S) verwiesen, das repräsentativ für den stratosphärischen Hintergrundzustand von 1979 ist. Der zur Initialisierung der stratosphärischen Aerosolschicht in den hier vorgestellten Experimenten verwendete SAGEII-Datensatz der *University of Oxford* weist nach Transformation der *Retrieval*-Volumendichte in das Aerosolmassenmischungsverhältnis auf Basis der in Kapitel 5.1 genannten Bedingungen ein globales stratosphärisches Schwefelburden von 0.0745 Tg(S) (74.5 kT(S)) auf. Dies sind ca. 50 % der letztlich von MAECHAM5-SAM2 modellierten Masse der stratosphärischen Aerosolschicht, ebenfalls etwa die Hälfte gegenüber Pitari et al. (2002) und somit ein weiterer Indikator für eine Initialisierung des hier vorgestellten Modells abseits seines Gleichgewichtszustandes.

Trocken- und Nassdeposition von Sulfataerosol weichen von Kloster et al. (2006) um ~ 1 % ab. Der Sedimentationsfluss in ECHAM5-HAM von Kloster et al. (2006) ist um 110 % höher als in MAECHAM5-SAM2. Die Ursache für weitaus höhere Sedimentationsflüsse in HAM begründet sich mit dem modalen Ansatz dieses Modells. Der Sedimentationsfluss wird dort für zwei quasi-diskrete Bänder auf Basis der prognostisch behandelten Mode-Radien berechnet, und zwar ausschließlich für die beiden höchsten Moden (*Nucleation-Mode*- und *Aitken-Mode*-Partikel werden der Einfachheit halber in HAM von der Sedimentation ausgeschlossen).

Gasförmige Schwefelsäure ist ein sehr kurzlebiger Spurenstoff der Atmosphäre. MAECHAM5-SAM2 modelliert hier eine gesamtatmosphärische Verweildauer von 0.038 Tagen, Stier et al. (2005) und Kloster et al. (2006) jeweils 0.01 Tage. Derzeit können die Transferraten von Kondensation und Nukleation nur gesamtatmosphärisch diagnostiziert werden: 98 % der gasförmigen Schwefelsäure kondensiert, nur 0.1 % trägt zur Partikelformation bei, der Rest deponiert. Der in ECHAM5-HAM um den Faktor 3.6 höhere Nukleationsfluss (Stier et al., 2005) dürfte größtenteils technische Ursachen haben: In der Standardversion von HAM werden generell 5 % der H₂SO₄-Gasphasenkonzentration für mögliche Partikelformationsprozesse reserviert. Ein entsprechender Parameter (**fmax**) ist in SAM2 zwar definiert, wurde in den hier vorliegenden Studien jedoch nicht gesetzt. D.h. SAM2 reserviert keinen Anteil der H₂SO₄-Gasphasenkonzentration für simultan zur Kondensation stattfindende Nukleation.

Die Photolyse von gasförmiger Schwefelsäure in der Stratosphäre liegt mit 0.007 Tg(S) a⁻¹ etwa 50 % über der des zweidimensionalen stratosphärischen Aerosolmodells AER (SPARC, 2006). Photolyse von H₂SO₄(g) ist verglichen mit den Oxidationsflüssen von SO₂ demnach ein eher unbedeutender Prozess, wodurch sich auch das im vorangegangenen Kapitel diskutierte modellierte Reservoir gasförmiger Schwefelsäure oberhalb von 20 hPa erklärt. 0.025 Tg(S) a⁻¹ gasförmiger Schwefelsäure entstehen durch

Verdunstung von Sulfataerosolen, der Verdunstungsfluss in AER ist mit $0.0043 \text{ Tg(S) a}^{-1}$ mehr als eine Größenordnung kleiner.

Die Gesamtemission von SO_2 inklusive des oxidiertem DMS mit $90.2 \text{ Tg(S) a}^{-1}$ liegt in dieser Studie lediglich 2 % unter der von ECHAM5-HAM (Stier et al., 2005). Die gesamtatmosphärische Lebenszeit von SO_2 beträgt 2.25 Tage gegenüber 2.7 Tagen in (Stier et al., 2005) und 2.4 Tagen in Kloster et al. (2006). Die Abweichungen von SO_2 Trocken- und Nassdeposition gegenüber Stier et al. (2005) betragen 10 bzw. 1 %. Die Abweichung in der troposphärischen Gasphasenoxidation von SO_2 ist mit 20 % gegenüber Kloster et al. (2006) relativ hoch, obwohl beide Modelle hier auf dem Schwefelkreislauf von Feichter et al. (1996) basieren und die gleichen auf MOZART2 basierenden vorgeschriebenen Oxidanten-Konzentrationen verwenden. Die Flüssigphasenoxidation zu Sulfat kann diese Abweichung nicht kompensieren, obwohl sie in dieser Studie 6 % höher ausfällt als in Kloster et al. (2006). Die Flüssigphasenoxidation trägt in MAECHAM5-SAM2 zu 65 % zur Gesamt-Sulfatquelle bei. Vergleichbare Studien zeigen hier eine vergleichsweise hohe Spanne, die von 56 % in Liu et al. (2005) bis zu 90 % in Pham et al. (1995) reicht. Die Oxidation von SO_2 zu $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$ in der Stratosphäre liegt mit $0.73 \text{ Tg(S) a}^{-1}$ eine Größenordnung über der von AER ($0.069 \text{ Tg(S) a}^{-1}$, SPARC, 2006).

Die DMS-Emissionen weisen weniger als 1 % Unterschied zu denen von (Stier et al., 2005) auf, die Abweichung zu Kloster et al. (2006) beträgt 14 %.

Die in MAECHAM5-SAM2 implementierte Schwefelchemie der Stratosphäre modelliert einen Oxidationsfluss des vorgeschriebenen OCS zu SO_2 von $0.016 \text{ Tg(S) a}^{-1}$, dies liegt 50 % unter dem in SPARC (2006) veröffentlichten Wert von $0.032 \text{ Tg(S) a}^{-1}$ des Modells AER. Weisenstein et al. (1997) geben hier $0.049 \text{ Tg(S) a}^{-1}$ an, Takigawa et al. (2002) modellieren $0.036 \text{ Tg(S) a}^{-1}$.

Die globale Aerosolmassenverteilung

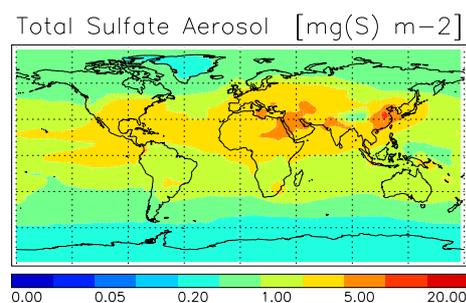


Abbildung 5.8: Jahresmittel der globalen Verteilung der vertikal integrierten Sulfataerosol-Gesamtmasse. Hier exemplarisch für das Jahr 11 des Analysezeitraums.

Abbildung 5.8 zeigt die vertikal integrierte Schwefelmasse des modellierten Sulfataerosols, hier korrespondierend zu Abbildung 5.7 exemplarisch für das elfte Jahr des Analysezeitraums. Qualitativ und quantitativ in Übereinstimmung mit ECHAM5-HAM (Stier et al., 2005) befinden sich die Maxima des hier modellierten Sulfataerosolburdens in den Regionen der anthropogenen Hauptemissionsgebiete von Schwefel in den Industrieregionen der nördlichen Hemisphäre. Wie in ECHAM5-HAM verteilen sich Sulfataerosole in der Atmosphäre bis in die von den Hauptemissionen entfernt gelegenen Gebiete Nordafrikas, des nördlichen Atlantiks und des östlichen Pazifiks. Die bodennahe Sulfatkonzentration ist in Stier et al. (2005) gegenüber Beobachtungen (EMEP, IMPROVE u.a.) validiert worden, aufgrund der hier und

in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen Vergleiche des von MAECHAM5–SAM2 modellierten troposphärischen Sulfats mit ECHAM5–HAM kann geschlussfolgert werden, dass sich die Eigenschaften beider Modelle auch hinsichtlich der modellierten bodennahen Sulfatkonzentration in guter Übereinstimmung befinden.

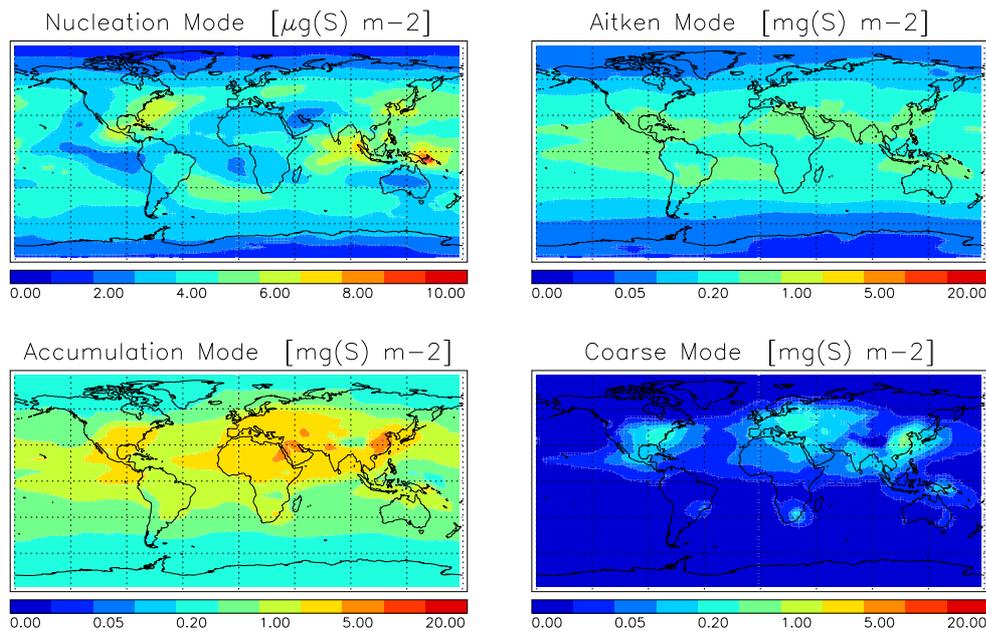


Abbildung 5.9: wie 5.8, aber hier integriert für die jeweiligen Moden des Partikelmassenspektrums.

Abbildung 5.9 erweitert das in Abbildung 5.8 dargestellte Gesamtsulfataerosolburden um die Anteile jedes Moden im Partikelmassenspektrum. Es wird von *Accumulation-Mode*-Partikeln dominiert, *Coarse-Mode*-Partikel tragen nur in der nördlichen Hemisphäre zum Gesamtsulfataerosolburden bei. Das *Column Burden* des *Aitken Mode* liegt eine Größenordnung unter der des *Accumulation Mode*. Obwohl *Nucleation-Mode*-Partikel so gut wie nicht zur Gesamtmasse beitragen, offenbart Abbildung 5.9 die Regionen der Partikelentstehung in der Atmosphäre durch Nukleation, die sich hauptsächlich in den Abwindfahnen der Hauptemissionsgebiete von anthropogenem SO_2 befinden (vergleiche hierzu das SO_2 -Burden in Abbildung 5.3).

In Abbildung 5.10 ist das stratosphärische Sulfataerosolburden für jeden Mode des Spektrums dargestellt. Die Gesamtmasse der Partikel im *Nucleation Mode* überwiegt der Gesamtmasse aller *Coarse-Mode*-Partikel, wobei letztere fast ausnahmslos in der Nordhemisphäre der Stratosphäre präsent sind. Die Spektren der *Column Burden* beider Parameter umfassen drei Größenordnungen, wohingegen die Massen im *Aitken Mode* und *Accumulation Mode* einen vergleichsweise schmalbandigen Charakter aufweisen. Generell dominiert die Aerosolmasse der NH im *Column Burden* der Stratosphäre.

Die stratosphärischen *Column Burden* in Abbildung 5.10 zeigen die stratosphärische Aerosolmasse in Abhängigkeit der dynamischen Tropopausenhöhe des Modells. Sie ist somit nicht mit der isentropischen Darstellung der vertikal integrierten optischen Aerosolparameter und der in der Literatur viel zitierten Bänderstruktur in der horizontalen Verteilung stratosphärischen Aerosols von Trepte et al. (1994) vergleichbar.

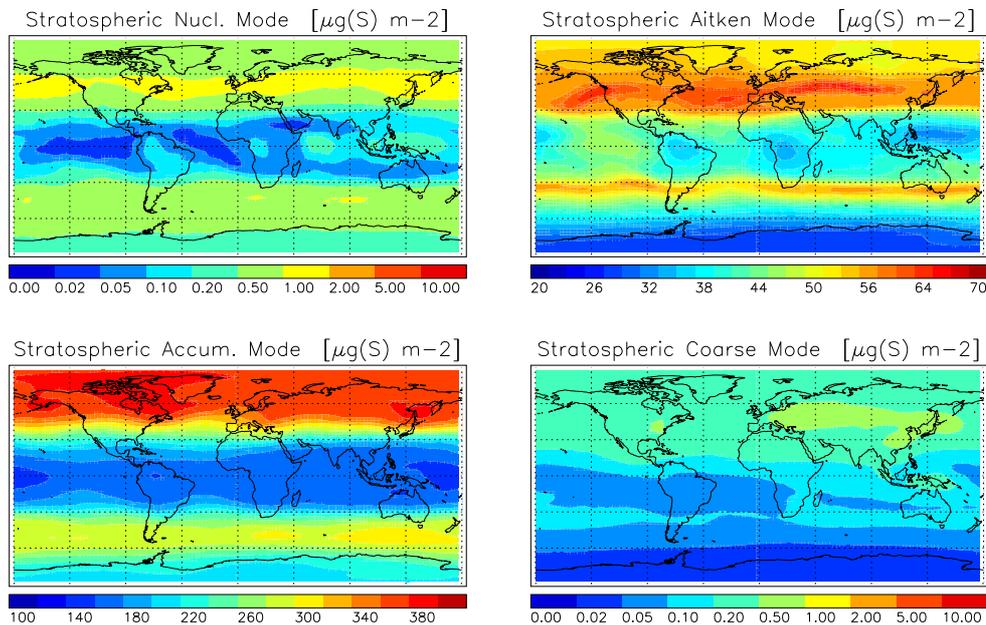


Abbildung 5.10: wie 5.9, aber hier vertikal integriert in der Stratosphäre (inkl. der Tropopausenregion).

5.2.3 Aerosolklimatologie

Bevor ausgewählte modellierte Aerosolparameter einer näheren quantitativen Analyse unterzogen werden, erfolgt in diesem Kapitel zunächst die Vorstellung der mittleren klimatologischen Eigenschaften verschiedener prognostischer und diagnostischer Modellparameter im 11 Jahre umfassenden Analysezeitraum.

Die Beiträge, die *Nucleation-Mode*- und *Aitken-Mode*-Partikel in der Modellierung der stratosphärischen Aerosolschicht liefern, werden in Abbildung 5.11 verdeutlicht, welche die zonalen Mittel der modellierten Aerosolgrößenparameter Volumendichte, Oberflächendichte sowie der des effektiven Radius zeigt, ergänzt um die modellierte Konzentration der Aerosolmasse (genauer: des Aerosolpartikelmassenmischungsverhältnisses), jeweils unter verschiedenen Integrationen des in SAM2 definierten Partikelgrößenspektrums. Während die mit *R1* markierten Parameter über das gesamte in SAM2 definierte Partikelspektrum integriert worden sind (Partikel von 1 nm bis 2.6 μm im Radius), erfolgte die Integration der mit *R50* markierten Parameter für Partikel mit einem Radius ≥ 50 nm. Unter der Kennung *R50* werden also ausschließlich Partikel des *Accumulation Mode* und des *Coarse Mode* berücksichtigt. Diese Definition entspricht in etwa dem unteren Detektionslimit optischer Partikelsensoren (Stefan Kinne, persönliche Mitteilung).

Durch die Bereitstellung von Partikeloberflächen für heterogene chemische Transformationen greifen Sulfataerosole unter bestimmten Umständen in der gesamten unteren Stratosphäre in die katalytischen Zyklen des Ozonabbaus bzw. dessen Relaxation ein (Brosseur und Granier, 1990; Hanson und Ravishankara, 1994; Hanson et al., 1994; Tabazadeh et al., 1994b, 2000). So reagiert die katalytische Ozonchemie insbesondere in Perioden geringer vulkanischer Belastung sensitiv auf die Verfügbarkeit von Partikeloberflächen, beispielsweise ist diese antikorreliert mit dem NO_x/NO_y -Verhältnis in der Stratosphäre (Prather, 1992; Fahey et al., 1993; Solomon et al., 1996). Aus Abbildung 5.11 (b) wird ersichtlich, dass die modellierte Aerosoloberflächendichte eine starke Abhängigkeit von der gewählten unteren Integrationsgrenze des im Modell berücksichtigten Partikelgrößenspektrums aufweist. Unter Einbeziehung

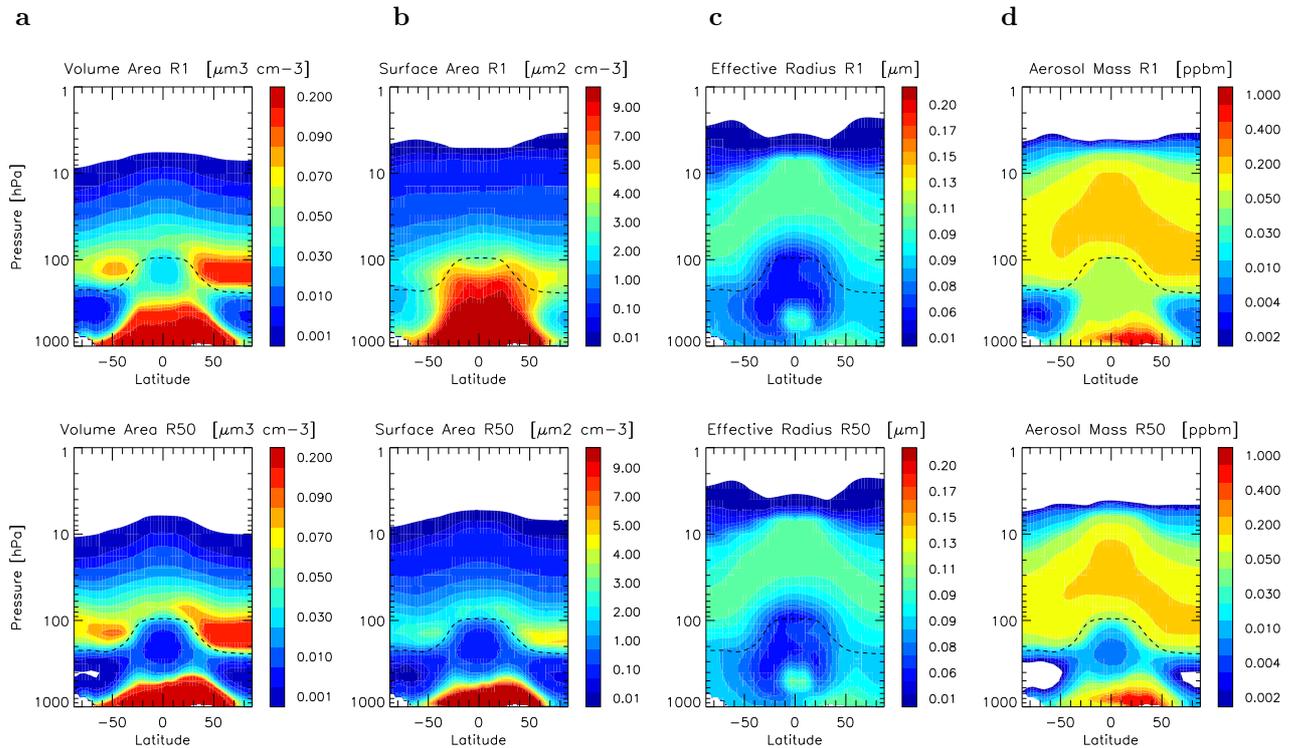


Abbildung 5.11: Zonale Mittel der elfjährigen Aerosolklimatologie: (a) Aerosol-Volumendichte, (b) Aerosol-Oberflächendichte und (c) effektiver Radius. Die Parameter in der oberen Reihe berücksichtigen den gesamten modellierten Partikelgrößenbereich, in der unteren Reihe werden nur Partikel mit einem Radius ≥ 50 nm in die Analyse einbezogen.

der *Nucleation-Mode*- und *Aitken-Mode*-Partikel in die Integration wird eine Oberflächendichte generiert, deren Einfluss auf die heterogene Chemie der unteren Stratosphäre weit größer sein kann als die zur Validierung gegenüber Beobachtungen herangezogene Oberflächendichte (*R50*), die nur Partikel des *Accumulation Mode* und des *Coarse Mode* berücksichtigt.

Eine ähnliche Abhängigkeit von der Wahl der zur Validierung der Aerosolgrößenparameter herangezogenen unteren Integrationsgrenze des modellierten Partikelspektrums zeigt Timmreck (2001) für das Modell ECHAM4-SAM. Bei Berücksichtigung des gesamten Spektrums ab ($R \geq 1$ nm) weist die Oberflächendichte ähnlich hohe Werte im Bereich der oberen Troposphäre auf wie MAECHAM5-SAM2, welche im Bereich der tropischen Tropopause die aus SAGE-II-Extinktionsmessungen abgeleiteten Oberflächendichten (Thomason et al., 1997) um mehr als 100 % übertreffen. Demgegenüber stimmt die in Timmreck (2001) modellierte Oberflächendichte auf Basis von Partikeln mit einem Radius von ≥ 100 nm sehr gut mit den Beobachtungen von Thomason et al. (1997) überein.

Die Partikelvolumendichte in Abbildung 5.11 (a) wird von Partikelanzahlkonzentration im *Nucleation Mode* weit weniger beeinflusst als die Partikeloberflächendichte (vergleiche Abbildung 5.12, a). Der modellierte effektive Radius zeigt sich dagegen verhältnismäßig unaffektiert von der Wahl der unteren Integrationsgrenze.

Abbildung 5.12 zeigt die modeweise integrierte Partikelzahl. Die nicht dargestellte modellierte Gesamtpartikelanzahl kann durch Überlagerung der Abbildungen der einzelnen Moden abgeleitet werden. Die Gesamtpartikelanzahl wird in der Troposphäre sowie den Extratropen der Stratosphäre von *Nucleation-*

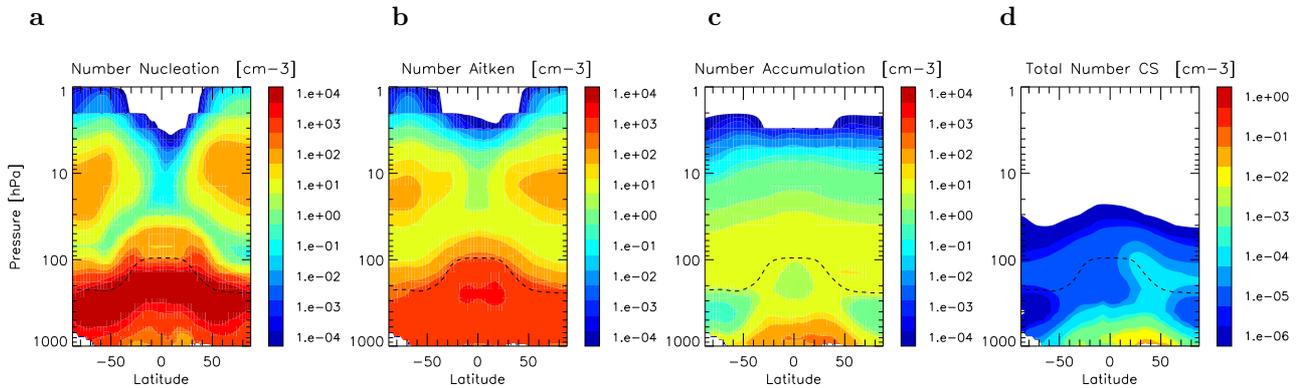


Abbildung 5.12: Wie Abbildung 5.11, aber hier für die modeweise integrierte Partikelanzahl: (a) *Nucleation Mode*, (b) *Aitken Mode*, (c) *Accumulation Mode* und (d) *Coarse Mode*. Man beachte die von (a) bis (c) abweichende Skalierung im *Coarse Mode* (d).

Mode-Partikeln bestimmt, im Bereich des tropischen stratosphärischen Reservoirs dominieren *Aitken-Mode*-Partikel. Das zonale Mittel der *Accumulation-Mode*-Partikel (Abbildung 5.12, c) weist ein charakteristisches Minimum im Bereich der oberen Troposphäre auf, welches auf deutlich höhere Auswascheffizienzen der *Accumulation-Mode*-Partikel und *Coarse-Mode*-Partikel gegenüber *Nucleation-Mode*-Partikeln und *Aitken-Mode*-Partikeln zurückzuführen ist. Daraus ergeben sich höhere Nassdepositionsraten im Bereich der tropischen Tiefenkonvektion (Stier et al., 2005). Entsprechende Minima finden sich ebenfalls in den zonalen Mitteln der Partikelgrößenparameter (mit Ausnahme der Oberflächendichte $R1$) und in denen der Aerosolkonzentrationen (Abbildung 5.11, d). In Abbildung 5.12 (d) zeigt sich die bereits anhand von Abbildung 5.10 diskutierte Asymmetrie der meridionalen Verteilung der *Coarse-Mode*-Partikel, die sich ebenfalls im zonalen Mittel der Aerosolkonzentration im Bereich der unteren Stratosphäre nachweisen lässt (Abbildung 5.11, d).

Sowohl die modellierte Dominanz der *Nucleation-Mode*-Partikel bei Berücksichtigung des gesamten Spektrums als auch Dominanz der *Aitken-Mode*-Partikel bei Integration ab CN (Partikel mit einem Radius von 0.01 nm) stimmen qualitativ und quantitativ gut den in Weisenstein et al. (1997) und SPARC (2006) gezeigten meridionalen und vertikalen Verteilungen der Partikelanzahlkonzentrationen des zweidimensionalen stratosphärischen Aerosolmodells AER überein. Weisenstein et al. (2007) zeigen entsprechende Verteilungen der modellierten Partikelanzahl im *Accumulation Mode* und *Coarse Mode* des stratosphärischen Hintergrundzustandes anhand von 20, 40 und 150 Bins umfassenden Versionen von AER. SAM2 zeigt auch hier eine gute quantitative Übereinstimmung, allerdings reproduziert AER das äquatoriale Minimum im Bereich der oberen Troposphäre nicht, was möglicherweise mit den troposphärischen Parametrisierungen in AER zusammenhängt (vergleiche Abschnitt *Budget und Verweildauer* dieses Kapitels).

In Abbildung 5.13 sind die modellierten Prozessgrößen der Aerosolmikrophysik sowie die zum H_2SO_4 -Dampfdruck (Abbildung 5.14, d) proportionale Gleichgewichtskonzentration von H_2SO_4 -Molekülen an den Partikeloberflächen dargestellt. Während Nukleation im wesentlichen von der H_2SO_4 -Gasphasenkonzentration abhängt (vergleiche Abbildung 5.4, c), ist der Massentransfer zwischen Gas- und Partikelphase sowohl eine Funktion der Gasphasenkonzentration als auch der H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration. Kondensation und Verdunstung sind in den Abbildungen 5.13 (c) und (d) als Transferkonzentrationen ausgedrückt, einer gegenüber der Nukleationsrate in Abbildung 5.13 (b) zeitlich unabhängigen Größe. Die Transferkonzentration ist ein Parameter, der direkt vergleichbar mit der modellierten Gasphasenkonzentration von H_2SO_4 (Abbildung 5.4, c) und der modellierten Aerosolkonzentration ist. Letztere wird zwar im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich als

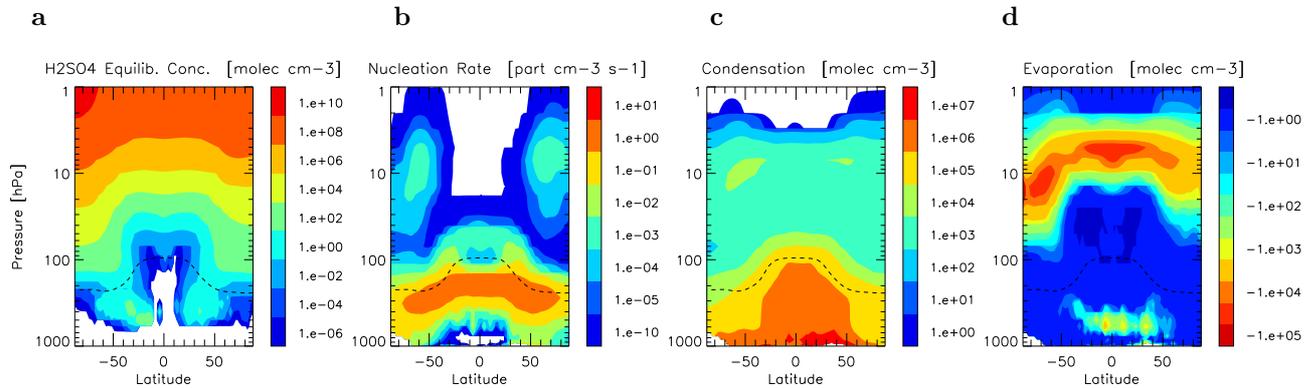


Abbildung 5.13: Wie Abbildung 5.11, aber hier für die Prozessgrößen der Aerosolmikrophysik: (a) Gleichgewichtskonzentration von Schwefelsäuremolekülen an den Partikeloberflächen, (b) Nukleationsrate, (c) Massentransferkonzentration durch H_2SO_4 -Kondensation und (d) Massentransferkonzentration durch Verdunstung von Sulfatpartikeln.

Massenmischungsverhältnis visualisiert, jedoch zur Anwendung in mikrophysikalischen und chemischen Parametrisierungen wird dieser Parameter in eine Molekularkonzentration transformiert.

Die in Abbildung 5.13 (b) gezeigte Nukleationsrate entspricht der scheinbaren Formationsrate von Partikeln mit einem Radius von 1 nm, der kleinsten in SAM2 definierten mittleren Partikelgröße. Die Parametrisierung der binären homogenen Nukleation nach Vehkamäki et al. (2002) liefert unter Bedingungen der oberen Troposphäre und unteren bis mittleren Stratosphäre i.d.R. Nuclei mit einem Radius von 0.3 bis 0.7 nm, deren pro Zeitschritt integrierte H_2SO_4 -Molekülkonzentration auf 1 nm große Partikel skaliert wird, um Massenerhaltung in der Modellierung dieses Prozesses sicherzustellen. Die im Modell diagnostizierten und hier abgebildeten Formationsraten sind demnach immer geringer als diejenigen, die eine unskalierte Vehkamäki-Parametrisierung liefern würde.

Nukleation findet ganzjährig in der gesamten Troposphäre statt, vor allem in der planetaren Grenzschicht wird der Prozess systematisch untersucht (u.a. Kulmala et al., 2004c). Während in der unteren und freien Troposphäre organische Substanzen und Ammoniumverbindungen wesentlich zur Formation neuer Partikel beitragen (Korhonen et al., 1999; Kulmala et al., 2004a), lässt sich anhand verschiedener Beobachtungen (Hayes et al., 1980; Korhonen et al., 2003a; Berndt et al., 2005) schlussfolgern, dass binäre homogene Nukleation oberhalb der Tropopause als dominierender Partikelformationsprozess angesehen werden kann. In Übereinstimmung mit anderen Modellstudien (Lucas und Prinn, 2003; Stier et al., 2005; SPARC, 2006), die ebenfalls auf die Parametrisierung nach Vehkamäki et al. (2002) aufbauen, werden hohe Nukleationsraten $> 1 \text{ Partikel cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ direkt unterhalb der Tropopause modelliert. Je nach vertikaler Auflösung der Modelle zentriert sich diese Region in 12 bis 14 km Höhe (~ 200 bis 140 hPa). Die veröffentlichten Daten dieser Modelle zeigen erhöhte Nukleationsraten in den mittleren Breiten der unteren Stratosphäre. Bis auf das zweidimensionale Modell AER weisen die Modelldaten zudem ein charakteristisches Minimum innerhalb des TSR in $\sim 16 \text{ km}$ ($\sim 100 \text{ hPa}$) auf, das sich auch hier in der modellierten Partikelanzahl das *Nucleation Mode* nachweisen lässt. In den hohen Breiten zeigen sich in MAECHAM5-SAM2 und AER in ca. 10 hPa bzw. 30 km Höhe erhöhte Partikelformationsraten in den Wintermonaten (November bis März in der Nordhemisphäre, Mai bis November in der Südhemisphäre). In ECHAM4-SAM (Timmreck, 2001), welches eine Nukleationsparametrisierung auf Basis der klassischen Theorie nach Jaeger-Voirol und Mirabel (1988) verwendet, zentrieren sich die Formationsprozesse in den Polarwirbeln der Winterhemisphären dagegen in etwa 14 km Höhe ($\sim 140 \text{ hPa}$). Timmreck (2001) weist darauf hin, dass das Zentrum der Partikelformation in ECHAM4-SAM in der unteren tropischen

Stratosphäre bei ca. 70 hPa liegt, nicht konsistent zu den in Brock et al. (1995) postulierten Regionen der UT/LS, die für die Partikelformation in Frage kommen.

Der modellierte Prozess des Partikelwachstums durch Kondensation von H_2SO_4 -Molekülen findet über den gesamten thermodynamisch stabilen Bereich von Sulfataerosolen statt (Regionen, in denen $p_P^{\text{H}_2\text{SO}_4} > p_D^{\text{H}_2\text{SO}_4}$, siehe Kapitel 3.3). Die höchsten Massentransferraten finden sich in der Troposphäre, wo die Verfügbarkeit von H_2SO_4 -Molekülen in der Gasphase aufgrund der effizienten Oxidation von SO_2 am größten ist. Oberhalb der Tropopause kondensieren H_2SO_4 -Moleküle in moderaten Größenordnungen, wobei sich auch im klimatologischen Mittel unter erhöhten H_2SO_4 -Dampfdrücken oberhalb von 20 hPa keine unbedeutende Absorption von H_2SO_4 -Molekülen an den Partikeln zeigt. Kondensation und Verdunstung befinden sich im klimatologischen Mittel in einem zyklischen Gleichgewicht, wobei Verdunstung oberhalb von 10 hPa in den Tropen bzw. 20 hPa in den hohen Breiten der dominierende Prozess ist.

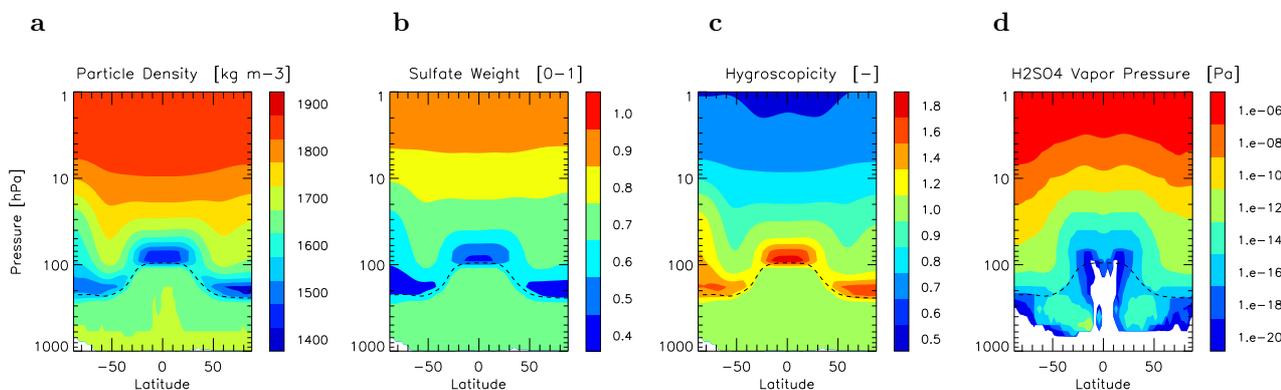


Abbildung 5.14: Wie Abbildung 5.11, aber hier für die modellierten Partikeleigenschaften von Sulfataerosol: (a) Sulfatdichte, (b) prozentualer Sulfatanteil in den Partikeln, (c) Wasserdampfaufnahmekoeffizient der Partikel und (d) H_2SO_4 -Dampfdruck an den Partikeloberflächen.

Die in MAECHAM5-SAM2 modellierte mittlere Aerosolpartikelkomposition zeigt Abbildung 5.14. Unter entsprechend tiefen Temperaturen, wie sie im Bereich der tropischen UT/LS sowie im klimatologischen Mittel in den Polarregionen der südlichen Hemisphäre auftreten, weisen Sulfataerosole gegenüber den in SAM2 definierten Standardbedingungen der Partikelkomposition ($\rho_{aero} = 1700 \text{ kg m}^{-3}$, 75 % Sulfatanteil) eine bis zu 60%ige Wasseraufnahme auf. Wie in Kapitel 3 dargelegt, wird die Partikelkomposition unterhalb der Tropopause auf diese von Timmreck (1997) definierten Standardbedingungen fixiert.

Die zu den Abbildungen dieses Kapitels korrespondierenden zonalen Mittel der Klimatologien von Temperatur, Wasserdampfkonzentration und relativer Feuchte sind in Anhang B in Abbildung B.1 dargestellt.

5.2.4 Validierung gegenüber SAGE II

SAGE-II-Datensätze sind wegen der über zwanzig Jahre kontinuierlichen Verfügbarkeit dieses Instruments und einer Abtastung von $> \pm 60^\circ$ entlang des Äquators sowie seinen 4 Aerosol-Extinktionskanälen (davon 3 im Sub-Mikrometer Bereich) prädestiniert für Vergleiche mit klimatologischen Modellstudien zur Ausbildung und zeitlichen Entwicklung der stratosphärischen Aerosolschicht. Da

operationell von Oktober 1984 bis August 2005, zeigen sich in SAGE-II-Aerosolklimatologien mehrere hochreichende Vulkanausbrüche ebenso wie die Phasen geringerer vulkanischer Belastung der Stratosphäre.

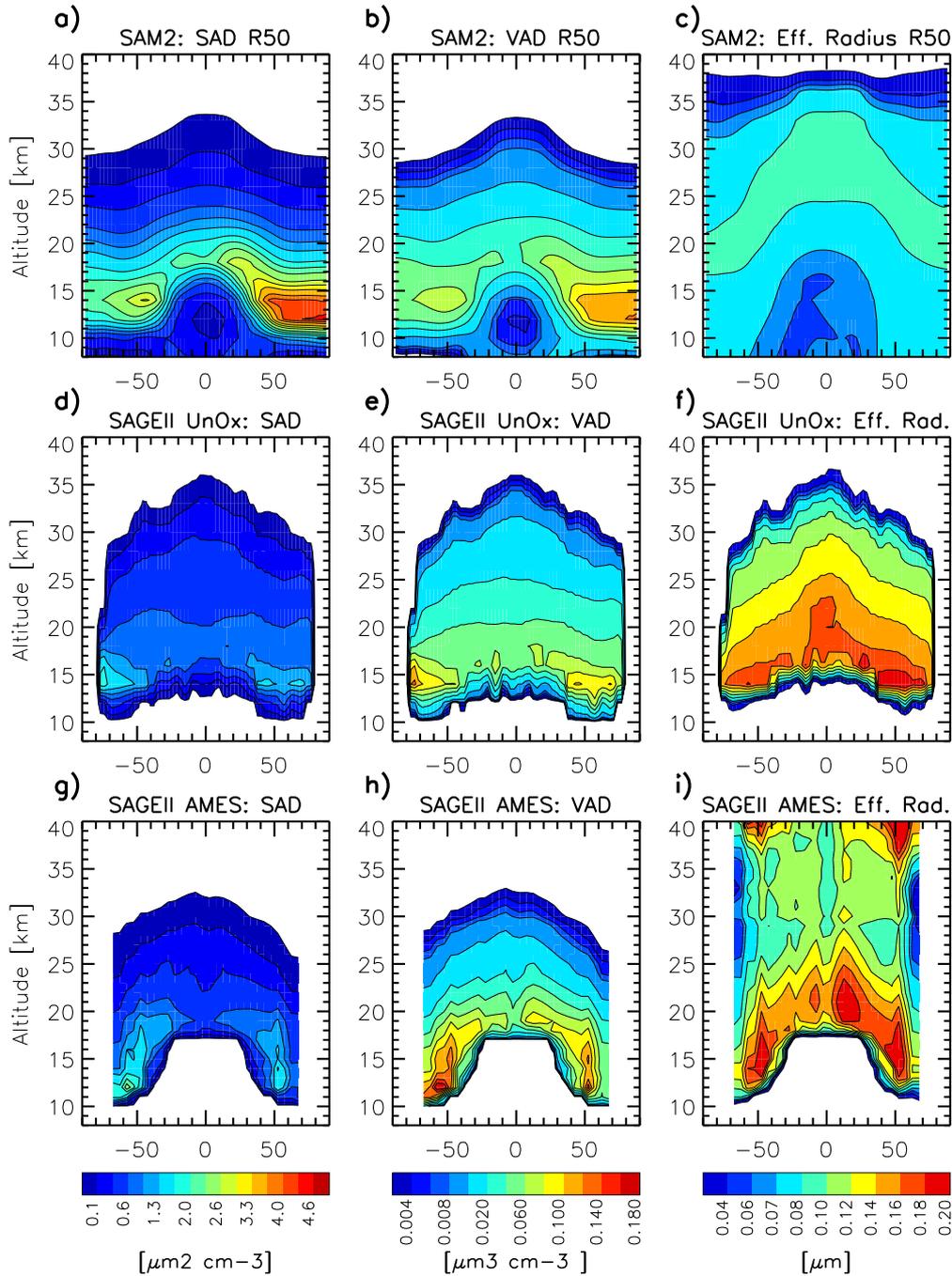


Abbildung 5.15: Zonale Jahresmittel für 1998 der Partikeloberflächendichte (linke Spalte, SAD), der Partikelvolumendichte (mittlere Spalte, VAD) und des effektiven Radius (rechte Spalte) im (a) bis (c) nicht-QBO-assimilierten Modell und den SAGE-II-Datensätzen der (d) bis (f) *University of Oxford* (UnOx) und des (g) bis (i) *NASA Ames Research Centers* (Bauman et al., 2003a,b).

In diesem Abschnitt erfolgt der Vergleich ausgewählter von MAECHAM5–SAM2 modellierter Kenngrößen stratosphärischer Aerosole mit denen des *Stratospheric Aerosol and Gas Experiments II* (SAGE II). Dazu werden zwei aus SAGE–II–Extinktionsmessungen abgeleitete Klimatologien physikalischer Aerosolparameter herangezogen: Der im EU–Projekt *Particles in the upper Troposphere and lower Stratosphere and their role in the climate system* (PARTS) erstellte Datensatz der *University of Oxford* (PARTS, 2004, im Folgenden als UnOx bezeichnet und verfügbar über <http://www-atm.physics.ox.ac.uk/project/PARTS/index.html>) und eine am *NASA AMES Research Center* erstellte Klimatologie (Bauman et al., 2003a,b, im Folgenden als AMES bezeichnet). Beide Datensätze basieren auf dem zum Zeitpunkt ihrer Erstellung operationellen NASA–SAGE–II–Extinktionsprodukt.

Dem UnOx–Datensatz liegt ein Inversionsalgorithmus basierend auf der Bayesschen Wahrscheinlichkeitstheorie zugrunde. Die Klimatologie umfasst den Zeitraum von 1984 bis 2001. Der AMES–Algorithmus verwendet einen vorkompilierten *Look-Up-Table* (LUT) theoretisch vorhergesagter Mehrkanal–Extinktionsverhältnisse auf Basis uni- und bimodaler Aerosolgrößenspektren. Die Klimatologie ist verfügbar zwischen Dezember 1984 bis August 1999. Beide Algorithmen verwenden die SAGE–II–Kanäle 0.386, 0.452, 0.525 und 1.020 μm zur Ableitung der Aerosoloberflächen- und Volumendichte, des effektiven Radius sowie der Standardabweichung σ des gefitteten Partikelgrößenspektrums. UnOx liefert zusätzlich die Gesamtpartikelanzahl und den Median–Radius des gefitteten Partikelgrößenspektrums sowie Fehlerabschätzungen jedes Parameters. Während UnOx auf den gleichen Annahmen zur Partikelkomposition basiert, wie sie in SAM2 als Standardbedingungen definiert sind ($\rho_{H_2SO_4} = 1700 \text{ kg m}^{-3}$, Sulfatmassenanteil 75 %), fließt im AMES–Algorithmus eine Partikelkomposition von 70 % Sulfatmassenanteil über die refraktiven Indizes in die Berechnung der Aerosol–Extinktionen ein.

In Abbildung 5.15 werden die modellierten Größenparameter als zonale Jahresmittel dem UnOx- und AMES–Datensatz des Jahres 1998 gegenübergestellt. Die Modelldaten entsprechen denen des Jahres 3 des Analysezeitraums, äquivalent den hier gezeigten SAGE–II–Mitteln des Jahres 1998. Um einen sinnvollen Vergleich mit Satellitendaten zu ermöglichen, liegen den Modelldaten dieses Abschnitts ausschließlich diejenigen Bereiche des in SAM2 definierten Partikelgrößenspektrums mit $r \geq 50 \text{ nm}$ zu Grunde, die als optisch aktiv gelten (u.a. Pitari et al., 2002).

Charakteristisch für die von MAECHAM5–SAM2 modellierten Größenparameter sind die gegenüber den aus SAGE–II–Extinktionsmessungen abgeleiteten höheren Oberflächendichten (*Surface Area Density*, SAD) und niedrigeren effektiven Radien r_{eff} , während die Volumendichte (*Volume Area Density*, VAD) vergleichsweise gut wiedergegeben wird. Auffällig ist die in UnOx–Parametern nicht existente Abhängigkeit von der (sub)tropischen Tropopausenhöhe. Ob dies auf technische Gründe bei der Interpretation des UnOx–Datensatzes zurückzuführen ist, konnte abschließend nicht geklärt werden (Don Grainger und Gareth Thomas, persönliche Kommunikation). In den hier gezeigten Abbildungen sind alle zum derzeitigen Stand der Analysen signifikanten Datenpunkte des UnOx–*Retrieval* einbezogen worden.

Die SAD wird im Modell oberhalb der Tropopause um ca. 300 % überschätzt, zudem zeigen sich extrem hohe SAD in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre. Die VAD ist in diesen Regionen ebenfalls um $\sim 50 \%$ erhöht. SAGE II zeigt in den hohen Breiten oberhalb der Tropopause ebenfalls erhöhte SAD und vor allem VAD, allerdings sind diese in ihrer Ausprägung deutlich schwächer, lokal feiner und in der Südhemisphäre deutlicher ausgeprägt.

Verschiedene Vergleiche von Satellitenprodukten offenbarten, dass aus SAGE–II–Extinktionen abgeleitete VAD und insbesondere die SAD mit einem deutlich negativen systematischen Fehler behaftet einzuschätzen sind (u.a. SPARC, 2006). Die aus POAM III (*Polar Ozone and Aerosol Measurement*) abgeleiteten Aerosolgrößenparameter sind dagegen als leicht negativ und jene aus HALOE (*Halogen Occultation Experiment*) als leicht positiv fehlerbehaftet zu bewerten (Randall et al., 2001). Wie Randall et al.

(2001) zeigten, sind die Ableitungen der SAD und VAD aus POAM-III-Extinktionen für die Jahre 1998 bis 2000 im Mittel mindestens 30 % bzw. 15 % größer als entsprechende SAGE-II-Daten. Die größten relativen Abweichungen zwischen beiden Instrumenten von 60 bis 120 % lassen sich in den SAD-Ableitungen der NH ($\sim 60^\circ\text{N}$) feststellen. Die ebenfalls analysierten SAD und VAD auf Basis von HALOE-Extinktionen werden gegenüber POAM III etwa 30 bzw. 25 % höher eingeschätzt. Um an dieser Stelle Zahlenwerte zu nennen, lassen sich aus Randall et al. (2001) folgende klimatologisch mittlere Oberflächendichten für den stratosphärischen Hintergrundzustand der NH nach 1998 in 19 km Höhe für die Instrumente SAGE II/POAM III/HALOE ableiten: $0.4/0.6\text{--}0.7/0.8 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$ (repräsentativ für interferierende Orbits bei $\sim 60^\circ\text{N}$). SPARC (2006) gibt als durchschnittliche POAM-III-SAD in 19 km Höhe im klimatologischen Mittel sowohl für die NH als auch die SH von 1998 bis 2004 etwa $0.65 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$ an. Weitere ausführliche quantitative Analysen von Extinktions- und daraus abgeleiteten Aerosolgrößenparametern der oben genannten und der anderer Instrumente finden sich in SPARC (2006).

Vergleiche vertikaler Profile der SAD zwischen SAGE II und den in SPARC (2006) berücksichtigten stratosphärischen Aerosolmodellen (u.a. AER, ECHAM4-SAM, ULAQ) zeigen eine deutliche Überschätzung der SAD in allen Modellen in der (sub-)tropischen unteren Stratosphäre sowie in den mittleren Breiten in den oberen von Verdunstung der Partikel gekennzeichneten Regionen der stratosphärischen Aerosolschicht.

Vergleiche von SAGE II und HALOE mit In-Situ-Langzeitmessungen der *University of Wyoming* anhand von optischen Partikelzählern (OPC, u.a. Hofmann et al., 1975; Deshler et al., 2003a) zeigen für den stratosphärischen Hintergrundzustand nach 1996 generell höhere SAD in den OPC-Messungen als jene aus den SAGE-II-Extinktionen abgeleiteten (Hervig und Deshler, 2002; SPARC, 2006). Spezifiziert werden die Abweichungen in Hervig und Deshler (2002) mit 100 % unterhalb von 20 km ($\sim 50 \text{ hPa}$), bezogen auf 22 zusammentreffende Messungen über Laramie, WY (41°N , 105°W). Die Abweichungen von HALOE gegenüber SAGE II fallen unterhalb von 20 km mit 40 % entsprechend geringer aus und sind konsistent mit den Analysen von Randall et al. (2001). Im Bereich der maximalen vertikalen Ausdehnung der stratosphärischen Aerosolschicht oberhalb von 25 km sind ebenfalls hohe relative Abweichungen zwischen SAGE-II-, HALOE- und den OPC-Daten festzustellen. Die Absolutgrößen sind in diesem Bereich mit $< 0.06 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$ aber zu gering, um einem Vergleich mit Modelldaten an dieser Stelle Bedeutung beizumessen.

Deshler et al. (2003a) weisen darauf hin, dass Verbesserungen in den kurzen Wellenlängen des SAGE-II-*Retrieval*-Algorithmus der Version 6.1 zu geringeren Abweichungen in den abgeleiteten SAD gegenüber dem Wyoming-OPC führen. In SPARC (2006) werden ähnliche Schlussfolgerungen bezüglich der Sensitivität des SAGE-II-*Retrieval* gegenüber kleinen Partikeln gezogen. Ausserdem kann in SPARC (2006) gezeigt werden, dass die auf der *Retrieval*-Version 6.2 basierende SAD ab 1998 gut mit den Aerosoloberflächendichten übereinstimmt, die aus den Wyoming-OPC-Daten abgeleitet werden. Zu bemerken sei an dieser Stelle, dass die SAD des letzteren Instruments in Übereinstimmung mit den Schlussfolgerungen von Randall et al. (2001) über denen des HALOE-Instruments liegen.

In einer kürzlich von Thomason et al. (2008) veröffentlichten Revision der SAGE-II-Extinktionen wird hervorgehoben, dass mittels des noch gegenwärtig operationellen NASA-SAGE-II-Produkts Oberflächendichten abgeleitet werden, die mindestens um den Faktor 2 die tatsächlichen Verhältnisse in der vulkanisch ungestörten stratosphärischen Aerosolschicht zu unterschätzen scheinen. Der gleichzeitig vorgestellte neue Ansatz Aerosoloberflächendichten aus beobachteten Extinktionen abzuleiten liefert konsistentere Ergebnisse im Vergleich zu HALOE und dem Wyoming-OPC.

Die oben getroffenen Aussagen zur Einschätzung der mit MAECHAM5-SAM2 modellierten SAD und VAD gegenüber den hier gezeigten Satellitendaten übertragen sich zwangsläufig auch auf die Beurteilung

der Ableitungen des effektiven Radius aus Aerosolextinktionen, da der effektive Radius als Verhältnis des dritten Moments (VAD) einer unimodalen Aerosolverteilung zu ihrem zweiten Moment (SAD) definiert ist, siehe Gl. 2.1 und 2.2 (Hansen und Travis, 1974; Lacis et al., 1992).

In der Literatur zu findende Angaben des effektiven Radius unter stratosphärischen Hintergrundbedingungen weisen eine relativ hohe Bandbreite auf. Je nach Instrument schwanken sie für die mittleren Breiten der Nordhemisphäre zwischen $0.11 \mu\text{m}$ (OPC, Deshler et al., 1993) und $0.26 \mu\text{m}$ (OPC, Hofmann, 1990). Ältere SAGE-II-Klimatologien liefern hier $\sim 0.13 \mu\text{m}$ (u.a. Kent et al., 1995). Auf Basis von Composite-Analysen verschiedener Instrumente beziffern Russell et al. (1996) den typischen effektiven Radius stratopärischer Aerosole unter Hintergrundbedingungen mit $0.17 \pm 0.07 \mu\text{m}$.

Die effektiven Radien von UnOx und AMES liegen quantitativ nah beieinander. AMES weist eine höhere räumliche Diversität auf, Werte in AMES oberhalb von 35 km sind als Artefakte zu werten, da in dieser Höhe Sulfatpartikel thermodynamisch nicht stabil sind und deren Konzentrationen somit gegen Null tendieren. Die effektiven Radien beider Datensätze in der unteren Stratosphäre liegen 20 bis 30 % unter denen in SPARC (2006), wo sie allerdings ausschließlich für die Jahre 2001 und 2002 gezeigt werden. Die hier modellierten effektiven Radien stimmen quantitativ relativ gut mit denen von Kent et al. (1995) aus der Pre-Pinatubo-Zeit überein, wobei sich r_{eff} in den zonalen Mitteln von Kent et al. (1995) relativ homogen verteilt, ähnlich wie im Modell (Abbildung 5.15, c). AMES und Kent et al. (1995) zeigen in den mittleren bis hohen Breiten geringe effektive Radien als hier modelliert. In AMES zentrieren sich diese in ca. 27 km Höhe, in Kent et al. (1995) bei ca. 20 km. In UnOx nimmt der effektive Radius mit zunehmender Höhe ähnlich stetig ab, wie die anderen beiden Größenparameter dieses *Retrieval*. Invers zu Kent et al. (1995) zeigen sowohl UnOx als auch AMES hohe effektive Radien in der unteren Stratosphäre der nördlichen Hemisphäre.

Das in Abbildung 5.15 dargestellte zonale Jahresmittel für 1998 des effektiven Radius liegt in MAECHAM5-SAM2 oberhalb von 25 km Höhe um 30 bis 50 % unter den SAGE-II-Daten. Direkt oberhalb der Tropopause sind die effektiven Radien der Satellitendaten um den Faktor 2 höher als die des Modells.

ECHAM4-SAM Timmreck (2001) gibt den effektiven Radius in Übereinstimmung mit den oben genannten Beobachtungen wieder, jedoch ohne Angabe des berücksichtigten Partikelbereichs zur Ableitung dieses Parameters aus den modellierten Aerosolkenngrößen. Die in SPARC (2006) veröffentlichten Vergleiche vertikaler Profile des effektiven Radius zwischen verschiedenen stratosphärischen Aerosolmodellen und SAGE II (*Retrieval* V6.2, abgeleitet aus der Extinktion bei $1.02 \mu\text{m}$) zeigt eine deutliche Unterschätzung des r_{eff} in allen Modellen inklusive ECHAM4-SAM unterhalb von 20 km. Die große Variabilität der dort gezeigten effektiven Radien ist letztlich ein klarer Indikator für die derzeit von Modellen wiedergegebenen substanziell unterschiedlichen Partikelgrößenverteilungen.

Im folgenden Kapitel soll näher auf die Sensitivität des modellierten effektiven Radius gegenüber dem in SAM2 definierten Partikelspektrum eingegangen werden, zunächst jedoch eine Gegenüberstellung der modellierten und der aus den UnOx- und AMES-Satellitenprodukten abgeleiteten Aerosolmassendichten.

In Abbildung 5.16 (a) wird die modellierte Sulfatmassendichte den aus den jeweiligen Volumendichten der SAGE-II-Datensätze der *University of Oxford* und des *NASA AMES Research Centers* abgeleiteten Sulfatmassendichten gegenübergestellt, und zwar jeweils korrespondierend mit Abbildung 5.15 für MAECHAM5-SAM2 als zonales Mittel des Jahres 3 im Analysezeitraum und jeweils für Partikel mit einem Radius $> 50 \text{ nm}$ bzw. im Fall der SAGE-II-Daten als zonales Jahresmittel für 1998. Qualitativ ist das zonale Mittel der hier modellierten Massendichte in guter Übereinstimmung mit der des zweidimensionalen Modells AER. Quantitativ liegt sie im Bereich der extratropischen unteren Stratosphäre $\sim 35 \%$ unter der von AER in SPARC (2006). Oberhalb von 16 km fallen die relativen Abweichungen

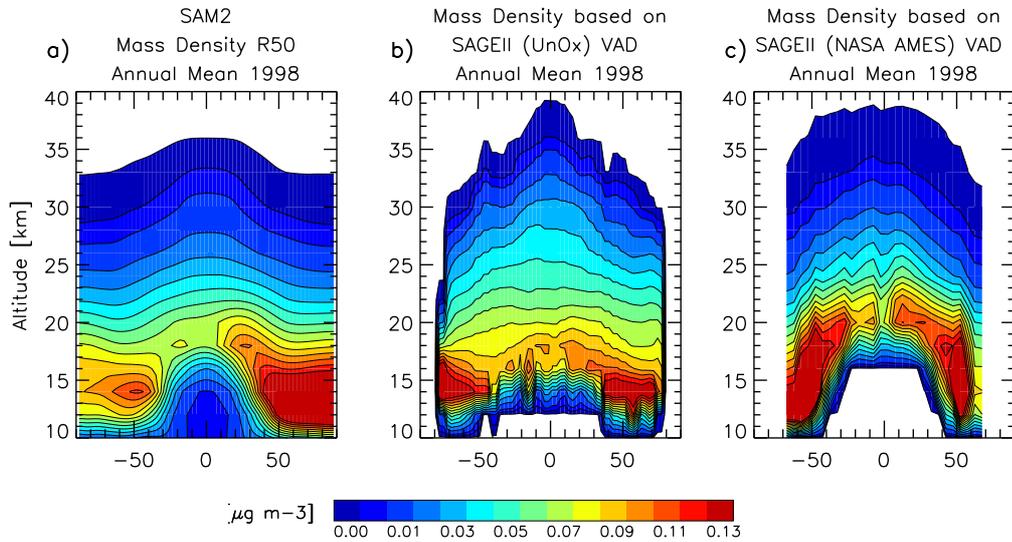


Abbildung 5.16: wie 5.15, aber hier für die Aerosolmassendichten, bezogen auf den Sulfatanteil der Partikel: (a) im nicht-QBO-assimilierten Modell und abgeleitet aus den SAGE-II-Datensätzen der (b) *University of Oxford* (UnOx) und (c) des *NASA AMES Research Centers*.

deutlich geringer aus. In Tabelle 5.1 erfolgt eine Gegenüberstellung der hier modellierten Aerosolmassendichten in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre (40°N) und entsprechenden Daten der Modelle AER (Weisenstein et al., 1997, 2007) und ECHAM4-SAM (Timmreck, 2001).

Gegenüber den SAGE-II-Massendichten, die in Yue et al. (1994) für die Pre-Pinatubo-Zeit gezeigt werden (zonales Mittel für April 1991), befindet sich MAECHAM5-SAM2 ebenfalls in guter qualitativer Übereinstimmung. Der vertikale Gradient dieses Parameters ist in Yue et al. (1994) zwischen ~ 17 km und 25 km weniger stark ausgeprägt als in den in Abbildung 5.16 (a) gezeigten Modelldaten. Tabelle 5.2 fasst die SAGE-II-Massendichten von UnOx und AMES für 40°N bzw. 41°N zusammen und vergleicht sie mit entsprechenden SAGE-II-Daten aus Yue et al. (1994). Ebenfalls in Tabelle 5.2 einbezogen werden aus In-Situ-Messungen abgeleitete Aerosolmassendichten der Pre-Pinatubo-Zeit, die in Kent et al. (1995) zusammengefasst worden sind. Letztere liegen generell mindestens 100 % unter denen der vorhin zitierten SAGE-II-Daten.

Höhe	SAM2	SAM Timmreck (2001)	AER40 Weisenstein et al. (1997)	AER40 SPARC (2006)	AER150 Weisenstein et al. (2007)
	Mittel Jahr 3	Jahresmittel	Mittel April	Jahresmittel	Jahresmittel
24 km	0.03	0.05	0.05	0.04	0.04
21 km	0.08	0.08	0.07	0.08	0.07
16 km	0.12	0.10	0.13	0.17	0.13

Tabelle 5.1: Modellerte Sulfataerosolmassendichten in $[\mu\text{g m}^{-3}]$ bei 40°N in den Modellen MAECHAM5-SAM2, ECHAM4-SAM und AER, letzteres in zwei Auflösungen des Partikelgrößenspektrums mit 40 und 150 Bins.

Höhe	SAGE II			SAGE II Mittel Pre-Pinatubo (1988 - Apr. 1991)	OPC bzw. PCAS Kent et al. (1995)	
	UnOx PARTS (2004) Mittel 1998	AMES Bauman et al. (2003a,b) Mittel 1998	Yue Yue et al. (1994) Mittel April 1991			
24 km	0.04	0.03	~0.05	0.19	0.1	(18-22 km)
21 km	0.07	0.08	~0.08	0.25	0.06	(19 km)
16 km	0.11	0.12	~0.13	0.19	0.03-0.06	(17-21 km)

Tabelle 5.2: Gegenüberstellung veröffentlichter Sulfataerosolmassendichten in $[\mu\text{g m}^{-3}]$ auf Basis von SAGE-II-Extinktionen. Vergleichsweise hinzugezogen werden entsprechende SAGE-II-, OPC- und PCAS-Daten (*Passive Cavity Aerosol Spectrometer*) von Kent et al. (1995).

5.2.5 Validierung mit In-Situ-Messungen

Eine der wenigen In-Situ-Langzeitmessungen der vertikalen Verteilung der Anzahlkonzentrationen stratosphärischer Aerosolpartikel sind die seit dem Beginn der siebziger Jahre durchgeführten Ballonmessungen der *University of Wyoming*, bei der in ca. 10 bis 35 km Höhe Partikelspektren in bis zu 13 Kanälen größen aufgelöst über Laramie, WY (41°N, 105°W) detektiert werden (u.a. Rosen, 1964; Hofmann et al., 1975, 1976; Rosen und Hofmann, 1977; Hofmann, 1990; Deshler et al., 1992, 1993, 2003a, 2006). Zwei optische Instrumente (*Optical Particle Counter*, OPC) messen simultan das Größenspektrum von Partikeln mit einem Radius $\geq 0.15 \mu\text{m}$ bzw. das von CN (*Condensation Nuclei*, i.d.R. Partikel mit einem Radius $\geq 0.01 \mu\text{m}$). Die gemessene CN-Konzentration spiegelt die detektierte Partikelgesamtkonzentration wieder und fungiert darüber hinaus als untere Integrationsgrenze der aus den gemessenen diskreten Anzahlkonzentrationen jedes OPC-Kanals abgeleiteten Fits uni- und bimodaler lognormaler Partikelanzahlspektren. Aus den gefitteten Anzahlspektren werden die Aerosolgrößenparameter SAD, VAD und effektiver Radius abgeleitet, Details zum *Fitting*-Algorithmus und zu den Kriterien, wann uni- oder bimodale Anzahlspektren abgeleitet werden, finden sich in Deshler et al. (2003a).

Zur Validierung der modellierten Partikelanzahlspektren werden die OPC-Messungen des Hintergrundzustands der stratosphärischen Aerosolschicht zwischen 1998 und 2006 herangezogen. Ein Überblick der zeitlichen Abfolge dieses 23 Messungen umfassenden Datensatzes, der jeweils gemessenen Kanäle sowie der dabei erfassten Höhenbereiche wird in Anhang D in Tabelle D.1 gegeben; für das Jahr 2004 sind keine Daten veröffentlicht worden.

Partikelanzahlverteilungen

In Abbildung 5.17 werden die modellierten größen aufgelösten Anzahlverteilungen auf Basis zonaler Jahresmittel des Jahres 11 im Analysezeitraum ($\equiv 2006$) allen im Laramie-Datensatz verfügbaren Messungen des Jahres 2006 gegenübergestellt. Generell befinden sich die modellierten Spektren in guter Übereinstimmung mit den OPC-Daten, vor allem die Konzentrationen der *Accumulation-Mode*-Partikel weisen zwischen 140 und 30 hPa nur marginale Abweichungen auf.

Die Konzentrationen von Partikeln im *Coarse Mode* ($R \geq 0.5 \mu\text{m}$) werden im Modell zum Teil unterschätzt. Dagegen zeigen sich signifikant hohe Konzentrationen sehr großer Partikel mit $R > 1 \mu\text{m}$, die vom OPC-Instrument nicht wiedergegeben werden, obwohl dieses einen quasi unlimitierten oberen Grenzbereich der Partikelgrößendetektion aufweist.

Die Konzentration der CN-Partikel ($R \sim 0.01 \mu\text{m}$) wird zwischen 50 und 30 hPa unterschätzt, in der unteren Stratosphäre befinden sie sich in Übereinstimmung mit den OPC-Daten. Da Partikel im *Nucleation Mode* ($R < 0.005 \mu\text{m}$) in den Laramie-Daten nicht direkt erfasst werden können, kann man die CN-Konzentrationen in den jeweiligen Höhenbereichen als indirektes Maß der vom Modell abgebildeten Wachstumseigenschaften der Partikelnuclei interpretieren. Zwischen 100 und 50 hPa wird eine deutliche bimodale Verteilung des Anzahlpektrums modelliert, wobei sich neben dem bei *Aitken-* bzw. *Accumulation-Mode*-Partikeln zentrierten Mode (Mode-Radius $\sim 0.04 \mu\text{m}$) ein weiterer Mode ultra-feiner Partikel mit geringer Standardabweichung generiert. Die Konzentrationen der Partikelnuclei bewegen sich zwischen 100 und 50 hPa bei $1000 - 10 \text{ cm}^{-3}$, in den mittleren Breiten der unteren Stratosphäre formieren sich im Mittel weit mehr als $1000 \text{ Partikel cm}^{-3}$ (vergleiche auch die Abbildungen 5.12 und 5.13).

Die ausgeprägte Bimodalität der Spektren in 50, 70 und 100 hPa sind auf im Mittel simultan auftretende Prozesse der Partikelformation und Kondensation zurückzuführen. Ausgeprägte intermodale Minima kennzeichnen desweiteren eine Verlagerung des auf die Partikelphase gerichteten Massentransfers von Kondensation der H_2SO_4 -Moleküle auf den Partikeln hin zur Partikelformation durch Hydratclusterbildung. Unterhalb von 100 hPa ist das Verhältnis von Nukleations- zu Kondensationsflüssen deutlich zugunsten der letzteren verschoben, d.h. Partikel im *Nucleation Mode* und *Aitken Mode* wachsen rasch, und eine ausgeprägte Bimodalität des Spektrums kann sich nicht ausbilden (vergleiche Jacobson, 1997a). Anzumerken ist hier, dass die Massentransferraten mit Annäherung an die Tropopause steigen, d.h. die Konzentrationen sowohl der Partikelnuclei als auch der ultra-feinen Partikel nehmen zu, und die ausgeprägte Mode-Struktur des Partikelanzahlpektrums verlagert sich mehr und mehr hin zu einer monoton fallenden Funktion. Somit ist die in der Literatur oft zitierte Aussage, stratosphärische Hintergrund-aerosolpopulationen lassen sich als unimodale Lognormalverteilungen beschreiben (u.a. Pinnick et al., 1976) zumindest in der unteren Stratosphäre der mittleren Breiten nicht zutreffend. In zentralen Regionen der Aerosolschicht und darüber nähert sich die modellierte Verteilung der Partikelanzahl in ihrem Größenspektrum einer Normalverteilung an, die ausgeprägte Bimodalität in diesen Höhen beeinflusst aber maßgeblich den Vergleich mit Beobachtungen im unteren Detektionsbereich des OPCs.

Weiterhin beeinflussen Anomalien, wie sie u.a. durch die Advektion von Vorläufergasen in den Massentransferprozessen hervorgerufen werden können, das starke Wachstum kleinerer Partikel in der unteren Stratosphäre, worauf der effektive Radius als flächengewichteter Parameter äußerst sensitiv reagiert. Kleine Abweichungen in der Reproduktion des starken Gradienten in der modellierten Partikelverteilungskurve gegenüber der "Realität", führen letztlich dazu, dass der modellierte effektive Radius eine große Abweichung gegenüber Beobachtungen aufweist, auch wenn dessen Integration ausschließlich im Detektionsbereich der Instrumente erfolgt (u.a. Abbildung 5.15).

Das Modell tendiert in 250 hPa dahin, den Massentransfer von H_2SO_4 -Molekülen aus der Gasphase auf die Partikel zu überschätzen, da das modellierte Anzahlpektrum im *Nucleation Mode* und *Aitken Mode* die Tendenz aufweist, höhere Partikelkonzentrationen zu generieren, als sie vom OPC-Instrument innerhalb eines Jahres gemessen worden sind (Anmerkung: damit einher gehen kleine effektive Radien).

Die bei 250 hPa ($\sim 10 \text{ km}$) im Modell eine Größenordnung geringeren Anzahlkonzentrationen von Partikeln mit $R > 0.1 \mu\text{m}$ unterliegen scheinbar effektiven Mischungsvorgängen, die im Zusammenhang mit der Reproduktion des Tropopausenaustauschs stehen. Wie Studien an ein- bzw. zweidimensionalen stratosphärischen Aerosolmodellen gezeigt haben, kann die Vernachlässigung von Sedimentation als Partikel-senke vor allem großer Partikel keinen derart signifikanten Effekt wie den hier gezeigten in dieser Höhe hervorrufen. So zeigten Toon et al. (1979), dass Sedimentation unterhalb von 15 km keinen signifikanten Einfluss auf das Verhältnis der Anzahlkonzentration von Partikeln mit $R \geq 0.15 \mu\text{m}$ gegenüber Partikeln mit $R \geq 0.25 \mu\text{m}$ aufweist. Weisenstein et al. (2007) haben in Sensitivitätsstudien zeigen können, dass

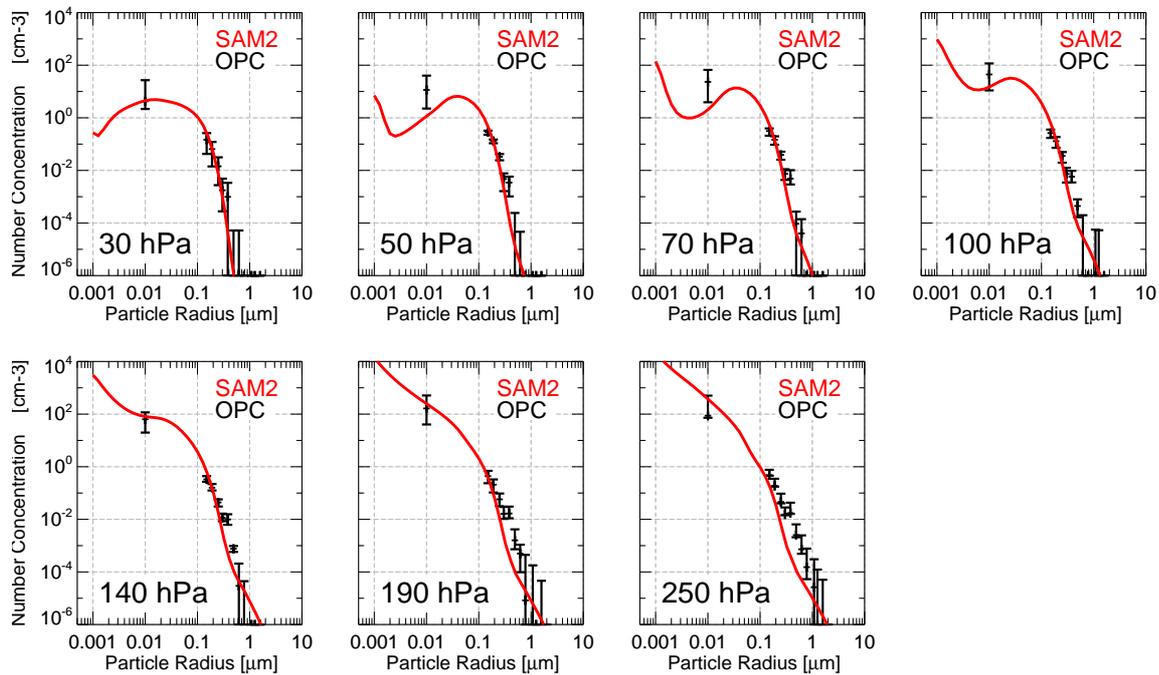


Abbildung 5.17: Vergleich der modellierten Partikelanzahlverteilungen mit den OPC-Messungen der *University of Wyoming* über Laramie (41°N , 105°W) in verschiedenen Druckniveaus der Stratosphäre. Die Modelldaten (rot) basieren auf zonalen Jahresmitteln des Jahres 11. Die OPC-Messungen (schwarz) werden repräsentiert vom Median aller verfügbaren Daten des Jahres 2006, die mit den jeweiligen Modellschichten korrespondieren, sowie von den jeweiligen Minimal- und Maximalwerten in den entsprechenden Kanälen der Instrumente.

durch Sedimentation in 10 km Höhe nur etwa 5 % der Gesamtaerosolmasse beeinflusst wird, zu der im wesentlichen Partikel mit $R > 0.1 \mu\text{m}$ beitragen.

Die oben beschriebenen Charakteristika bezüglich des Vergleichs der Partikelkonzentrationen im *Accumulation Mode* folgen denen des in Timmreck (2001) gezeigten Vergleichs von ECHAM4-SAM und dem OPC-Datensatz in 24 km Höhe ($\sim 30 \text{ hPa}$), der anhand von vier beliebig ausgewählten Messungen und den dazu korrespondierenden Monatsmitteln des Modells für die Post-Pinatubo-Zeit vor 2001 erstellt worden ist. Timmreck (2001) dokumentiert für ECHAM4-SAM bimodale Spektren mit Moderradien von $0.01 - 0.05 \mu\text{m}$ und $0.15 \mu\text{m}$, vergleicht die modellierten Anzahlverteilungen jedoch mit den im Wyoming-Datensatz enthaltenen gefitteten Partikelanzahlspektren, welche aus den gemessenen Konzentrationen der einzelnen OPC-Kanäle abgeleitet werden. Die vergleichende Interpretation zweier Datensätze so unterschiedlicher Natur ist generell schwierig. An dieser Stelle seien aber weitere Charakteristika des OPC-Vergleichs von ECHAM4-SAM in Timmreck (2001) genannt, da entsprechende Daten anderer Modelle für eine Validierung dieser Art nicht zur Verfügung stehen. Die von ECHAM4-SAM und MAECHAM5-SAM2 modellierten Spektren weisen in 24 km Höhe einen im Mittel geringen Einfluss von Partikeln im *Nucleation Mode* auf die Gesamtanzahlkonzentrationen auf. Besonders in den Sommermonaten zeigt ECHAM4-SAM signifikant höhere CN-Konzentrationen gegenüber dem OPC-Instrument, MAECHAM5-SAM2 zeigt hier in 30 hPa, wie oben bereits angesprochen, ein mit den OPC-Daten übereinstimmendes Verhalten. Die Abweichung bei großen Partikeln $> 0.7 \mu\text{m}$ gegenüber den Beobachtungen fällt in MAECHAM5-SAM2 geringer aus als im Vorgängermodell.

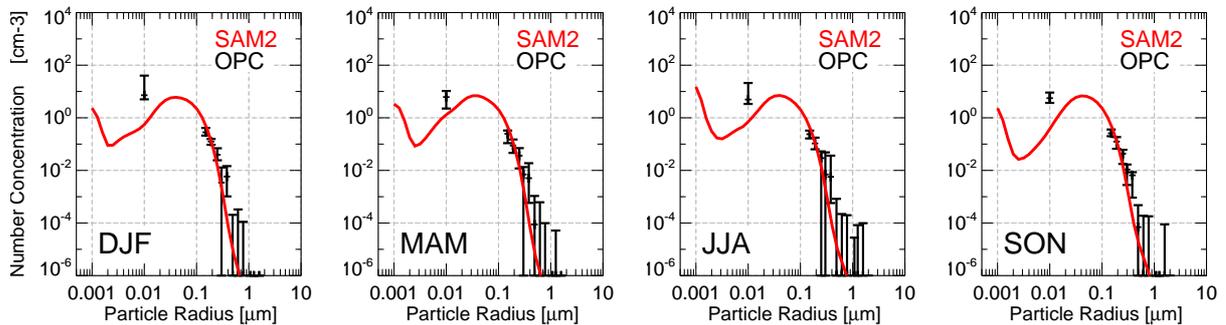


Abbildung 5.18: Wie 5.17, aber hier exemplarisch für 50 hPa (~ 20 km) anhand der Saisonalität der elfjährigen Modellklimatologie (rot). Die OPC-Daten (schwarz) basieren auf dem Median aller Messungen der entsprechenden Monate in den Jahren 1998 bis 2006.

Die saisonale Variabilität der Partikelanzahlkonzentrationen in zentralen Bereichen der Aerosolschicht ist in den von MAECHAM5–SAM2 modellierten Partikelanzahlspektren gering, wie Abbildung 5.18 zeigt. Der OPC-Vergleich in Abbildung 5.18 erfolgt auf Basis saisonaler Mittel exemplarisch für 50 hPa (~ 20 km), in welcher die jahreszeitlichen Schwankungen in den modellierten Größenverteilungen am stärksten ausgeprägt sind. Die entsprechenden Verhältnisse in anderen Modellschichten fallen geringer aus und sollen an dieser Stelle nicht wiedergegeben werden. Grundlage der Modelldaten in Abbildung 5.18 ist die elfjährige Klimatologie der mit Laramie, WY korrespondierenden Gitterzellen des Modells. Für die OPC-Daten wurden alle von 1998 bis 2006 verfügbaren Messungen herangezogen (siehe Tabelle D.1). Sie werden für jeden Kanal wie in Abbildung 5.17 vom Median der Messungen und den jeweiligen Maxima und Minima repräsentiert.

Die jahreszeitliche Variabilität in 50 hPa ist sowohl in den Messungen als auch in den Modelldaten nur gering ausgeprägt. Lediglich eine erhöhte Schwankungsbreite in den CN-Messungen sowie eine etwas höhere interannuale Variabilität in den Messungen der Kanäle, die Partikel mit $R > 0.2 \mu\text{m}$ detektieren, lassen sich feststellen.

Im Modell zeigt sich zudem ein signifikanter Einfluss der jahreszeitlichen Schwankungen in der Anzahl der Partikelnuclei ($R \approx 1$ nm), der zwischen den Sommer- und Wintermonaten um etwa eine Größenordnung variiert und sein Maximum in den Sommermonaten erreicht. Ebenfalls einem deutlichen Einfluss unterliegt der Betrag des modellierten Minimums zwischen den beiden Moden, das sich bei ca. 2 bis 3 nm einstellt. Die Absolutgröße dieses Minimums variiert ebenfalls um etwa eine Größenordnung.

Effektiver Radius

Wie bereits diskutiert, weisen die modellierten Partikelgrößenparameter Oberflächen- und Volumendichte und der sich daraus ergebende effektive Radius eine starke Abhängigkeit von dem zur Integration herangezogenen Partikelgrößenbereich des Modells auf. Dies wird in Abbildung 5.19 deutlich, in der die vertikalen Verteilungen der modellierten und der aus dem Wyoming-OPC-Datensatz abgeleiteten effektiven Radien gegenübergestellt werden.

Die Modelldaten basieren auf zonalen Jahresmitteln, die mit den entsprechenden OPC-Daten der Jahre 1998 bis 2006 korrespondieren (Messungen von 2004 sind nicht verfügbar). Der effektive Radius der Beobachtungen berechnet sich aus den Volumen- und Oberflächendichten nach Gl. 2.1. Die VAD und

SAD des Wyoming-OPC-Datensatzes korrespondieren dabei mit den Partikelgrößenverteilungen, die durch uni- oder bimodale Fits aus den gemessenen Anzahlkonzentrationen der OPC-Kanäle abgeleitet wurden (Deshler et al., 2003a).

Dargestellt wird der Median des effektiven Radius aller Messungen eines Jahres, die Fehlerbalken repräsentieren die in die Berechnungen eingeflossenen Fehlerabschätzungen der SAD- und VAD-Fits, wie sie in (Deshler et al., 2003a) angegeben werden.

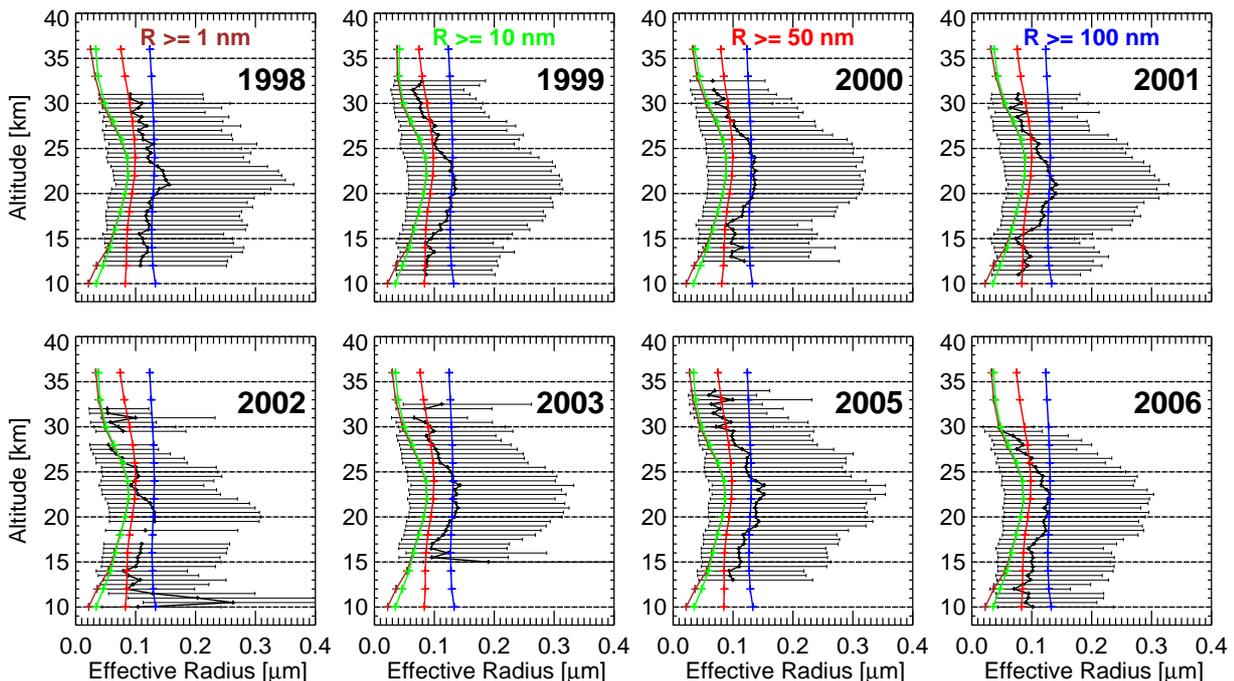


Abbildung 5.19: Gegenüberstellung der vertikalen Verteilungen der effektiven Radien im Zeitraum 1998 bis 2006. Die OPC-Messungen (schwarz) über Laramie, WY, werden repräsentiert vom Median aller Messungen des entsprechenden Jahres unter Berücksichtigung der Fehlerabschätzungen der aus den OPC-Daten abgeleiteten Volumen- und Oberflächendichten. Die Modelldaten basieren auf zonalen Jahresmitteln und werden für vier Integrationsbereiche gezeigt: (braun) $R \geq 1$ nm, (grün) $R \geq 10$ nm (CN), (rot) $R \geq 50$ nm und (blau) $R \geq 100$ nm.

Die effektiven Radien der beobachteten Partikelverteilungen schwanken zwischen $0,06 \mu\text{m}$ oberhalb von 35 km und $0,16 \mu\text{m}$ in zentralen Bereichen der Aerosolschicht in ca. 19 bis 24 km Höhe. In den Jahren 2002 und 2003 werden hohe effektive Radien $\geq 0,2 \mu\text{m}$ unterhalb von 13 km bzw. bei 15 km beobachtet, diese stellen jedoch im Kontext der gemessenen Partikelgrößen aller Jahre des stratosphärischen Hintergrundzustandes nach 1997 eher Ausnahmen dar und deuten auf Kontamination von Fremdpartikeln in den unteren Regionen der stratosphärischen Aerosolschicht hin (ammoniumneutralisierte Sulfatpartikel, mineralischer Staub, Ruß o.a.).

Während u.a. Russell et al. (1996) und Bauman et al. (2003b) zeigen, dass die aus den OPC-Messungen über Laramie abgeleiteten effektiven Radien sowohl im stratosphärischen Hintergrundzustand als auch unter dem Einfluss starker vulkanischer Belastung der Aerosolschicht um teilweise mehr als 30 % unter

den aus SAGE II abgeleiteten r_{eff} liegen, dokumentieren Kent et al. (1995), dass die effektiven Radien von SAGE II und OPC unmittelbar vor Ausbruch des Mt. Pinatubo in etwa den gleichen Betrag aufwiesen (0.13 bzw. 0.14 μm). Kent et al. (1995) verweisen aber auch auf Laramie-OPC-Messungen von 1989, deren effektive Radien 100 % über denen von SAGE II im gleichen Zeitraum lag. Bauman et al. (2003b) weisen darüber hinaus darauf hin, dass die effektiven Radien der Laramie-OPC-Messungen innerhalb der Fehlertoleranzen von r_{eff} des von Bauman et al. (2003b) angewendeten SAGE-II-*Retrieval*-Algorithmus liegen.

Die vertikalen Verteilungen der modellierten effektiven Radien in Abbildung 5.19 weisen unter Berücksichtigung des gesamten in SAM2 definierten Partikelbereichs sowie für Partikel mit $R \geq \text{CN}$ eine ähnliche qualitative Ausprägung auf wie die OPC-Messungen. Die Maxima bei 22 bis 24 km liegen jedoch in größeren Höhen als in den OPC-Messungen. Die vertikale Struktur des modellierten r_{eff} ist gering ausgeprägt, wenn Partikel im *Nucleation Mode* und *Aitken Mode* vernachlässigt werden. Wird r_{eff} aus Partikeln ab 50 nm im Radius gebildet, stimmen die modellierten r_{eff} oberhalb von 25 km und unterhalb von 17 km gut mit denen der OPC-Messungen überein. Im zentralen Bereich der Schicht unterschätzt das Modell den effektiven Radius der OPC-Messungen um 30 bis 40 % auf Basis der Integrationsgrenze bei 50 nm. Demgegenüber stimmt r_{eff} im zentralen Bereich der Aerosolschicht mit denen der Messungen gut überein, werden zur Integration Partikel mit $R \geq 0.1 \mu\text{m}$ herangezogen. Die effektiven Radien des Partikelgesamtspektrums ($R \geq 1 \text{ nm}$) liegen nur marginal unter denen, wenn r_{eff} ausschließlich aus Partikeln mit $R \geq \text{CN}$ gebildet wird. Beide Parameter liegen deutlich bis zu einer Größenordnung unter dem Median der Messungen, aber immer noch in dessen Fehlertoleranzbereich.

In den Jahren 2001, 2002 und 2006 weisen die aus den Messungen abgeleiteten r_{eff} oberhalb von 25 km mit 0.05 bis 0.06 μm in etwa den gleichen Betrag auf, wie die modellierten effektiven Radien unter Berücksichtigung ultra-feiner Partikel. In diesem Höhenbereich wird die Verweildauer großer Partikel durch Sedimentation und Verdunstung stark limitiert (Hamill et al., 1977b; Bauman et al., 2003b; SPARC, 2006), wodurch sich sowohl die Moderadien der *wahren* Partikelverteilungen als auch der effektive Radius hin zu kleineren Partikeln verschiebt.

Die relativ großen Abweichungen zwischen den modellierten und den beobachteten effektiven Radien lassen sich zum einen durch die in den Modellspektren repräsentierte hohe Zahl ultra-feiner Partikel erklären, die durch die Stärke des modellierten kondensationsbedingten Wachstums die Lage des effektiven Radius maßgeblich beeinflussen, worauf auch Weisenstein et al. (2007) bei der Modellierung der Pinatubo-Episode hinweisen. Zum anderen stellt sich auch hier die Frage einer direkten Vergleichbarkeit der Daten, denn im Gegensatz zu den Modellergebnissen bestimmen sich die effektiven Radien der OPC-Messungen nach Deshler et al. (2003a) aus den auf Basis der gemessenen Anzahlkonzentrationen gefitteten Größenverteilungen. In Abbildung 5.17 wurde gezeigt, dass die Partikelkonzentration der langjährigen OPC-Messungen in 24 km Höhe (30 hPa) von der modellierten Anzahlverteilung im SAM2-Gesamtspektrum übereinstimmend reproduziert werden kann. In Abbildung 5.19 schlägt sich dies aber nicht nieder, Ursache dafür sind die auf den Fits der Partikelgrößenverteilungen basierenden Ableitungen der Aerosolgrößenparameter VAD und SAD im Wyoming-OPC-Datensatz. Erst eine Auswertung auf Basis gleicher Methoden lässt hier weitere Schlussfolgerungen bezüglich charakteristischer Merkmale der modellierten und beobachteten Partikelgrößenverteilungen zu.

Eine erste Analyse einer solchen erweiterten Methode, die gleichermaßen auf Modell, wie auf in diskreter Form vorliegende Messdaten angewendet werden kann, soll im Folgenden kurz skizziert werden: Extrahiert man diskrete Kanäle aus den modellierten Anzahlverteilungen, die den OPC-Kanälen entsprechen, und integriert die sich aus diesen Anzahlverteilungen ergebenden Oberflächen- bzw. Volumenverteilungen ausschließlich über diese artifizielle Größenverteilung des Modells (SAD bzw. $VAD = f(r_{Kanal})$) und bestimmt mit der gleichen Methode SAD und VAD direkt aus den gemessenen Partikelanzahlen der

Wyoming-OPC-Kanäle, erhält man beispielsweise für 20 km (50 hPa) effektive Radien von Modell und OPC-Instrument, die mit 0.178 bzw. 0.199 μm :

- nur 10 % von einander abweichen,
- der OPC-Wert im langjährigen Mittel 51 % über dem des gefitteten r_{eff} liegt und
- gut mit dem nach Russell et al. (1996) für den stratosphärischen Hintergrundzustand repräsentativen, aus Ensembles verschiedener Instrumente abgeleiteten effektiven Radius von $0.17 \pm 0.07 \mu\text{m}$ übereinstimmen.

Kapitel 6

Die Variabilität des stratosphärischen Hintergrund–Aerosols unter Berücksichtigung der quasi–zweijährigen Schwingung

Die Variabilität der stratosphärischen Zirkulation wird maßgeblich geprägt von der quasi–zweijährigen Schwingung (Baldwin et al., 2001). Die QBO induziert Anomalien in der stratosphärischen Temperaturverteilung, die eine Sekundärzirkulation induziert (Holton und Tan, 1980; Plumb und Bell, 1982), welche wiederum nachhaltig die globale Verteilung photochemisch relativ langlebiger stratosphärischer Spurenstoffe beeinflusst (Gray und Chipperfield, 1990; Randel et al., 1998; Schoeberl et al., 2008). QBO–Modulationen in stratosphärischem Ozon induzieren chemische und strahlungsbedingte Rückkopplungen in den Temperatur- und Windoszillationen der QBO (u.a. Hasebe, 1994), QBO–Modulationen im extratropischen Wellenspektrum beeinflussen diffusive Mischungsprozesse sowohl in der tropischen als auch der extratropischen Stratosphäre (u.a. O’Sullivan und Chen, 1996; Shuckburgh et al., 2001).

QBO–Variationen in tropischen stratosphärischen Aerosolverteilungen konnten u.a. von Trepte und Hitchman (1992) nachgewiesen werden. Seit den frühen neunziger Jahren beschränken sich Arbeiten zu stratosphärischen Aerosolen mehr oder weniger auf die Referenzierung der frühen grundlegenden Arbeiten von Trepte und Hitchman (1992), Hitchman et al. (1994) und Hasebe (1994). So spielt in der Literatur die Einbeziehung der quasi–zweijährigen Schwingung in die globale bzw. stratosphärische Aerosolmodellierung derzeit so gut wie keine Rolle. Thomas (2007) untersucht die globale Strahlungsbilanz während der Pinatubo–Episode in MAECHAM5 unter Einbeziehung einer assimilierten QBO, aber anhand von vorgeschriebenen Aerosol- und Ozonklimatologien. Obwohl auf die Bedeutung der Sulfatpartikelkomposition und der Partikelgröße für heterogene Prozesse der Ozonchemie hinlänglich verwiesen wird (u.a. Hanson et al., 1994; Tabazadeh et al., 2000) und auch die Bedeutung der größen aufgelösten Modellierung von Aerosolen sowohl unter troposphärischen als auch stratosphärischen Bedingungen hinsichtlich der Wiedergabe bestimmter physikalisch–chemischer Prozesse erkannt worden ist (Carslaw et al., 1997; Ghan und Schwartz, 2007), stellt diese Arbeit der globalen Modellierung größen aufgelöster stratosphärischer

Aerosole unter Einbeziehung assimilierter Windfelder der QBO einen ersten und wichtigen Schritt in Richtung der Entwicklung eines interaktiv gekoppelten Aerosol-Chemie-Klimamodells der mittleren Atmosphäre dar.

Die in diesem Kapitel vorgestellten Untersuchungen beziehen Aerosole in die von der QBO maßgeblich bestimmte Variabilität der Stratosphäre zunächst als rein passiven Tracer ein, sodass die Analysen größtenteils qualitativen Charakter aufweisen und sich vor allem auf den Nachweis der u.a. von Trepte und Hitchman (1992) gefundenen Transportregime stratosphärischer Partikel konzentrieren. Außerdem werden erste Einblicke in QBO-Modulationen von schwefelhaltigen Gasen gegeben.

6.1 Randbedingungen des Experiments

Die Integration des Modells im Experiment mit assimilierter QBO (im Folgenden mit *QBO* indiziert) erfolgt unter den gleichen Randbedingungen, wie sie für den Kontrolllauf (im Folgenden mit *CTRL* indiziert) in Kapitel 5.1 angegeben worden sind. Gegenüber *CTRL* werden in diesem Experiment auf Beobachtungen basierende äquatoriale zonale Winde (Naujokat, 1986) während der Integration des Modells nach einem von Giorgetta und Bengtsson (1999) entwickelten Verfahren assimiliert, wie eingangs des Kapitels 4 beschrieben.

Aufgrund der Assimilation von Windfeldern aus Beobachtungen erfolgt die Modellierung der Zirkulation der Atmosphäre trotz klimatologischer unterer Randbedingungen zumindest im Bereich der äquatorialen Stratosphäre weitestgehend realitätsnah, sodass im Folgenden die Beschreibung der modellierten Eigenschaften stratosphärischer Aerosole an die zeitliche Entwicklung der beobachteten QBO im zonalen Wind gekoppelt werden kann. Dadurch wird es möglich, auf eine zeitlich unabhängige Darstellung modellierter Parameter wie in Experiment *CTRL* zu verzichten. Nichtsdestotrotz repräsentiert auch das Experiment *QBO* eine idealisierte stratosphärische Aerosolschicht ohne Strahlungsrückkopplung vulkanischer Extremereignisse, ENSO-Signale u.a..

Das QBO-Assimilationsverfahren wird nach einem dreijährigen *Spin-Up* von Januar 1990 bis Dezember 1992 zum ersten Zeitschritt des darauffolgenden Jahres (1. Januar 1993) initialisiert. Die nachfolgenden drei Simulationsjahre bis einschließlich Dezember 1995 werden nicht in die Analyse des Modells einbezogen, analysiert wird ein zum Kontrolllauf äquivalenter Zeitraum von Januar 1996 bis einschließlich Dezember 2006.

Gleichgewichtszustand der Aerosolparameter

Analog zu den in Kapitel 5.1 für den Kontrolllauf in σ -Hybrid-Schicht 21 (~ 54 hPa) gezeigten zeitlichen Entwicklungen ausgewählter Aerosolparameter werden in Abbildung 6.1 exemplarisch zwei dieser Parameter unter dem Einfluss der assimilierten QBO wiederholt gezeigt: Das Gesamtaerosolmischungsverhältnis und die Gesamtanzahlkonzentration von Partikeln im *Accumulation Mode*. Wie alle anderen hier nicht dargestellten Parameter tendieren beide in einen Gleichgewichtszustand, der dem des Experiments *CTRL* entspricht. Dies gilt ebenso für alle Modellschichten, auf deren Wiedergabe an dieser Stelle ebenfalls verzichtet werden soll.

Die QBO-Assimilation wirkt sich vor allem auf die Amplituden der zeitlichen Variation der Parameter aus, wie aus den extratropischen Profilen des Gesamtmassemischungsverhältnisses ersichtlich wird vergleicht man Abbildung 6.1 (a) gegenüber dem Kontrolllauf in Abbildung 5.1 (d). Am Äquator (1.4°N) ist das

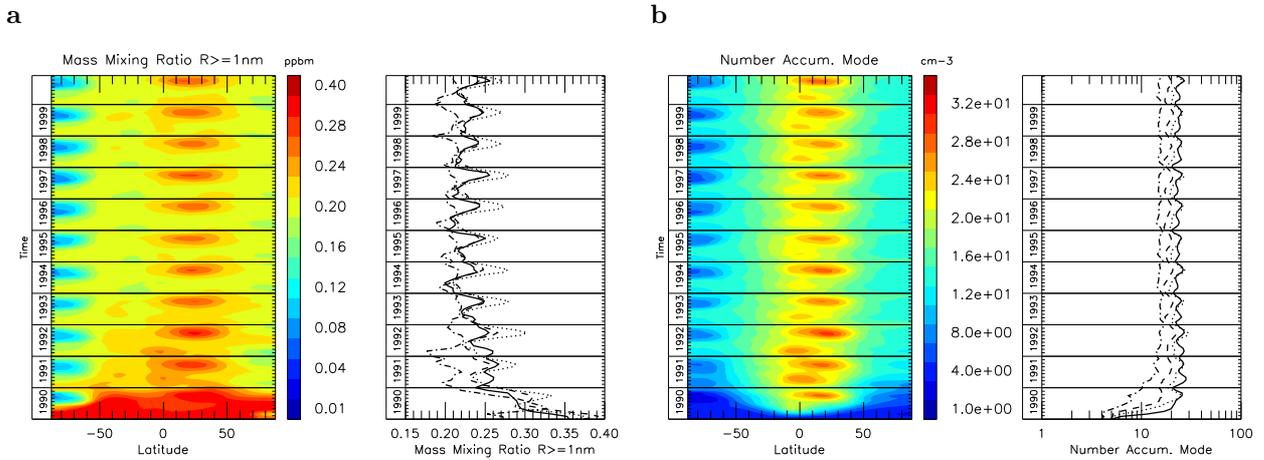


Abbildung 6.1: Einschwingverhalten des Experiments mit assimilierter QBO anhand der zeitlichen Entwicklung zonaler Monatsmittel (die jeweils linken Diagramme) in Modellschicht 21 (~ 54 hPa) für das (a) Aerosolmassenmischungsverhältnis des Partikelgesamtspektrums und (b) die Partikelanzahl, integriert über den *Accumulation Mode*. Die jeweils rechten Diagramme zeigen die entsprechenden Entwicklungen der Parameter an vier Breiten der nördlichen Hemisphäre: (durchgehende Linie) 1.4°N , (gestrichelt) 29.3°N , (gestrichelt-punktiert) 43.2°N und (strich-punktiert) 76.7°N .

Gesamtmassenmischungsverhältnis signifikant niedriger als im Kontrolllauf und in den hohen Breiten (76.7°N) im Mittel höher. In Kapitel 6.2.4 wird der Einfluss der QBO-Assimilation auf die modellierte Variabilität verschiedener Aerosolparameter näher untersucht.

Der Gleichgewichtszustand des QBO-assimilierten Modells weicht einige Prozent vom Gleichgewichtszustand des Kontrolllaufs ab, wie aus Tabelle C.1 (Anhang C) ersichtlich wird (die globale Schwefelmassenbilanz ist während der gesamten Integration geschlossen). Während die Abweichung der Jahresmittel der prognostischen Aerosolkonzentration in Experiment *CTRL* zwischen den Jahren 1 und 11 im Analysezeitraum weniger als 2 % beträgt, lassen sich im Experiment *QBO* in zentralen Bereichen der Aerosolschicht entsprechende Abweichungen von 3 bis 7 % feststellen. Da andere Momente des Partikelspektrums in SAM2 nicht prognostisch behandelt werden, weichen diese entsprechend stärker vom Ausgangszeitraum der Analysen ab. Die Partikelanzahlkonzentration des Gesamtspektrums zeigt sich am stärksten affektiert, entsprechende Abweichungen in Experiment *QBO* können bis zu ~ 20 % betragen, gegenüber ~ 6 % im Kontrolllauf.

Die im Folgenden gezeigten Abbildungen des QBO-Einflusses auf stratosphärische Aerosole lassen vermuten, dass QBO-Assimilation in der hier verwendeten Modellauflösung T42/L39 eine Art zyklisches Gleichgewicht in den prognostischen Aerosolmodellparametern bedingt, der Analysezeitraum von 11 Jahren ist jedoch zu kurz, um einen signifikanten Trend in entsprechenden Daten nachzuweisen. Am stärksten von Schwankungen mit einer Periode des mehrfachen der QBO-Periode unterliegen Regionen oberhalb von 10 hPa (nicht abgebildet), in denen Sulfataerosolpartikel jedoch starken Verdunstungsflüssen ausgesetzt sind, welche die Partikelmasse vollständig zurück in die Gasphase transferieren. Interaktionen von QBO, SAO, (mikro-)physikalischen und chemischen Prozessen sind möglicherweise die Ursache dieser leichten Modulationen im Quasi-Gleichgewicht. Eine Analyse dieser Vorgänge ist jedoch nicht Gegenstand dieser Arbeit, möglicherweise relativieren sich auch die Modulationen am oberen Rand der stratosphärischen Aerosolschicht unter höherer vertikaler Auflösung des Modells, z.B. in L90.

6.2 Ergebnisse und Diskussion

In den folgenden Kapiteln werden die Einflüsse der QBO-Assimilation auf die Modellierung stratosphärischer Aerosole und deren Vorläufergase untersucht. Wie gezeigt werden wird, beeinflusst die die Residualzirkulation überlagernde Zirkulation der QBO maßgeblich die Verteilung der Partikel und den anderer Spurenstoffe auch im sogenannten Hintergrundzustand der stratosphärischen Aerosolschicht. Der stärksten transportbedingten Beeinflussung unterliegen Partikel in der tropischen Stratosphäre, es zeigen sich jedoch auch starke extratropische Signale in verschiedensten Aerosolparametern, welche eindeutig auf die QBO zurückzuführen sind.

Um den Ausgangspunkt dieser QBO-induzierten Modulationen besser verstehen zu können, werden zunächst charakteristische Eigenschaften der QBO-modulierten Zirkulation der Stratosphäre vorgestellt. Auf die Modellierung des Wasserdampfeintrags der Stratosphäre wird explizit eingegangen, da die stratosphärische Feuchte maßgeblich die Komposition stratosphärischer Aerosole bestimmt und zudem auch in mikrophysikalischen Prozessen keine unerhebliche Rolle spielt. Ein erster Einblick in QBO-Modulationen von Sulfataerosolvorläufergasen wird gegeben, bevor die QBO-Einflüsse in der äquatorialen Stratosphäre und den Extratropen vorgestellt werden. QBO-modulierte Transportprozesse werden untersucht, und einige der wenigen verfügbaren Stationsdaten, die QBO-Einflüsse in stratosphärischen Aerosolen nachweisen konnten, werden in die Analysen des Modells eingebunden.

6.2.1 QBO-Effekte auf die Zirkulation der Stratosphäre

Zonaler Wind

Als Referenzphänomen der stratosphärischen Variabilität wird im allgemeinen die quasi-zweijährige Schwingung im zonalen Wind der äquatorialen Stratosphäre gesehen, die gekennzeichnet ist durch zeitlich alternierende Phasen von zwischen ~ 3 und 100 hPa absteigenden östlich und westlich gerichteten zonalen Winden, wobei die Periode der Schwingung zwischen 22 und 34 Monaten liegt (u.a. Baldwin et al., 2001). In Abbildung 6.2 wird die zeitliche Entwicklung der in den Experimenten *CTRL* und *QBO* modellierten zonalen Winde bei 1.4°N im gesamten Analysezeitraum von 1996 bis 2006 dargestellt. Während sich im nicht-QBO-assimilierten Experiment (*CTRL*, Abbildung 6.2, a) keine QBO entwickelt, wird im QBO-assimilierten Experiment (*QBO*, Abbildung 6.2, b) eine QBO mit einer Periode zwischen 24 und 32 Monaten generiert, die der Periode der assimilierten zonalen Winde (Abbildung 6.2, c) entspricht. Die Asymmetrie in den Windstärken der Phasen mit höheren Windgeschwindigkeiten in der östlichen Phase kann in Experiment *QBO* reproduziert werden, wenngleich die Beträge der östlichen und westlichen Winde etwas geringer ausfallen als in den Beobachtungen - ein Effekt, der auf die Periode der Assimilation von beobachteten Windfeldern zurückzuführen ist und mit einer Assimilationsfrequenz von 10 d^{-1} nicht zu tief in die Modelldynamik eingreift.

Die zeitliche Entwicklung des zonalen Winds im Experiment *CTRL* wird geprägt von der halbjährlichen Oszillation (*Semi-Annual Oscillation*, SAO) der oberen Stratosphäre und Mesosphäre, in der westliche Winde bis etwa 30 hPa abwärts progrieren. In der unteren äquatorialen Stratosphäre des Experiments *CTRL* dominieren schwach östliche Winde von 10 bis max. 20 m s^{-1} .

Aufgrund der QBO-induzierten Filterung vertikal aufwärts propagierender Wellen variiert in Experiment *QBO* die SAO in Abhängigkeit der QBO-Phase, wobei westliche SAO-Phasen während westlichen QBO-Phasen tiefer propagieren. Struktur und Stärke der SAO-Phasen werden im QBO-assimilierten Modell

ähnlich wiedergegeben wie in der L90-Version von MAECHAM5 (Giorgetta et al., 2002, 2006). Dies gilt auch für das an westliche SAO-Phasen gekoppelte Einsetzen abwärtsgerichtet propagierender westlicher QBO-Phasen (Giorgetta et al., 2006; Lelieveld et al., 2007).

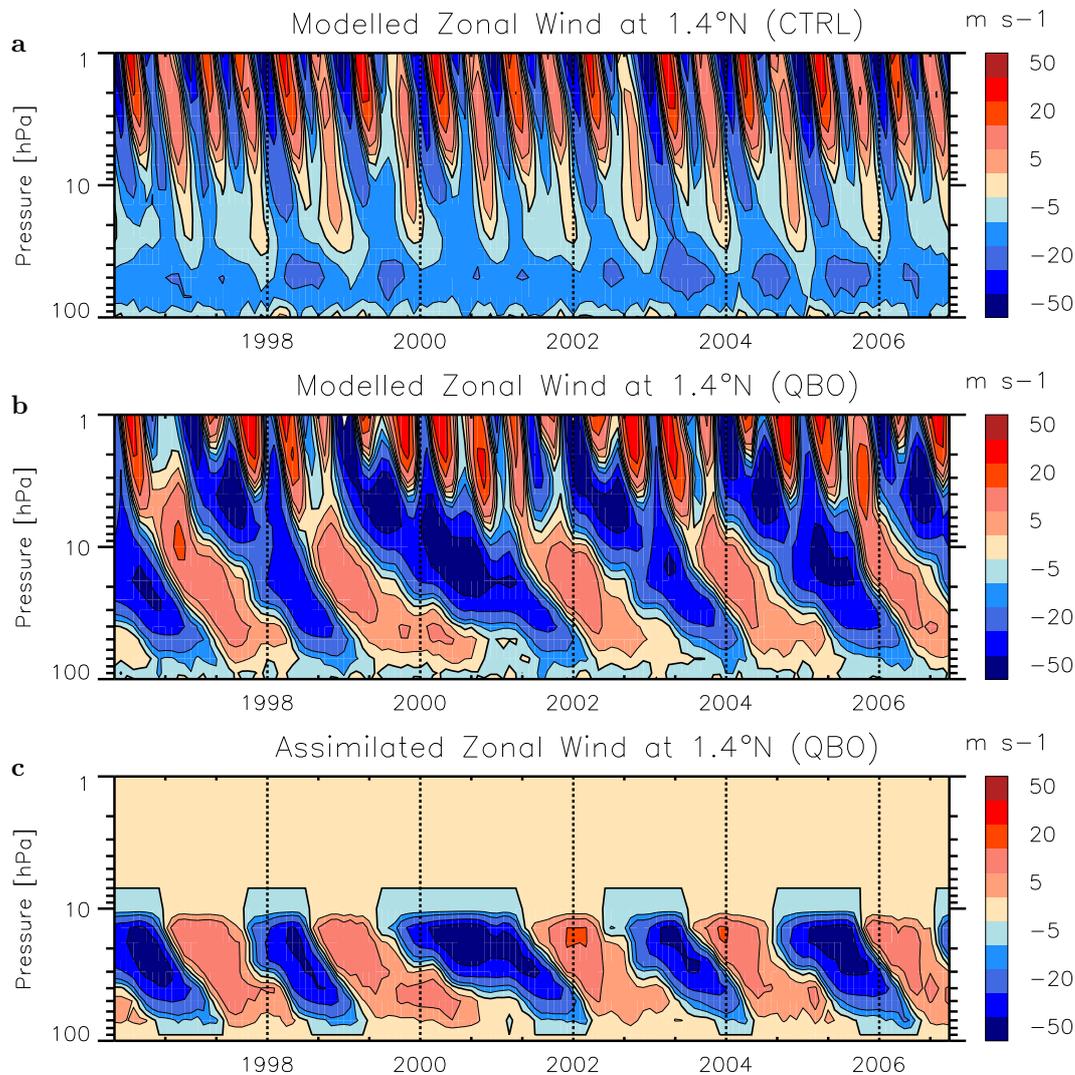


Abbildung 6.2: Die zeitliche Entwicklung des modellierten zonalen Winds am Äquator bei 1.4°N auf Basis zonaler Monatsmittel: (a) für den Kontrolllauf (*CTRL*) und (b) mit assimilierter QBO (*QBO*). (c) zeigt die auf Beobachtungen in Singapore (Naujokat, 1986) basierenden monatlich zonal gemittelten zonalen Winde am Äquator des Datensatzes (Marco Giorgetta, persönliche Mitteilung), der die Grundlage der QBO-Assimilation in Experiment *QBO* darstellt.

Abbildung 6.3 zeigt die elfjährige Klimatologie des saisonal und zonal gemittelten zonalen Winds im QBO-assimilierten Experiment. Wie Giorgetta et al. (2006) in einer Analyse der in L90 die QBO generierenden und der in L39 die QBO nicht reproduzierenden Version von MAECHAM5 zeigen konnten, beeinflusst die vertikale Auflösung die Stärke der stratosphärischen Jets nicht signifikant. Aufgrund der weitaus höheren vertikalen Auflösung lassen sich jedoch in L90 feinere räumliche Strukturen in den Zirkulationszellen feststellen. Die Charakteristika der in Abbildung 6.3 dargestellten Zirkulationsmuster für DJF und JJA

stimmen sowohl in den Beträgen als auch in ihrer räumlichen Struktur mit denen von L39 für DJF und JJA in Giorgetta et al. (2006) gezeigten überein. Giorgetta et al. (2006) stellten weiterhin fest, dass die Stärke der östlichen Jets in den Sommerhemisphären der Stratosphäre sowohl in L39 (Standardversion ohne QBO) als auch in L90 gegenüber ERA40 überschätzt werden, was sich auf beide hier vorgestellte Experimente *CTRL* und *QBO* übertragen lässt.

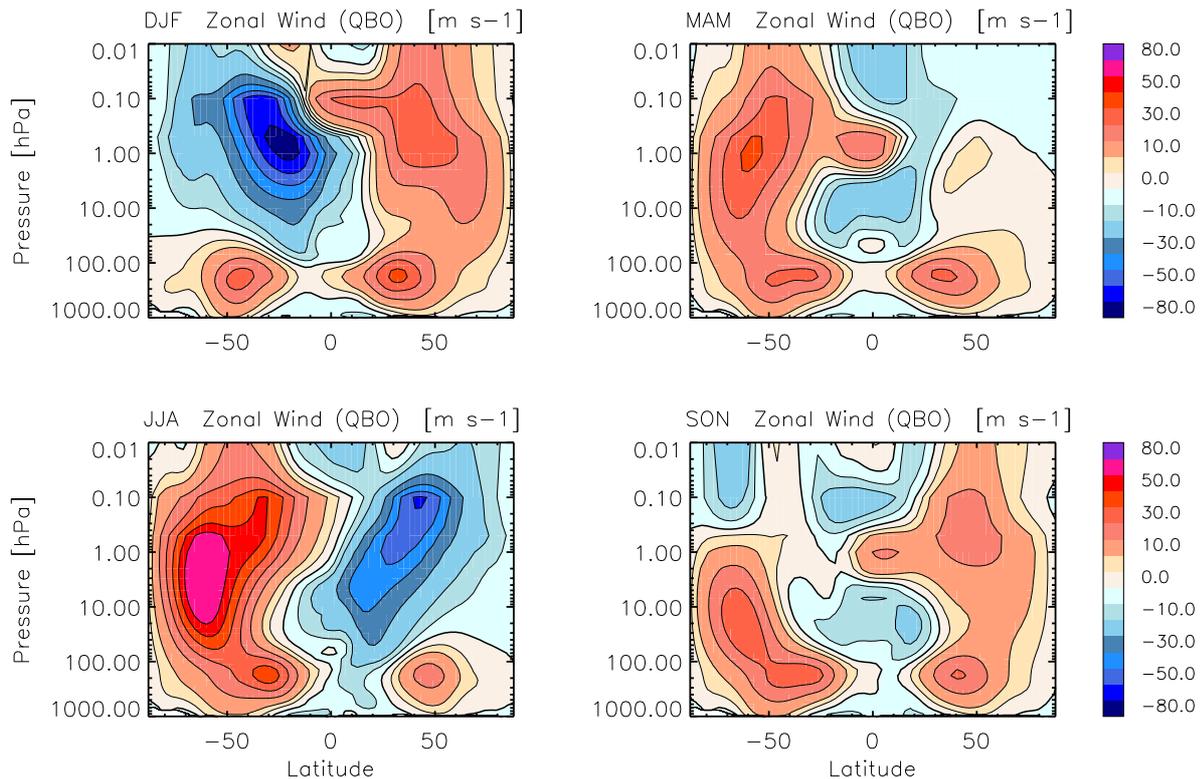


Abbildung 6.3: Saisonale zonale Mittel der elfjährigen Klimatologie im zonalen Wind des Experiments *QBO*: (a) DJF, (b) MAM, (c) JJA und (d) SON.

Experiment *QBO* weist eine weitere Charakteristik auf, die in Übereinstimmung mit Giorgetta et al. (2006) von der MAECHAM5-Standardversion in L39 ohne QBO-Assimilation nicht reproduziert werden kann: In den Frühjahrs- und Sommermonaten werden schwach westliche zonale Winde etwas nördlich des Äquators bei ~ 50 hPa modelliert, welche Anomalien der Residualzirkulation verursachen, die wiederum von entscheidender Bedeutung für die Modellierung des aufwärtsgerichteten Tracertransports am Äquator sind. Diese Strukturen werden in Experiment *QBO* in den Frühjahrs- und Sommermonaten wiedergegeben, die entsprechende Dipol-Charakteristik der L90-Version in DJF zeigt sich in Experiment *QBO* jedoch nicht.

Stellt man die Standardabweichungen im zonalen Wind der elfjährigen Klimatologien beider Experimente gegenüber (Abbildung 6.4) zeigt sich im Bereich der äquatorialen unteren Stratosphäre sowie äquatorialsymmetrisch zwischen 25 und 3 hPa eine signifikant höhere Variabilität in der Modellierung des zonalen Winds im QBO-assimilierten Experiment. Die lokale Struktur dieses Gebiets hoher zonaler Windvariabilität am Äquator lässt sich ebenfalls in ERA40- und MAECHAM5/L90-Daten nachweisen (beides nicht dargestellt, es sei auf entsprechende Analysen in Giorgetta et al. (2006) verwiesen). Der Betrag dieser erhöhten zonalen Windvariabilität im QBO-assimilierten Experiment liegt zwischen beiden Referenzen.

Experiment *CTRL* weist entsprechende Strukturen nicht auf, da die QBO dort nicht reproduziert werden kann.

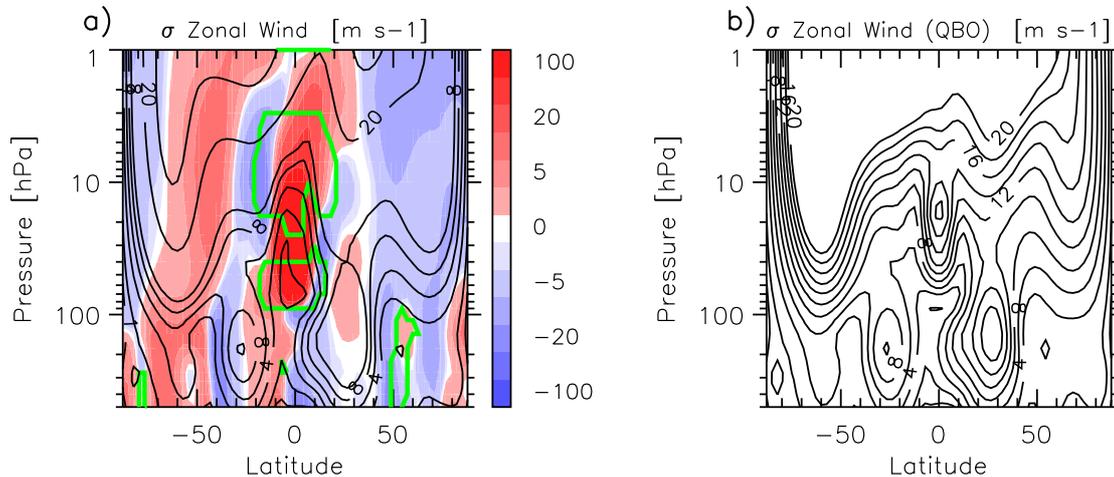


Abbildung 6.4: Variabilität der zonalen Mittel der elfjährigen Klimatologien im modellierten zonalen Wind: (a) Prozentualer Unterschied in den Standardabweichungen σ der Experimente mit und ohne assimilierter QBO und (b) Standardabweichung im zonalen Wind des Experiments *QBO* [m s^{-1}]. Schwarze Konturen in (a) repräsentieren die Standardabweichung des Experiments *CTRL*, grüne Konturen markieren das 90%ige Signifikanzniveau in den prozentualen Abweichungen in σ beider Experimente.

Temperatur

Vertikale Gradienten im zonalen Wind implizieren meridionale Temperaturanomalien zur Aufrechterhaltung des thermischen Windgleichgewichts (Andrews et al., 1987). Ein positiver vertikaler Gradient im zonalen Wind am Äquator, wie er während der Transition von östlicher QBO-Phase zu westlicher QBO-Phase auftritt, induziert positive Temperaturanomalien, negative $\partial u/\partial z$ entsprechend negative $\partial T/\partial y$ (u.a. Baldwin et al., 2001). Abbildung 6.5 zeigt diesen Zusammenhang anhand der in Experiment *QBO* modellierten Temperaturanomalien von 3 K bzw. -4 K in den westlichen bzw. östlichen QBO-Scherphasen. Gegenüber den Reanalysedaten von Randel et al. (1999) lässt sich eine gute quantitative Übereinstimmung feststellen (Zeitraum 1996 bis 1999). Gegenüber ERA40 bzw. MAECHAM5 T42/L90 (Giorgetta et al., 2006, *Composites* der Jahre 1979–1999 bzw. 30 Jahre klimatologischer Integration) beträgt die Abweichung in den östlichen QBO-Scherphasen ca. 1 K (ERA40) bzw. 2 K (MAECHAM5 L90), in den westlichen Scherphasen ist gute quantitative Übereinstimmung gegenüber ERA40 festzustellen. Gegenüber MAECHAM5 L90 beträgt die Abweichung ca. 1 K, jeweils gegenüber den Zonen maximaler äquatorialer Temperaturanomalien, die in 12–15 hPa während der östlichen bzw. in 25 hPa während der westlichen Scherphase auftreten.

Entsprechende Temperaturanomalien können in Experiment *CTRL* aufgrund der fehlenden QBO nicht reproduziert werden, siehe Anhang E, Abbildung E.1. Im klimatologischen Langzeitmittel (Anhang E, Abbildung E.3) ist Experiment *QBO* im Bereich der äquatorialen Tropopause signifikant 1 K wärmer als Experiment *CTRL*, zwischen 40 hPa und 8 hPa dagegen 1 bis 1.5 K kälter (vergleiche auch Abbildung 6.10).

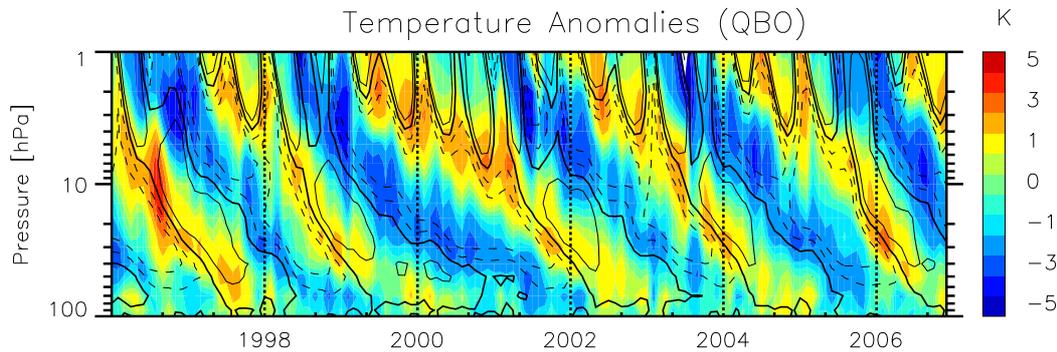


Abbildung 6.5: Die zeitliche Entwicklung der modellierten Temperaturanomalien bei 1.4°N anhand zonaler Monatsmittel. Die Konturlinien repräsentieren die modellierte QBO im zonalen Wind.

QBO-induzierte Temperaturanomalien beeinflussen den Transport atmosphärischer Spurenstoffe in mehrerer Hinsicht: Sie beeinflussen den Vertikaltransport von Spurenstoffen am Äquator. Abkühlung führt zu Phasen stärkeren tropischen Vertikaltransports, entsprechend verlangsamt sich dieser unter auftretenden positiven Temperaturanomalien. Der Meridionaltransport von Spurenstoffen am Äquator wird geprägt von Zonen meridionaler Konvergenz und Divergenz, die sich je nach QBO-Scherphase oberhalb bzw. unterhalb der Temperaturanomalien ausbilden, wodurch sich eine in Verbindung mit der QBO stehende Meridionalzirkulation (*Secondary Meridional Circulation, SMC*) induziert. Diese ist gekennzeichnet von antikorrelierten tropischen und extratropischen Temperaturanomalien und einer damit einhergehenden Antikorrelation im Vertikaltransport, d.h. absinkende, sich erwärmende Luftmassen am Äquator in der westlichen QBO-Scherphase koinzidieren mit aufwärtsgerichteten, sich abkühlenden extratropischen Luftmassen. Diese zu den tropischen Signalen kohärenten extratropischen Temperaturanomalien erreichen ihr Maximum in den Winterhemisphären bei 20 bis 40° geografischen Breite (u.a. Randel et al., 1999). Der Vollständigkeit halber soll nicht unerwähnt bleiben, dass sich in den Frühjahrsmonaten der Polarregionen QBO-induzierte Temperaturanomalien nachweisen lassen, siehe auch Anhang E, Abbildung E.3. Die statistische Signifikanz dieser Signale ist jedoch, zumindest teilweise nicht gewährleistet (Abbildungen 6.10, siehe auch Baldwin et al., 2001), sodass damit verbundene Effekte auf den Transport von Spurenstoffen im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter betrachtet werden sollen.

Zahlreiche Arbeiten heben die Bedeutung der SMC auf den Meridionaltransport atmosphärischer Spurenstoffe hervor. Eine Übersicht erfolgt u.a. in Baldwin et al. (2001), zu einem späteren Zeitpunkt soll näher darauf eingegangen werden. Zunächst folgen jedoch einige Ausführungen zu den QBO-Modulationen in den modellierten Wasserdampfkonzentrationen, einer der wichtigsten stratosphärischen Spurenstoffe und zudem von essentieller Bedeutung für aerosol-mikrophysikalische Prozesse sowie für die thermodynamische Stabilität stratosphärischer Sulfataerosole (Hamill et al., 1977a,b; Brock et al., 1995; Seinfeld und Pandis, 1998).

Wasserdampf

Der aufwärts gerichtete Transport von Wasserdampf durch die tropischen Tropopause (*Tropical Tropopause Layer, TTL*) wird von charakteristischen Anomalien gekennzeichnet, die mit dem jährlichen Zyklus der Temperaturentwicklung in der unteren Stratosphäre in einem engen Zusammenhang stehen (Mote et al., 1996). Negative Anomalien dieses sogenannten *Tape-Recorder*-Signals werden in den ersten Monaten eines Jahres generiert, positive Anomalien in den borealen Sommermonaten. Beobachtungen

zeigen, dass diese Anomalien ein bis eineinhalb Jahre aufwärts propagieren und in 20 bis 10 hPa dissipieren (Mote et al., 1996). Randel et al. (2004) zeigten anhand von HALOE-Beobachtungen, dass Wasserdampf-anomalien nahe der tropischen Tropopause mit Temperaturanomalien korreliert sind, die auf Modulationen durch die quasi-zweijährige Schwingung zurückzuführen sind.

In Abbildung 6.6 sind die in Experiment *QBO* modellierten äquatorialen Wasserdampfkonzentrationen der Stratosphäre und die mit der QBO in Verbindung stehenden Anomalien in stratosphärischem H_2O dargestellt. Das Modell reproduziert die periodisch beobachteten niedrigen Wasserdampfkonzentrationen von < 2 ppmv im Bereich der tropischen Tropopause (u.a. Kley et al., 1979; Lelieveld et al., 2007). Werden die modellierten Anomalien in H_2O den modellierten Temperaturanomalien am Äquator (Abbildung 6.5) gegenübergestellt, zeigt sich, dass positive (negative) Anomalien im stratosphärischen Wasserdampf mit positiven (negativen) Temperaturanomalien einhergehen, die ihrerseits über das thermische Windgleichgewicht mit oberhalb der Tropopause dissipierenden östlich (westlich) gerichteten zonalen Winden der QBO verknüpft sind.

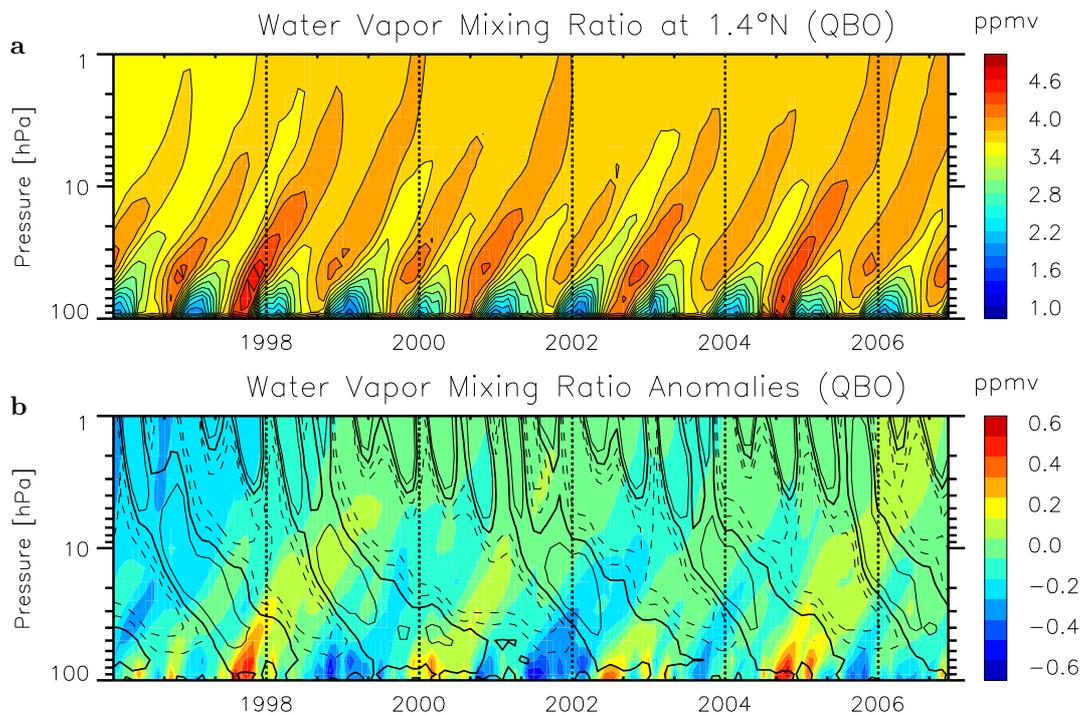


Abbildung 6.6: wie 6.5, aber hier für (a) die Konzentration des stratosphärischen Wasserdampfs und (b) der entsprechenden Anomalien.

Das charakteristische *Tape-Recorder*-Signal in den modellierten äquatorialen H_2O -Konzentrationen offenbart sich im klimatologischen Mittel, welches in Abbildung 6.7 für beide Experimente gezeigt wird. Die aus Beobachtungen (u.a. Mote et al., 1996; Schoeberl et al., 2008) bekannten und in verschiedenen Modellen (u.a. Eyring et al., 2006; Giorgetta et al., 2006; Lelieveld et al., 2007) wiedergegebenen Charakteristika der in den borealen Wintermonaten generierten negativen Anomalien und der in den borealen Sommermonaten generierten positiven Anomalien sowie der Dissipation dieser in ~ 10 hPa werden von MAECHAM5-SAM2 reproduziert. Die Verweildauer der modellierten *Tape-Recorder*-Signale bis zu ihrer Dissipation ist in beiden Experimenten um einige Monate geringer, als es Beobachtungen beispielsweise von Mote et al. (1996) zeigen. Die Wasserdampf-anomalien propagieren zudem schneller aufwärts

als in der vertikal hochaufgelösten Modellversion MAECHAM5/L90 (Giorgetta et al., 2006). Letztgenannte Autoren weisen darauf hin, dass MAECHAM5 in der die QBO nicht generierenden vertikalen Auflösung L39 die aufwärtsgerichtete Propagation des stratosphärischen Wasserdampfeintrags mit einer Verweildauer von 8 bis 12 Monaten überschätzt, was sich in Experiment *CTRL* bestätigt (8 bis 11 Monate, Abbildung 6.7, b). In Experiment *QBO* dissipieren die Anomalien etwa 2 bis 3 Monate später als im Kontrolllauf, die maximale Verweildauer des Signals beträgt 11 bis 13 Monate.

Da sich in dieser Arbeit die Berücksichtigung der Chemie der Atmosphäre auf die Schwefelchemiezyklen der Troposphäre und Stratosphäre beschränkt und die Integration des Modells unter klimatologisch mittleren Randbedingungen erfolgt, können aus Beobachtungen bekannte Charakteristika (u.a. Randel et al., 2006; Schoeberl et al., 2008) wie erhöhte Wasserdampf-anomalien bei ~ 3 hPa (Methan-Oxidation) oder der 2000/2001 einsetzende negative Trend im stratosphärischen Wasserdampfeintrag nicht in den hier vorgestellten Experimenten reproduziert werden. Der Vollständigkeit halber werden die zu Abbildung 6.6 korrespondierenden modellierten Wasserdampfkonzentrationen und -Anomalien im QBO-freien Experiment *CTRL* in Anhang E, Abbildung E.1 (b) und (c) dargestellt.

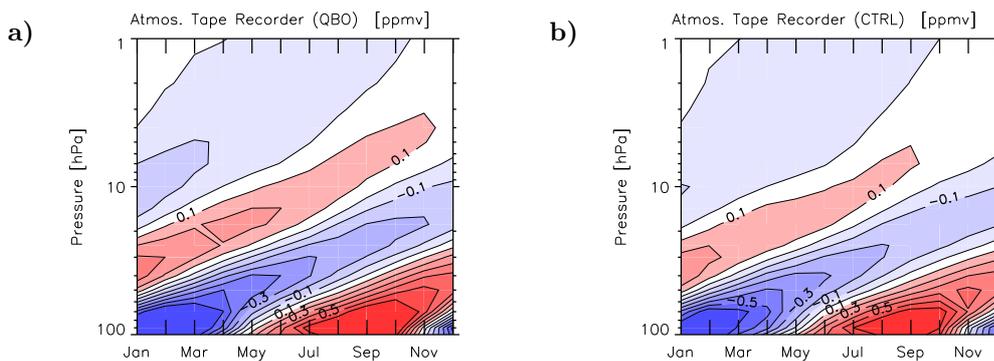


Abbildung 6.7: Die klimatologisch mittleren *Tape-Recorder*-Signale in den modellierten Wasserdampfkonzentrationen bei 1.4°N für (a) das QBO-assimilierte Experiment (*QBO*) und (b) für den Kontrolllauf (*CTRL*).

Abbildung 6.8 zeigt für das QBO-assimilierte Experiment die elfjährige Klimatologie des saisonal und zonal gemittelten Wasserdampfgehalts der Stratosphäre. Diese wird dominiert von einem in den Sommermonaten in der TTL beginnenden Zyklus des Wasserdampfeintrags in den Extratropen, der in den Wintermonaten in den Tropen/Subtropen seinen Abschluss findet und dessen Signal bis in eine Höhe von ca. 20 hPa nachweisbar ist. Dieser extratropische Wasserdampfeintrag erfolgt durch in die untere Stratosphäre penetrierende Tiefenkonvektion im Einflussbereich des asiatischen Monsuns, insbesondere über der Tibetischen Hochebene (nicht dargestellt). Der unter tiefen Tropopausen-Temperaturen nicht in Eiswolken gebundene Anteil des Wasserdampfs wird durch strahlungsbedingtes Heizen weiter aufwärts und in Richtung Subtropen transportiert und gelangt schließlich in den Einflussbereich des am Äquator aufwärts propagierenden *Tape-Recorders* in H_2O . Dieser extratropische Massenfluss durch die Tropopause steht nicht im Widerspruch zum Vertikaltransport von Spurenstoffen in der TTL. Vielmehr heben verschiedene Arbeiten die Bedeutung dieses im Zusammenhang mit der Tiefenkonvektion stehenden Phänomens auf die effektive Dehydrierung der TTL durch Eiswolkenbildung, auf die saisonale Variabilität der stratosphärischen Feuchte und den Transport von Spurenstoffen der Stratosphäre hervor (u.a. Bannister et al., 2004; Gettelman et al., 2004; Fu et al., 2006; Lelieveld et al., 2007).

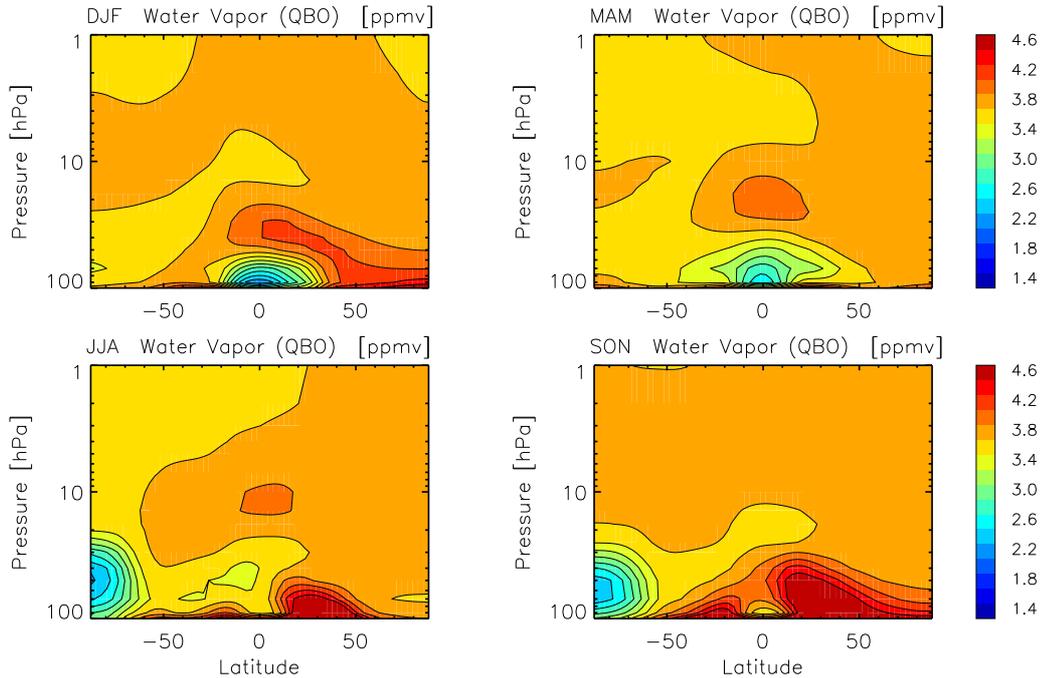


Abbildung 6.8: Saisonale zonale Mittel der elfjährigen Klimatologie von 1996 bis 2006 der in Experiment *QBO* modellierten stratosphärischen Wasserdampfkonzentration.

Inwieweit sich QBO-Modulationen auf den monsun-bedingten Wasserdampfeintrag im Modell auswirken, wird aus den Abbildungen 6.9 und 6.10 ersichtlich. Generell liegt die Wasserdampfkonzentration im QBO-assimilierten Modell mindestens 3 % über der des Kontrolllaufs, im klimatologischen Mittel dominieren QBO-Modulationen im *Tape-Recorder*-Signal mit > 50 % über die Modulationen des monsun-bedingten Wasserdampfeintrags in den Extratropen (Abbildung 6.9, d). Beide Modulationen sind statistisch signifikant, wie Abbildung 6.10 (a) zeigt.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, QBO-Assimilation in der vertikal niedrig aufgelösten Version MAECHAM5/L39 führt zu einer relativitätsnahen Beschreibung der Zirkulation der Stratosphäre und zu einer Verbesserung in der Modellierung des stratosphärischen Eintrags von Wasserdampf. Entsprechende Modelleigenschaften, wie das am Äquator aufwärts gerichtete Propagieren der Wasserdampfanomalien nähern sich aus Beobachtungen bekannten Daten an. Die Verweildauer dieser Anomalien bis zu ihrer Dissipation ist jedoch einige Monate geringer als in der vertikal hoch aufgelösten und die QBO intern generierenden Modellversion MAECHAM5/L90.

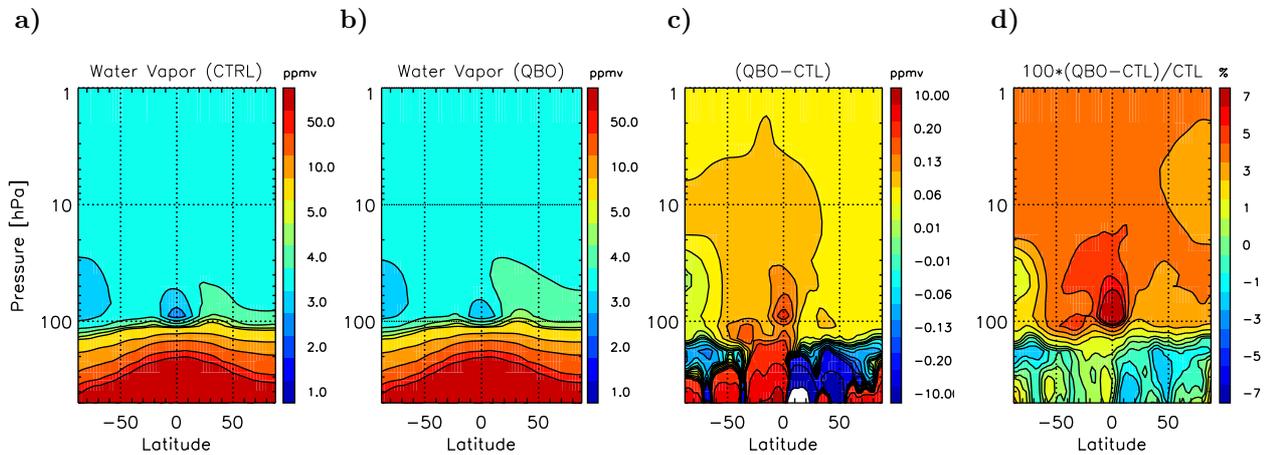


Abbildung 6.9: Klimatologische zonale Mittel des 11 Jahre umfassenden Analysezeitraums von 1996 bis 2006 in den modellierten Wasserdampfkonzentrationen: (a) im Kontrolllauf (*CTRL*), (b) im QBO-assimilierten Experiment (*QBO*), (c) Differenz und (d) relativer Unterschied beider Simulationen.

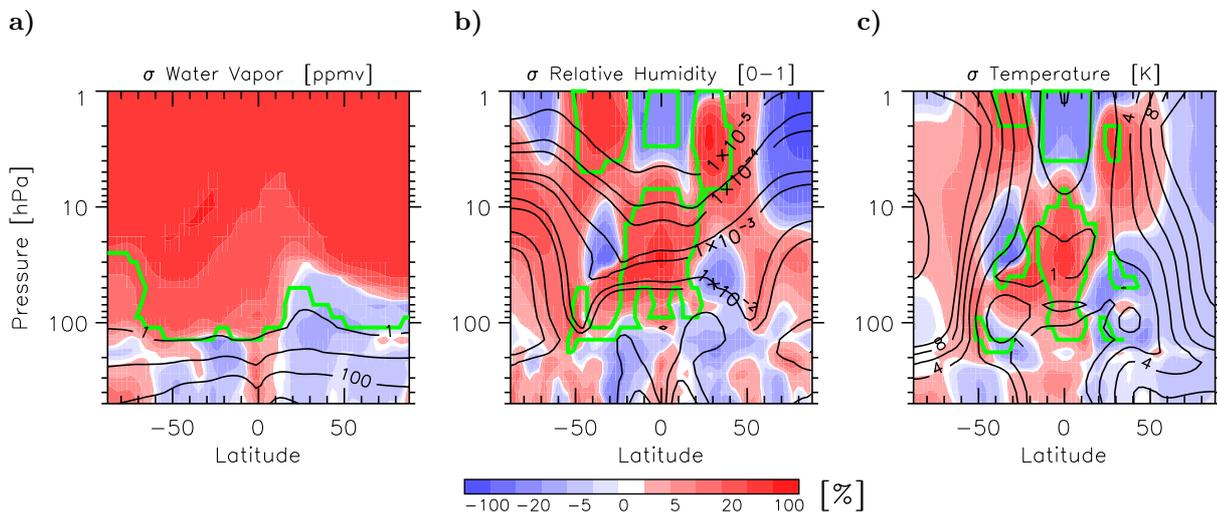


Abbildung 6.10: Prozentualer Unterschied in den Standardabweichungen σ der Experimente mit und ohne assimilierter QBO auf Basis der elfjährigen Klimatologie von 1996 bis 2006: (a) Wasserdampfkonzentration und (b) relative Feuchte sowie ergänzend dazu (c) Temperatur, jeweils als Funktionen der Höhe und geografischen Breite. Schwarze Konturen repräsentieren die Standardabweichungen der Parameter im Experiment *CTRL*, grüne Konturlinien markieren das jeweilige 90%ige Signifikanzniveau (*t*-Test).

6.2.2 QBO-Modulation von Sulfataerosol-Vorläufergasen

Schon kurz nach Entdeckung der quasi-zweijährigen Schwingung im zonalen Wind der äquatorialen Stratosphäre in den frühen sechziger Jahren wurde in stratosphärischen Ozon eine interannuale Variabilität festgestellt, die mit der quasi-zweijährigen Schwingung im zonalen Wind korreliert ist. Eine historische Übersicht des Nachweises von QBO-Modulationen in Ozon und anderen Spurenstoffen der Stratosphäre geben u.a. Hasebe (1994) und Baldwin et al. (2001). Basierend auf Beobachtungen der Satelliteninstrumente HALOE und Aura MLS stellten kürzlich Schoeberl et al. (2008) in einer umfangreichen Studie QBO-induzierte Modulationen in H_2O , N_2O , O_3 , CH_4 , HCl , CO und HF zusammen. Obwohl verschiedene Arbeiten die QBO-Modulation von Aerosolen im tropischen stratosphärischen Reservoir (TSR) nachweisen konnten (u.a. Trepte und Hitchman, 1992; Hitchman et al., 1994), sind QBO-Modulationen von schwefelhaltigen Gasen in der Literatur bislang nicht dokumentiert worden. Die prognostische Behandlung der Sulfataerosol-Vorläufergase in dem hier vorgestellten gekoppelten Aerosol-Zirkulationsmodell mit assimilierter QBO erlaubt es jedoch, den Einfluss der QBO auf die Konzentrationen von Sulfataerosol-Vorläufergasen in der Stratosphäre zu untersuchen und die Bedeutung dieser Modulationen für die Bildung von Aerosolpartikeln in der Stratosphäre abzuschätzen. Da die QBO ihre maximale Amplitude am Äquator aufweist, fokussieren sich die hier gezeigten Untersuchungen der QBO-Modulationen in den Sulfataerosol-Vorläufergasen SO_2 , H_2SO_4 und DMS zunächst auf die äquatoriale Stratosphäre.

Während die QBO-Modulationen in SO_2 und H_2SO_4 sich vor allem in den QBO-induzierten Anomalien widerspiegeln (Abbildungen 6.11 und 6.12) weist die stratosphärische DMS-Konzentration ein schwaches *Tape-Recorder*-Signal auf, das im Unterschied zum *Tape-Recorder* in H_2O jedoch von der zweijährigen Modulation anstelle der jahreszeitlichen Schwankung dominiert wird (Abbildung 6.13).

Die quasi-zweijährigen Schwingungen in den Konzentrationen von SO_2 und H_2SO_4 werden in der mittleren Stratosphäre bis hinunter nach ~ 4 hPa von Modulationen überlagert, die mit der halbjährlichen Schwingung (SAO) der oberen Stratosphäre und der unteren Mesosphäre in Verbindung stehen. Die in Abbildung 6.12 (b) gezeigten Anomalien in äquatorialen H_2SO_4 -Konzentrationen scheinen stärker von der SAO beeinflusst zu werden als die Konzentrationen von SO_2 (Abbildung 6.11 b). Unter SAO westlichen Winden zeigen sich negative Anomalien von bis zu -40 % relativ zur H_2SO_4 -Konzentration. Das Auftreten positiver Anomalien in H_2SO_4 oberhalb von ~ 4 hPa scheint eher an einsetzende abwärts propagierende QBO-Ostphasen gebunden zu sein, als an östliche Winde der SAO. Anomalien in den SO_2 -Konzentrationen in gleicher Höhe stehen dagegen eher mit den von der QBO induzierten Temperaturanomalien in Verbindung (Abbildung 6.5).

Obwohl die SAO-Modulationen in gasförmiger Schwefelsäure relativ hoch sind (zumindest im Einflussbereich westlicher zonaler Winde), kann eine direkte Beeinflussung der SAO auf die Bildung stratosphärischer Aerosole am Äquator als unwahrscheinlich angesehen werden, da sie in Höhenbereichen erfolgen, in denen der H_2SO_4 -Dampfdruck und somit die H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration an den Partikeloberflächen sehr hoch sind (Abbildung 3.1) und Sulfataerosole folglich einer quasi-instantanen vollständigen Verdunstung unterliegen.

QBO-Modulationen in SO_2

Abbildung 6.11 zeigt, dass die quasi-zweijährige Schwingung in ihrem gesamten Einflussbereich am Äquator Anomalien in den Konzentrationen von SO_2 induziert. Positive Anomalien in den SO_2 -Konzentrationen werden in westlichen QBO-Transitionsphasen induziert, negative Anomalien

dementsprechend in östlichen QBO-Transitionsphasen. Die Anomalien fallen oberhalb von 10 hPa betragsmässig höher aus als direkt oberhalb der Tropopause. Relativ zur SO_2 -Konzentrationen sind sie jedoch sowohl im oberen als auch im unteren Grenzbereich der stratosphärischen Aerosolschicht mit $\pm 10\%$ bis maximal $\pm 30\%$ in etwa gleich. Zwischen 20 und 10 hPa werden geringere Anomalien von etwa $\pm 5\%$ hervorgerufen.

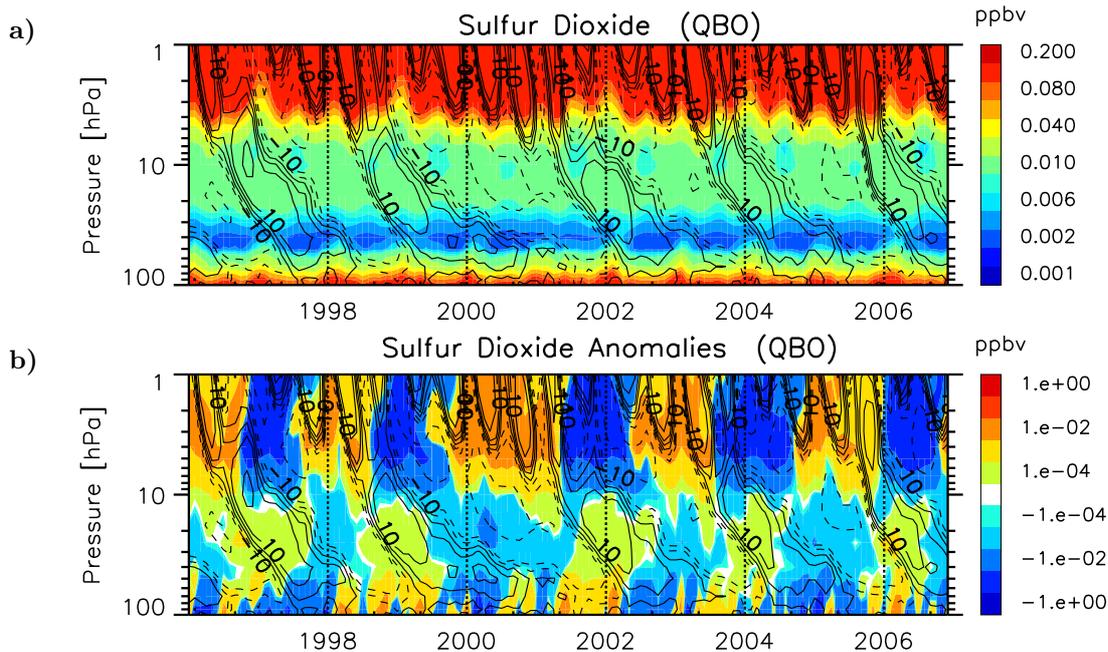


Abbildung 6.11: Die in Experiment *QBO* modellierte zeitliche Entwicklung der (a) Konzentration von Schwefeldioxid (SO_2) und (b) der entsprechenden QBO-induzierten Anomalien, jeweils auf Basis zonalen Monatsmittel bei 1.4°N . Die Konturlinien repräsentieren die modellierte QBO im zonalen Wind.

Entlang der IsoPLEthen absteigender zonaler Winde lassen sich zwischen 20 hPa und 10 hPa Phasen-inversionen in den SO_2 -Anomalien feststellen (Abbildung 6.11, b). Diese stehen im Zusammenhang mit dem in Experiment *QBO* klar hervorgehobenen äquatorialen SO_2 -Maximum, das sich in dieser Höhe ausbildet (Abbildung 6.14, b sowie Anhang F, Abbildung F.1 exemplarisch im Einflussbereich der westlichen QBO-Scherphase in 2001). Das thermische Windgleichgewicht bedingt in westlichen QBO-Scherphasen positive Temperaturanomalien, die einhergehen mit reduziertem Vertikaltransport relativ zur Residualzirkulation. Tritt die Transition von östlichem nach westlichem zonalen Wind in Höhe eines Konzentrationsmaximums von Spurenstoffen der Stratosphäre auf, werden positive Konzentrationsanomalien in Regionen unterhalb der Maximalkonzentration hervorgerufen, in Regionen oberhalb des Maximums entsprechend negative Konzentrationsanomalien. Solche Phasen-inversionen zeigen sich ebenfalls in mit der QBO in Verbindung stehenden Anomalien modellierter O_3 -Konzentrationen (u.a. Butchart et al., 2003).

Aufgrund der Kohärenz von SO_2 - und Temperaturanomalien lässt sich vermuten, dass neben den QBO-Modulationen im Vertikaltransport von SO_2 auch QBO-Modulationen in den SO_2 -bildenden chemischen Prozessen zumindest teilweise zu den modellierten SO_2 -Anomalien beitragen. QBO-Modulationen chemischer Transformationen spielen beispielsweise eine bedeutende Rolle in der Ozonchemie der Stratosphäre (u.a. Baldwin et al., 2001).

In einer Reihe von Arbeiten konnte gezeigt werden, dass der Massenfluss durch die tropische Tropopause in östlichen QBO-Phasen deutlich intensiviert wird und sich in den Konzentrationen von Spurenstoffen der Stratosphäre widerspiegelt (u.a. Gray und Chipperfield, 1990; O'Sullivan und Chen, 1996; Seol und Yamazaki, 1998; Butchart et al., 2003). Ein in östlichen QBO-Phasen oberhalb der TTL entsprechend intensivierter Massenfluss von SO_2 lässt sich ebenfalls aus Abbildung 6.11 (b) ableiten.

QBO-Modulationen in H_2SO_4

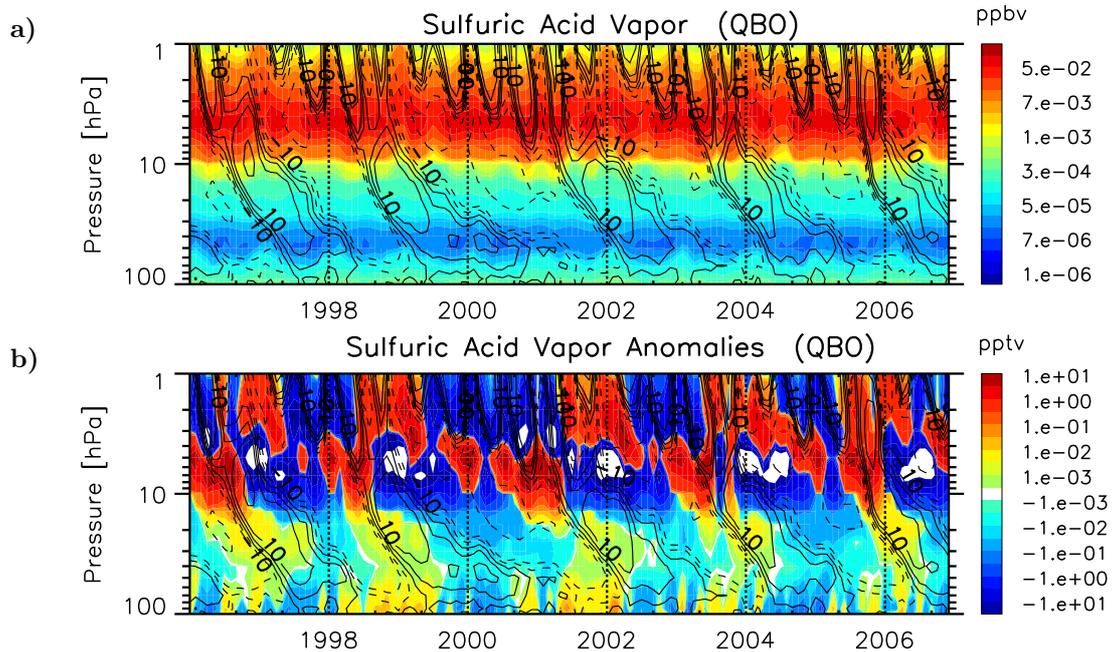


Abbildung 6.12: wie 6.11, aber hier für gasförmige Schwefelsäure (H_2SO_4), Anomalien hier in pptv.

Die mit der QBO in Verbindung stehenden Modulationen in den Konzentrationen von gasförmiger Schwefelsäure am Äquator sind in der unteren Stratosphäre ähnlich ausgeprägt wie entsprechende Modulationen in SO_2 . Oberhalb von 14 hPa unterscheiden sich die qualitativen Merkmale der QBO-induzierten Anomalien beider Vorläufergase zum Teil erheblich.

Die stratosphärische Aerosolschicht wird oberhalb von 14 hPa maßgeblich vom Prozess der Partikelverdunstung geprägt, wodurch sich in dieser Höhe das bereits in Kapitel 5.2.1 erläuterte H_2SO_4 -Reservoir der oberen Stratosphäre aufbaut (Abbildungen 6.12, a und 5.4, c). Wie in SO_2 zeigen sich im Bereich höchster stratosphärischer H_2SO_4 -Konzentrationen Phaseninversionen in den entsprechenden Konzentrationsanomalien. Oberhalb von ~ 4 hPa werden in einsetzenden QBO-Westphasen bzw. unter dem Einfluss westlicher Winde der SAO negative Anomalien generiert, darunter entsprechend positive (*vice versa* in einsetzenden QBO-Ostphasen).

Die Anomalien sind mit maximal ± 60 % oberhalb des zentralen Bereichs der Aerosolschicht, also bei ~ 10 hPa, weit stärker ausgeprägt als im Bereich höchster H_2SO_4 -Konzentrationen bei ~ 4 hPa, wo sie ± 10 % bis ± 30 % betragen. Die mit der SAO in Verbindung stehenden negativen H_2SO_4 -Konzentrationsanomalien oberhalb von 2 hPa erreichen bis zu -40 %.

Unterhalb von 10 hPa liegen die H_2SO_4 -Konzentrationen am Äquator mit < 1 pptv generell auf einem eher niedrigen Niveau (Abbildung 6.12 a und Abbildung 6.14 c). Zwischen 60 und 14 hPa lassen sich in QBO-Scherphasen Konzentrationsanomalien in H_2SO_4 von ± 10 bis ± 15 % feststellen, die nahezu phasensynchron zu den in Abbildung 6.11 (b) gezeigten SO_2 -Anomalien auftreten. Die Konzentrationsanomalien in beiden Gasen verhalten sich in diesem Höhenbereich proportional zu den QBO-induzierten Temperaturanomalien (Abbildung 6.5). Zudem weisen die Anomalien in H_2SO_4 weitere Phaseninversionen zwischen 20 und 10 hPa auf, die nahezu qualitativ identisch mit denen der SO_2 -Anomalien sind. Im Gegensatz zu den Phaseninversionen in SO_2 kommen QBO-modulierte Transportmechanismen für die Ausbildung dieser zweiten unteren Phaseninversionen in H_2SO_4 nicht in Frage, da die H_2SO_4 -Konzentrationen über diesen Höhenbereich graduell ansteigen und keinen quasi-stationären Extremwert aufweisen (Abbildung 6.12 a und Abbildung 6.14 c). Da die Verweildauer von gasförmiger Schwefelsäure auch unter stratosphärischen Bedingungen weit kleiner als die Verweildauer von SO_2 ist (SPARC, 2006) und gleichzeitig H_2SO_4 -bildende chemische Prozesse auch unter relativ tiefen Temperaturen (Anhang E, Abbildung E.3) relativ effizient ablaufen (Sander et al., 2003), kann geschlossen werden, dass die in Abbildung 6.12 (b) gezeigten Anomalien in den H_2SO_4 -Konzentrationen zwischen 60 und ~ 14 hPa eine direkte Projektion der QBO-Modulationen in stratosphärischen SO_2 -Konzentrationen sind. Oder mit anderen Worten formuliert: Sie stellen eine Art von "Fingerabdruck" oder "Kopie" der QBO-induzierten SO_2 -Anomalien dar. Man kann jedoch davon ausgehen, dass die QBO diese Proportionalität in den Gaskonzentrationen moduliert. Und zwar über den chemischen Transformationsweg, da die wichtige H_2SO_4 -bildende Reaktion $\text{SO}_3 + \text{H}_2\text{O}$ sich umgekehrt proportional zur Temperatur entwickelt und vor allem unterhalb von 220 K von Bedeutung ist (Sander et al., 2003).

Wie in SO_2 unterliegen die Konzentrationen von gasförmiger Schwefelsäure unterhalb von ~ 60 hPa einer zweijährigen Modulation, die phasenversetzt zur QBO-Modulation im zonalen Wind auftritt. Westlich gerichtete, oberhalb der äquatorialen Tropopause dissipierende zonale Winde intensivieren Austauschprozesse in der TTL. Ein in der TTL erhöhter in die untere Stratosphäre gerichteter advektiver Vertikaltransport von H_2SO_4 verringert die vertikale Ausdehnung des H_2SO_4 -Minimums in der unteren Stratosphäre auf eine Region, die sich zwischen 50 und 40 hPa erstreckt. In den von höchster vertikaler Divergenz gekennzeichneten QBO-Westphasen erscheint dagegen das H_2SO_4 -Minimum zwischen 70 und 40 hPa ausgedehnt.

Die relative Modulation der H_2SO_4 -Konzentrationen direkt oberhalb der Tropopause durch die quasi-zweijährige Schwingung beträgt im Mittel ± 10 bis ± 20 %, positive Anomalien erreichen zeitweise 30 %, negative bis zu -50 %.

Wie in Kapitel 6.2.3 noch näher erläutert wird, lässt sich der Einfluss der Partikelverdunstung in QBO-Scherphasen bis in die zentralen Regionen der stratosphärischen Aerosolschicht bei ~ 30 hPa nachweisen (Abbildung 6.19 b und c). Dadurch erklärt sich der in westlichen QBO-Scherphasen zu beobachtende graduelle Anstieg in den H_2SO_4 -Anomalien zwischen 30 und < 8 hPa. Entsprechend invers gestaltet sich die graduelle Abnahme in den Anomalien von H_2SO_4 in östlichen Scherphasen, wenn QBO-Modulationen die Verdunstung von H_2SO_4 aus den Partikeln unterdrücken und Kondensation sich zum im Mittel dominierenden mikrophysikalischen Prozess der Gas-Partikel-Partitionierung entwickelt (vergleiche Abbildungen 6.19, a und b). Da in dieser Höhe die mit dem H_2SO_4 -Massentransfer in Verbindung stehenden Anomalien in ihrem Betrag bis zu vier Größenordnungen höher ausfallen als die Anomalien die sich über den SO_2 -Oxidationspfad erklären lassen (und ebenso die relative Beeinflussung in größeren Höhen überwiegt), kann geschlossen werden, dass die QBO-Modulation des H_2SO_4 -Massentransfers der dominierende QBO-Einfluss auf stratosphärische Konzentrationen von gasförmiger Schwefelsäure ist.

QBO-Modulationen in DMS

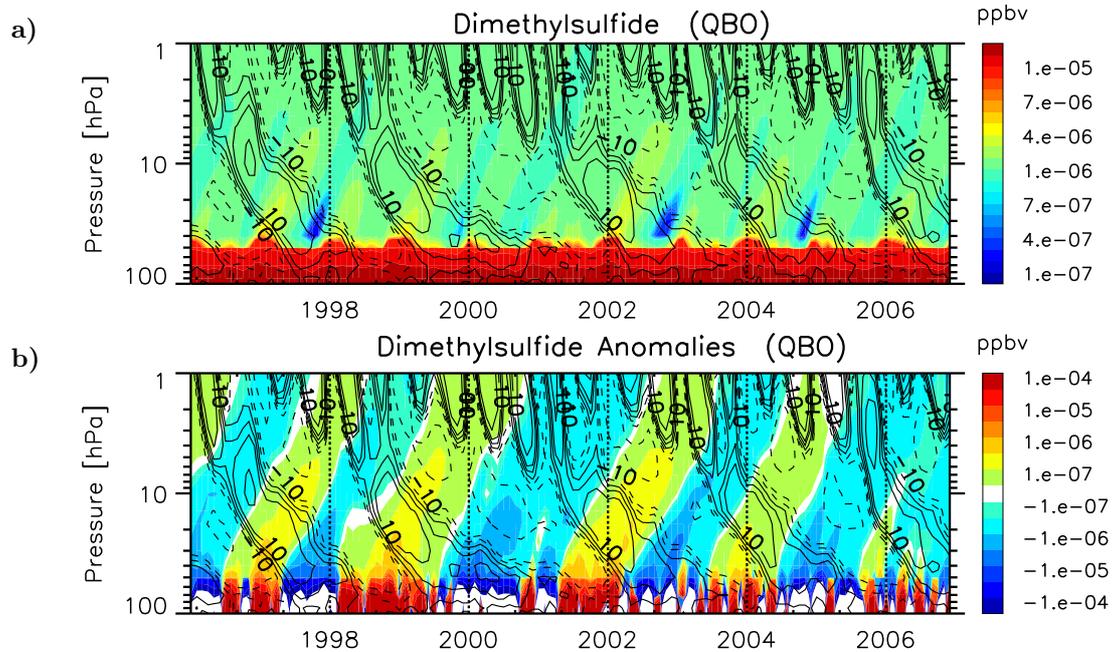


Abbildung 6.13: wie 6.11, aber hier für Dimethylsulfid (DMS).

Die modellierten DMS-Konzentrationen der Stratosphäre liegen mindestens eine Größenordnung unter den klimatologischen Konzentrationsminima von H_2SO_4 der Stratosphäre. Es zeigt sich sowohl in den modellierten Konzentrationen als auch in den QBO-induzierten Anomalien ein klar ausgeprägtes *Tape-Recorder*-Signal. Da DMS in der derzeitigen Modellversion als nicht-reaktives Gas der Stratosphäre behandelt wird, also oberhalb der Tropopause als rein passiver Tracer betrachtet werden kann, spiegeln die am Äquator mit der Zeit langsam aufsteigenden QBO-induzierten Anomalien in den DMS-Konzentrationen von Abbildung 6.13 die mittlere Rate des tropischen Vertikaltransports wieder. Das in Kapitel 6.2.1 gezeigte modellierte *Tape-Recorder*-Signal in H_2O kann dagegen von chemischen Reaktionen aber auch von der Hygroskopie der Partikel beeinflusst werden.

Wie in den Konzentrationen von SO_2 und H_2SO_4 induziert die östliche (westliche) QBO-Phase positive (negative) Anomalien in den DMS-Konzentrationen oberhalb der TTL, welche die jahreszeitliche Schwankung im tropischen Tropopausentransport von DMS überlagern. Diese Charakteristik unterscheidet sich insofern von den *Tape Recorders* in H_2O und CO , als dass das Signal in H_2O an die jahreszeitliche Variabilität der stratosphärischen Dehydratation gekoppelt ist und das Signal in CO von saisonalen Schwankungen biogener Emissionen hervorgerufen wird (u.a. Lelieveld et al., 2007; Schoeberl et al., 2006). Demgegenüber weist das *Tape-Recorder*-Signal in DMS eine klare zweijährige Variation auf.

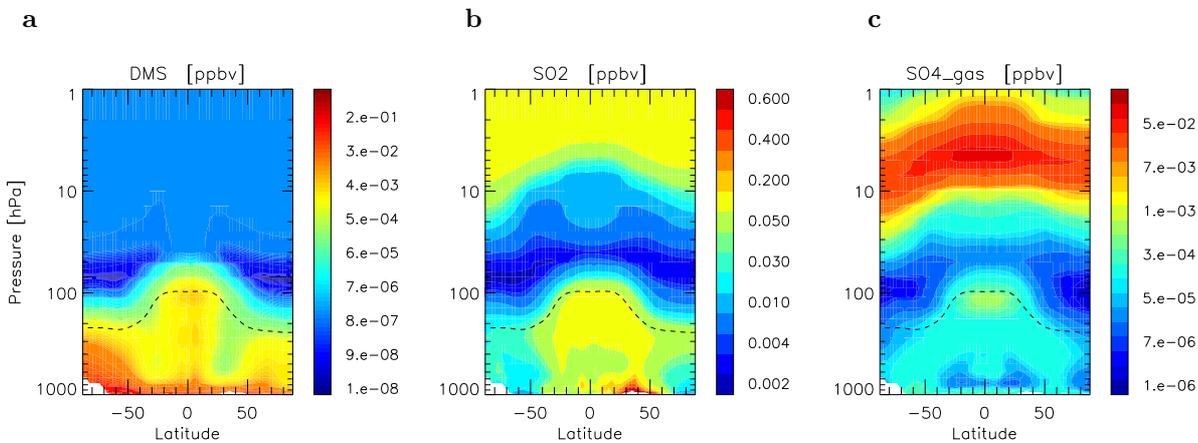


Abbildung 6.14: Klimatologische zonale Mittel der modellierten Konzentrationen von (a) Dimethylsulfid, (b) Schwefeldioxid und (c) gasförmiger Schwefelsäure in Experiment *QBO*.

6.2.3 QBO-Modulation stratosphärischer Aerosole am Äquator

Analysen von Aerosolextinktionen aus Satellitenbeobachtungen der Pre-Pinatubo-Zeit zeigen transiente variable Strukturen der äquatorialen stratosphärischen Aerosolschicht, welche an die Phasen der quasi-zweijährigen Schwingung gekoppelt sind (Trepte und Hitchman, 1992; Hitchman et al., 1994; Hasebe, 1994), sowie die Existenz eines tropischen stratosphärischen Reservoirs (TSR) in Spurenstoffkonzentrationen, das seine maximale vertikale Ausdehnung am Äquator erreicht und in den Subtropen von einer Mischungsbarriere dynamisch veränderlicher Stärke und Ausdehnung begrenzt wird (Polvani et al., 1995; Grant et al., 1996; Neu et al., 2003). Mit dem heutigen Stand der Erkenntnis kann die stratosphärische Aerosolschicht vor der Eruption des Mt. Pinatubo im Juni 1991 nicht als vulkanisch unbelastet gelten (SPARC, 2006), sodass die oben zitierten Arbeiten der QBO-Modulation stratosphärischer Aerosole unter dem Einfluss vulkanisch bedingter erhöhter Aerosolmassen stehen. Diese spiegeln sich vor allem in erhöhten Konzentrationen großer Partikel wieder, beeinflussen jedoch auch deren Komposition und somit die optischen Aerosoleigenschaften (u.a. Lacis et al., 1992). Letztere bilden die Grundlage der oben zitierten Arbeiten. Im Gegensatz dazu werden die in diesem Kapitel vorgestellten QBO-Modulationen stratosphärischer Aerosole im sogenannten Hintergrundzustand der stratosphärischen Aerosolschicht modelliert, ein Zustand, in dem sich die stratosphärische Aerosolschicht seit etwa Ende 1996 befindet.

Die Aerosol-QBO

Abbildung 6.15 stellt die im Kontrolllauf und im Experiment mit assimilierter QBO modellierten stratosphärischen Aerosolkonzentrationen gegenüber. Während in der herkömmlichen Modellierung großenaufgelöster stratosphärischer Aerosole ohne Berücksichtigung einer quasi-zweijährigen Schwingung am Äquator in der Stratosphäre eine mehr oder weniger statische Aerosolschicht mit ausgeprägter saisonaler Variabilität generiert wird, die in den oberen Schichten dem Einfluss einer unrealistisch stark ausgeprägten SAO unterliegt, zeigt die zeitliche Entwicklung stratosphärischer Aerosole am Äquator im QBO-assimilierten Experiment eine hoch dynamische Variation der Partikel im TSR, die sowohl das Partikelgesamtspektrum, als auch das Spektrum ausschließlich großer Partikel im Detektionsbereich optischer Sensoren affiziert.

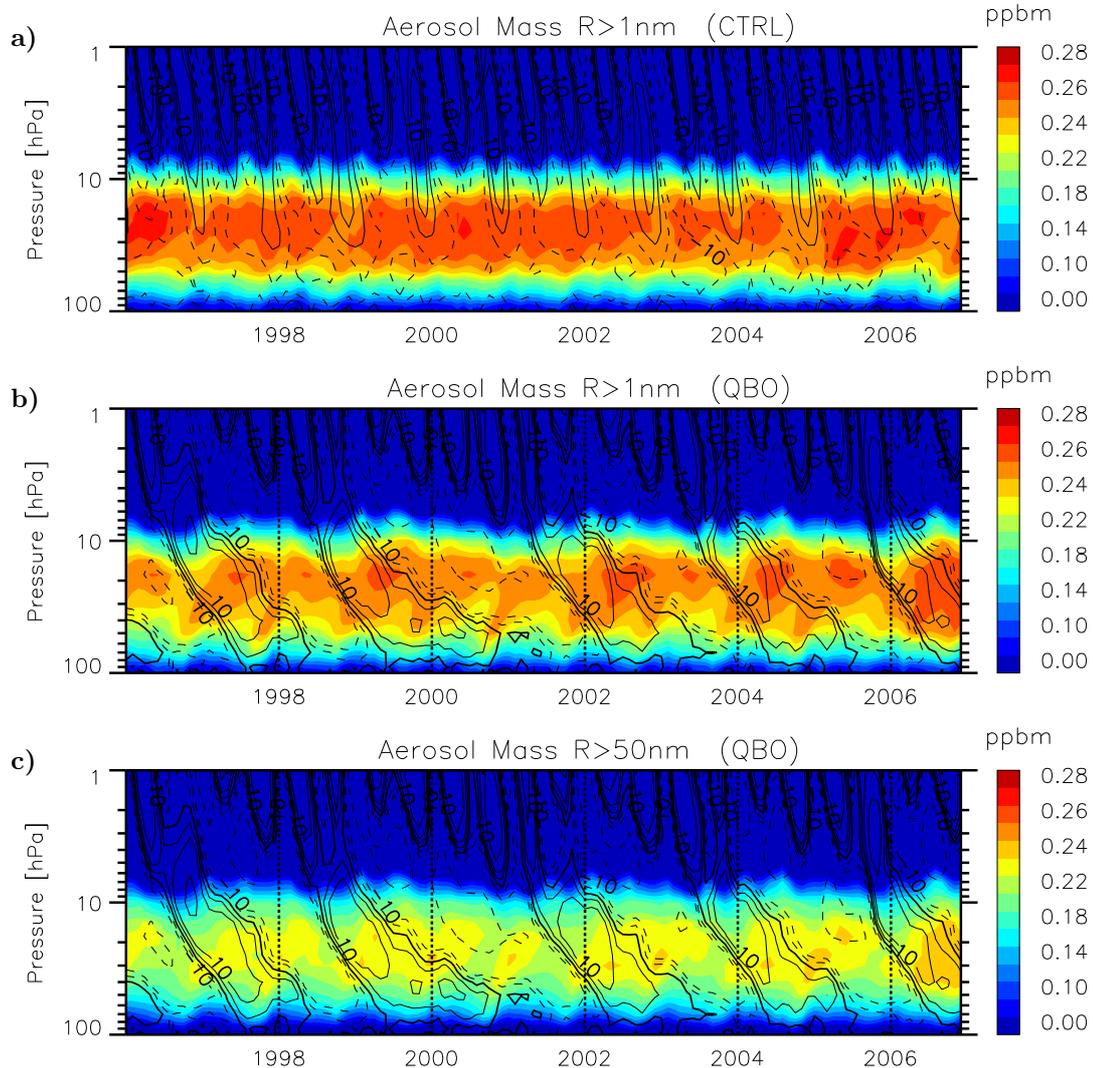


Abbildung 6.15: Zeitliche Entwicklung der Aerosolkonzentration am Äquator anhand zentraler Monatsmittel bei 1.4°N : (a) für den Kontrolllauf und (b) und (c) für des Experiment mit assimilierter QBO. Während in der Aerosolkonzentration in (b) das gesamte Partikelgrößenspektrum von SAM2 (Partikel mit einem Radius von 1 nm bis $2.6\ \mu\text{m}$) berücksichtigt wird, werden in (c) ausschließlich Partikel im *Accumulation* und *Coarse Mode* ($R \geq 50\ \text{nm}$) berücksichtigt. Schwarze Konturlinien kennzeichnen die modellierten zonalen Winde in m s^{-1} .

Aus den Abbildungen 6.15 (b) und (c) geht hervor, dass stratosphärische Aerosole einem starken QBO-moduliertem Vertikaltransport unterliegen, der seinen Ausgangspunkt in Regionen östlicher Scherwinde hat. Diese sind über das thermische Windgleichgewicht assoziiert mit negativen Temperaturanomalien und intensivierten Vertikalgradienten des zonalen Winds. Die obere, an die Temperaturentwicklung der Stratosphäre gebundene Randbedingung des Gas-Partikel-Gleichgewichts bewirkt, dass sich trotz intensivierten Vertikaltransports die Maximalausdehnung der Aerosolschicht nicht in größere Höhen verlagert, vielmehr befindet sich diese von Verdunstung der Partikel geprägte Zone in etwa der gleichen Höhe wie im Kontrolllauf (Abbildung 6.15, a). In Konsequenz dessen beeinflusst die QBO die vertikale Ausdehnung der Zentralregion der stratosphärischen Aerosolschicht am Äquator, also des Gebiets der höchsten

Konzentration und höchsten Aerosolmasse. Die QBO moduliert ebenfalls das Größenspektrum stratosphärischer Aerosolpartikel. Zum einen reduziert sich im QBO-assimilierten Experiment die maximale Aerosolkonzentration im Mittel um etwa 4 % (eine Reduktion um ~ 0.01 ppbm(S), vergleiche Abbildung 6.22). Zum anderen unterscheiden sich die charakteristisch ausgeprägten Strukturen der Aerosol-QBO-Zellen in den Abbildungen 6.15 (b) und (c), wenn statt 1 nm als untere Integrationsgrenze bei der Berechnung des Gesamtmassenmischungsverhältnisses ausschließlich Partikel mit $R \geq 50$ nm berücksichtigt werden.

Während in westlichen QBO-Phasen die Aerosolschicht ihre maximale Ausdehnung erreicht, die von 50 bis knapp unterhalb 10 hPa reicht, zeigt sich unter dem Einfluss stärkster östlicher zonaler Winde bzw. in westlichen Scherphasen ein Kernbereich der Aerosolschicht mit stark dezimierter vertikaler Ausdehnung. Die Zentrierung bei 14 hPa ist mit der doch relativen groben vertikalen Auflösung des Modells verbunden (siehe Giorgetta et al., 2006, Abbildung 1), d.h. in Abhängigkeit der gewählten Interpolation von modellinternen σ -Hybrid-Schichten auf Standardatmosphären-Druckniveaus verändert sich auch leicht die Lage des Zentralbereichs der Schicht.

Anomalien in der Aerosolmasse und Größe

Die Abbildungen 6.16 bis 6.20 kennzeichnen die QBO-induzierten Anomalien in der prognostisch behandelten Aerosolkonzentration (Abbildung 6.16, a und b) und in verschiedenen diagnostischen Aerosolparametern des Modells. Letztere werden wie folgt klassifiziert: Aus der Aerosolkonzentration abgeleitete Größenparameter (Abbildung 6.16, c bis h), modeweise integrierte Partikelanzahlkonzentrationen (Abbildung 6.18), Prozessgrößen der Aerosolmikrophysik (Abbildung 6.19) sowie kompositorische Partikeleigenschaften (Abbildung 6.20).

Es wird ersichtlich, dass alle Parameter von QBO-Modulationen affektiert werden. Diese beginnen oberhalb der Tropopause und reichen bis in jene Höhen, die von Verdunstung der Partikel geprägt sind (~ 3 hPa). Lediglich die stratosphärische Feuchte und die damit verbundene Hygroskopie der Partikel zeigen schwache QBO-Signale in Regionen direkt oberhalb der Tropopause (Abbildungen 6.20, c und d). Das auf die untere Stratosphäre begrenzte Auftreten der Anomalien in diesen beiden Parametern erklärt sich mit der saisonalen Abhängigkeit des stratosphärischen Wasserdampfeintrags und der vergleichsweise schnellen Dissipation des *Tape-Recorder*-Signals in H_2O unterhalb von 10 hPa.

Die Aerosolkonzentrations-Anomalien (Abbildung 6.16, a und b) weisen Phaseninversionen entlang absteigender QBO-Scherphasen auf, welche korrespondierend zu den Anomalien in SO_2 (Abbildung 6.11) den Vertikaltransport in invers ausgeprägten Konzentrationsgradienten der stratosphärischen Aerosolschicht oberhalb und unterhalb ihres Zentralbereichs widerspiegeln (auf den Mechanismus der zur Ausbildung der Phaseninversionen führt, wurde ausführlich in Kapitel 6.2.2 eingegangen). Die höchsten Konzentrationsänderungen mit ± 60 % gegenüber einer Hintergrundkonzentration von ~ 0.1 ppbm(S) finden sich im Bereich der verdunstenden Partikel oberhalb von 10 hPa, die Modulationen im Zentralbereich der Schicht und darunter fallen mit etwa ± 2 % bzw. ± 5 % dagegen eher niedrig aus. Zum Vergleich: Ozonmodulationen am Äquator unterhalb von 10 hPa werden in der Literatur mit ± 5 % (Baldwin et al., 2001) bis ± 15 % (Butchart et al., 2003) angegeben.

Hasebe (1994) veröffentlichte QBO-induzierte Aerosolextinktions-Anomalien aus der zweiten Hälfte der achtziger Jahre, die stark affektiert sind von der Eruption des Mt. Nevado del Ruiz im November 1985. Um eine bessere Vergleichbarkeit der von Hasebe (1994) veröffentlichten SAGE-II-Daten mit den hier modellierten Aerosolkonzentrations-Anomalien (Abbildungen 6.16 a und b) herzustellen, sind

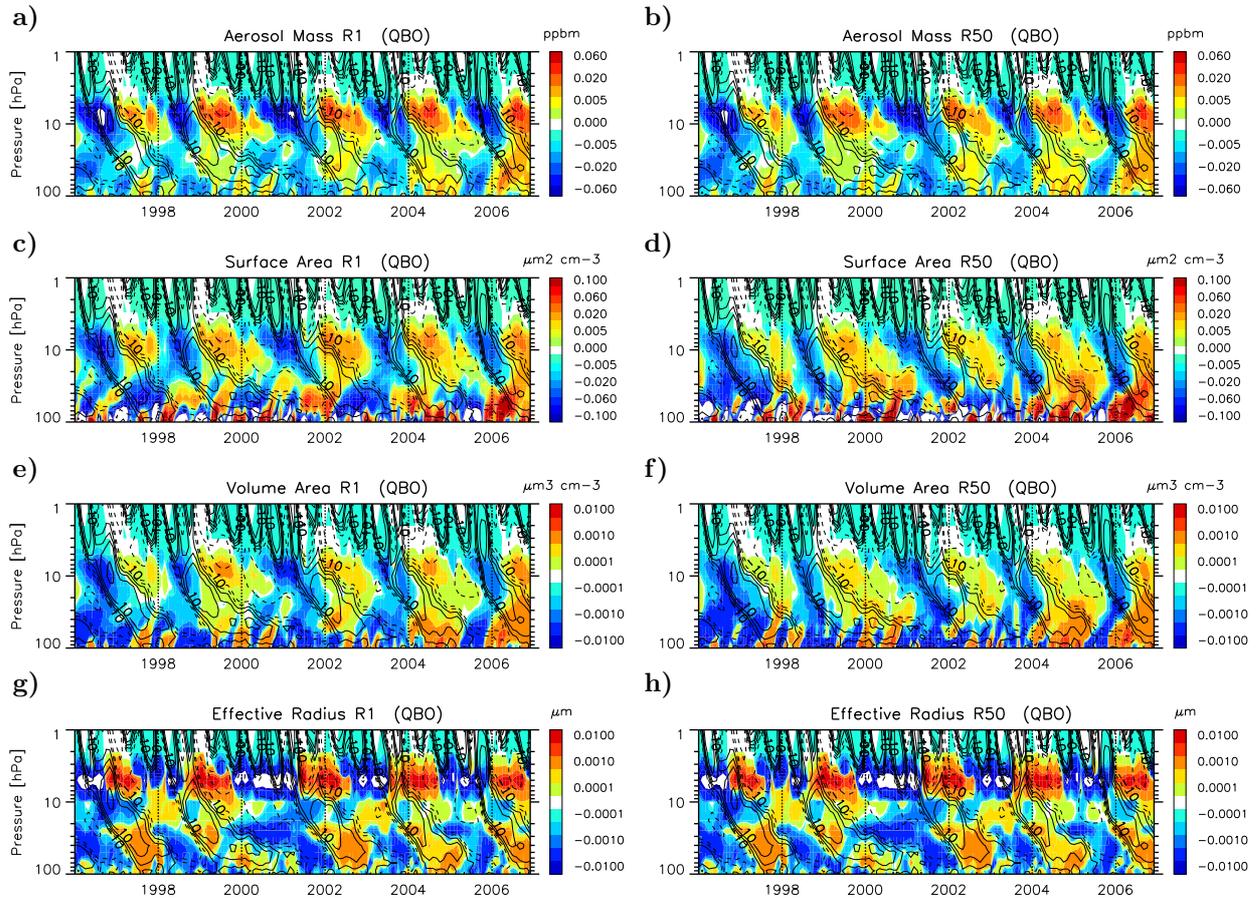


Abbildung 6.16: Wie in 6.15, aber hier für die Anomalien der (a), (b) Aerosolkonzentrationen und der Aerosolgrößenparameter (c), (d) Partikeloberflächendichte, (e), (f) Partikelvolumendichte und dem (g), (h) effektiven Radius. Während in der linken Spalte der gesamte Partikelgrößenbereich mit $1 \text{ nm} \geq R \geq 2.6 \text{ }\mu\text{m}$ repräsentiert wird, werden in der rechten Spalte nur Partikel mit einem Radius $\geq 50 \text{ nm}$ berücksichtigt.

in Abbildung 6.17 die entsprechenden Abbildungen der SAGE-II-Aerosolextinktionsanomalien und der Anomalien des beobachteten zonalen Winds aus Hasebe (1994) überlagert worden. Aus dem Vergleich der Abbildungen 6.16 (a,b) und 6.17 wird ersichtlich, dass das modellierte und beobachtete Phasenverhalten der äquatorialen Aerosolanomalien gegenüber den QBO-induzierten Anomalien im zonalen Wind qualitativ übereinstimmen, obwohl die Daten von Hasebe (1994) nicht den Hintergrundzustand der stratosphärischen Aerosolschicht wiedergeben. Diese Übereinstimmungen umfassen im Einzelnen: (1) positive Anomalien in westlichen QBO-Phasen oberhalb von 60 hPa, und (2) die Phaseninversionen finden bei ca. 30 hPa in der westlichen Scherphase und ca. 15 hPa in der östlichen Scherphase statt.

Hasebe (1994) schlussfolgert, dass die beobachteten Aerosolanomalien in der unteren Stratosphäre während der West-Phase der QBO zum Jahreswechsel 1986 von einer vulkanisch bedingten Störung der Ruiz-Eruption verursacht werden, da sich in der darauffolgenden West-Phase keine entsprechenden Anomalien zeigen (worauf in Hasebe (1994) nicht näher eingegangen wird). Die in diesem Kapitel gezeigten Zusammenhänge zwischen QBO-bedingten Anomalien in (so gut wie allen) modellierten Aerosolparametern und den QBO-bedingten Zirkulations- und Temperaturanomalien zeigen jedoch eindeutig, dass diese von Hasebe (1994) gezeigten Aerosolanomalien unterhalb von 30 hPa eine generelle Charakteristik der QBO-bedingten Aerosolmodulationen darstellen. Somit erklärt nicht die vulkanische

Sunset SAGE II Aerosol Anomalies [Hasebe, J. Atmos. Sci., 51, 1994]
(Equatorial Zonal Wind (m/s))

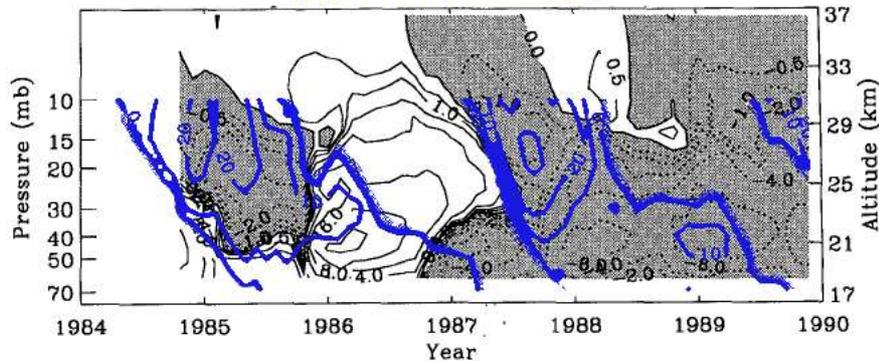


Abbildung 6.17: Aerosolsextinktions-Anomalien aus SAGE-II-Beobachtungen der Pre-Pinatubo-Zeit, adaptiert von Hasebe (1994). Blaue Konturlinien kennzeichnen die in Hasebe (1994) angegebenen Anomalien im zonalen Wind, basierend auf Naujokat (1986), hier ausschließlich für die westliche QBO-Phase gezeigt. Die Aerosoldaten stehen unter dem Einfluss der Eruption des Mt. Nevado del Ruiz im November 1985.

Störung die Phaseninversion in den Aerosolanomalien, sondern der von der QBO generell modulierte Vertikaltransport chemisch langlebiger Spurenstoffe, die ein Reservoir in der oberen tropischen Troposphäre aufweisen (quasi eine Art QBO-moduliertes "Ansaugen").

Zudem führte Hasebe (1994) mechanistische Modellstudien des QBO-Einflusses auf Aerosolsextinktionen bei $1 \mu\text{m}$ durch, die seine Schlussfolgerung der vulkanisch bedingten positiven Extinktionsanomalie bestätigen. Die von Hasebe (1994) durchgeführten Modellstudien leiden aber unter einem fälschlicherweise angenommenen oberhalb der Tropopause kontinuierlich abfallenden Vertikalprofil des *Input*-Parameters Aerosolsextinktion. Aerosol-optische Parameter verhalten sich jedoch proportional zum atmosphärischen Aerosolmischungsverhältnis, das am Äquator wie in den Extratropen oberhalb der Tropopause zunächst einen positiven Gradienten aufweist (siehe Abbildung 5.5; u.a. Barnes und Hofmann, 2001; SPARC, 2006). Die inversen Konzentrationsgradienten oberhalb und unterhalb der zentralen Bereiche der Aerosolschicht bedingen letztlich die Phaseninversionen in den Anomalien von Konzentration und Extinktion.

Die Anomalien in den Aerosolgrößenparametern SAD, VAD und im effektiven Radius treten weitestgehend kohärent zu den Anomalien im Massenmischungsverhältnis der jeweiligen Integrationsbereiche auf. Bei näherer Inspektion finden sich invers ausgeprägte Anomalien von SAD und VAD (z.B. Anfang 1998 in 10 hPa). Diese außer Phase laufenden Anomalien führen letztlich zur Ausbildung von Anomalien im effektiven Radius, welche ebenfalls phasenversetzt zu den Anomalien im Aerosolmassenmischungsverhältnis auftreten. Oberhalb des Zentralbereichs der Aerosolschicht betragen die maximalen QBO-Modulationen in SAD, VAD und r_{eff} etwa $\pm 20\%$, im Zentralbereich der Schicht dagegen nur etwa ± 1 bis $\pm 2\%$.

Anomalien in der Partikelanzahl

Die QBO-Modulationen der Partikelanzahlkonzentrationen sind abhängig von der Größe der Partikel (Abbildung 6.18). Die Struktur der Anomaliezellen von Partikeln im *Nucleation Mode* unterscheidet sich grundsätzlich von denen der größeren Partikel, deren Strukturen eng mit den Modulationen der

Aerosolkonzentration (also der integrierten Aerosolmasse) und den Aerosolgrößenparametern verknüpft sind. Aufgrund der quasi nur oberhalb der Tropopause existierenden Partikel im *Coarse Mode* fallen entsprechende Anomalien in den Konzentrationen dieses Modes sehr gering und lokal begrenzt auf die unterste Stratosphäre aus. Anomalien in den Anzahlkonzentrationen des *Nucleation Mode* unterhalb von 30 hPa sind klar an Anomalien in der Nukleationsrate gebunden, wie aus Abbildung 6.19 (d) ersichtlich wird. Oberhalb von 30 hPa betragen die Anomalien in den Anzahlkonzentrationen des *Nucleation Mode* bis zu 1 cm^{-3} , obwohl sich keine Anomalien in den Nukleationsraten nachweisen lassen, der Prozess der Partikelformation aber an sich Signifikanz aufweist (Abbildung 6.21, l). Dies lässt vermuten, dass die in Experiment *QBO* erhöhte Variabilität sowohl in der Zirkulation der Atmosphäre als auch in der Aerosoldynamik (Abbildungen 6.4, 6.10 und 6.21) Partikelformationsprozesse in Regionen ermöglicht, die in herkömmlichen stratosphärischen Aerosolmodellen ohne Berücksichtigung der QBO nicht in Frage kommen. Der Kontrolllauf bestätigt dies für MAECHAM5–SAM2 (auf die Abbildung entsprechender Anzahlkonzentrationen soll an dieser Stelle jedoch verzichtet werden). Der Prozessweg gestaltet sich dabei wie folgt: Simultan moduliert die QBO die Temperatur, die Bildung gasförmiger Schwefelsäure und die Verfügbarkeit von Wasserdampf in der äquatorialen Stratosphäre, so dass die Hydratclusterbildung nach der klassischen Theorie der binären homogenen Nukleation auch oberhalb der TTL ermöglicht wird. Darüber hinaus beeinflusst die QBO die Gleichgewichtsbedingungen zwischen Partikel- und Gasphase, die vom H_2O - und H_2SO_4 -Dampfdruck abhängig sind, Abbildung 6.19 (c). Ein weiterer in Frage kommender Mechanismus ist das Schrumpfen von Partikeln im *Aitken Mode* und *Accumulation Mode* auf Partikelgrößen, die dem *Nucleation Mode* entsprechen durch QBO–modulierte Verdunstung (Abbildung 6.19, b). Darüber hinaus kommt die Modulation des Vertikaltransports von ultra–feinen Partikeln aus tiefer liegenden Regionen der Stratosphäre für das Auftreten von relativ hohen Anomalien im *Nucleation Mode* oberhalb von 30 hPa in Frage.

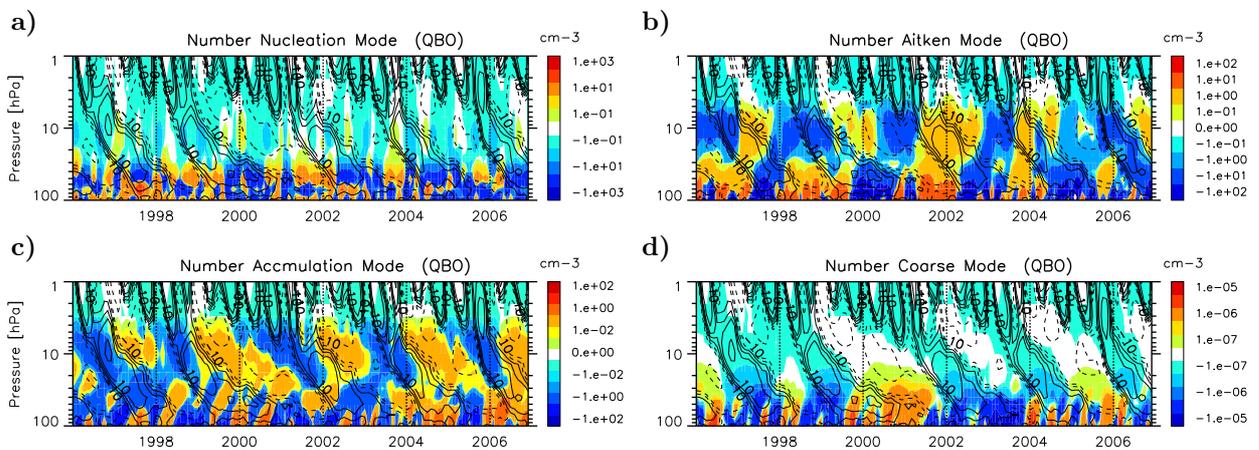


Abbildung 6.18: Wie in 6.16, aber hier für die Anomalien in den modeweise integrierten Partikelanzahlkonzentrationen.

Konzentrationsanomalien im *Aitken Mode* zeigen eine klare Abhängigkeit vom QBO–modulierten Vertikaltransport, der Zusammenhang zwischen QBO–induzierten Anomalien im Aerosol-Gesamtmassenmischungsverhältnis und den Anomalien der Anzahlkonzentrationen ist aber hochgradig nicht–linear. Nicht–Linearitäten zeigen sich vor allem auch in den Konzentrationsanomalien des *Accumulation Mode*, die nur teilweise mit dem Vertikaltransport in Verbindung zu stehen scheinen. Entlang absteigender östlicher QBO–Phasen zeigen sich positive Anomalien, weitestgehend ohne Phaseninversion, die mit positiven Anomalien der SAD einhergehen (und teilweise auch mit denen der VAD für Partikel $> 50 \text{ nm}$;

Abbildungen 6.16 c, d und f). Dies deutet auf Modulationen hin, die das Partikelspektrum nachhaltig formen (in Analogie zur Statistik: die Schiefe einer Verteilung beeinflussen). Welche Prozesse im Einzelnen diesen Nichtlinearitäten zu Grunde liegen, bleibt derzeit Gegenstand weiterführender Untersuchungen.

Anomalien in mikrophysikalischen Prozessen

Die zeitliche Entwicklung QBO-induzierter Anomalien in der H_2SO_4 -Transferkonzentration des Kondensationsprozesses (Abbildung 6.19, a) koinzidiert unterhalb von 14 hPa mit den Anomalien der H_2SO_4 -Gasphasenkonzentration (Abbildung 6.12, b). Da QBO-Modulationen der H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration (Abbildung 6.19, c) in diesen Höhen sehr gering ausfallen und daher kaum den Massentransfer beeinflussen, ist nicht nur das Auftreten von Anomalien in den H_2SO_4 -Gasphasenkonzentrationen in diesen Höhen eine direkte Abbildung der QBO-Modulationen in stratosphärischen SO_2 (Abbildung 6.11, b), gleiches gilt für Anomalien, die in den Transferkonzentrationen des Kondensationsprozesses unterhalb von 14 hPa hervorgerufen werden: Sie sind eine direkte Projektion der QBO-Beeinflussung von SO_2 .

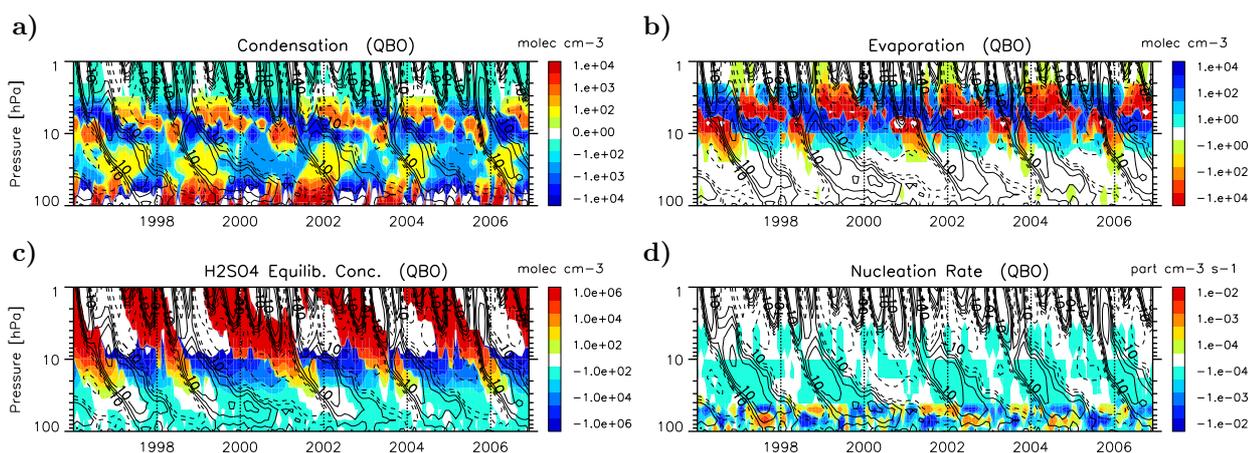


Abbildung 6.19: Wie in 6.16, aber hier für die Anomalien in den Prozessen der (a) Kondensation, (b) Verdunstung, (c) in den Anomalien der Gleichgewichtskonzentration von H_2SO_4 und (d) in der Nukleationsrate.

Oberhalb von 14 hPa, also oberhalb des Maximums der TSR-Aerosolkonzentration, zeigen sich relativ hohe Anomalien in den Transferkonzentrationen des Kondensationsprozesses in östlichen QBO-Scherphasen, die zudem im Mittel mit den in Abbildung 6.19 (b) gezeigten Verdunstungsanomalien koinzidieren. Da beide Transferprozesse nicht als simultan stattfindende Prozesse modelliert werden können, offenbart sich hier die QBO-induzierte Modulation des Massentransfers zwischen Partikel- und Gasphase. Durch Verdunstung aus den Partikeln freigesetzte H_2SO_4 -Moleküle werden auf Zeitskalen, die kürzer als die hier dargestellten Monatsmittel, aber länger als ein Modellzeitschritt sind, durch Kondensation wieder in die Partikelphase überführt. Diese Charakteristik beschränkt sich (in kurzen Zeitskalen) auf ausreichend niedrige H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentrationen, die einen Kondensationsfluss in dieser Höhe erst ermöglichen. Oberhalb von 6 hPa nimmt der H_2SO_4 -Dampfdruck und somit die H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration soweit zu, dass keine Kondensation möglich ist und über längere Zeiträume verdampfende Partikel an ihrer zwischenzeitlichen Regeneration durch kondensationsbedingtes Wachstum gehindert werden. Durch Einbeziehung der quasi-zweijährigen Schwingung in die Modellierung

stratosphärischer Aerosole verändert sich die im herkömmlichen Modell persistente Verdunstungsschicht von Partikeln demnach in eine von reversiblen Massentransfer gekennzeichnete Region dominierender Verdunstung.

Interessanterweise befinden sich Verdunstungsanomalien und Aerosolkonzentrationsanomalien oberhalb von 6 hPa in Phase. Da sich letztere mit dem Vertikaltransport von Partikeln aus dem Zentralbereich der Aerosolschicht in höher gelegene Regionen (und umgekehrt) begründen, sind die oberhalb von 6 hPa auftretenden Verdunstungsanomalien gleichzeitig eine Konsequenz des QBO-modulierten advektiven Vertikaltransports von Aerosolen.

Anomalien in der Partikelkomposition

Wie Abbildung 6.20 zeigt, wird auch die Partikelkomposition von der QBO beeinflusst. QBO-induzierte Anomalien in der Aerosolpartikeldichte (Abbildung 6.20, a) und im Sulfatmassenanteil (Abbildung 6.20, b) sind direkt an die QBO-induzierten Temperaturanomalien der äquatorialen Stratosphäre gekoppelt. QBO-induzierte Modulationen im Wasseraufnahmekoeffizienten der Partikel (Abbildung 6.20, c) koinzidieren mit der relativen Feuchte in der unteren Stratosphäre (Abbildung 6.20, d), da hygroskopische Substanzen wie Sulfataerosole Wassermoleküle proportional zur relativen Luftfeuchte absorbieren (Greenspan, 1977).

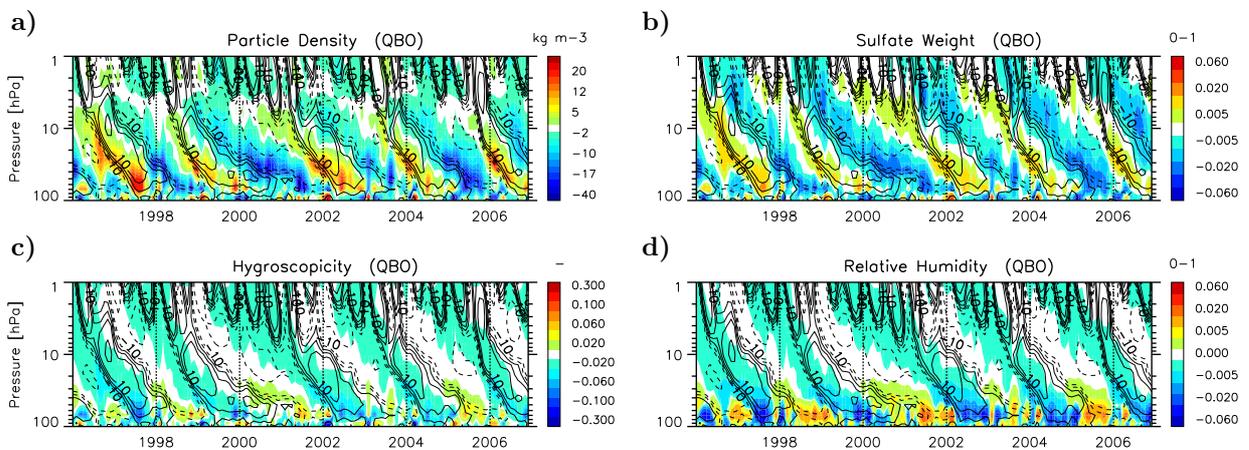


Abbildung 6.20: Wie in 6.16, aber hier für die Anomalien der Partikeleigenschaften (a) Sulfatdichte, (b) prozentualer Sulfatmassenanteil und (c) Wasseraufnahme-Koeffizient der Partikel sowie in (d) für die Anomalien der modellspezifischen relativen Feuchte.

Die Anomalien der beiden letztgenannten Parameter befinden sich gegenüber den Anomalien in den beiden erstgenannten Parametern eine halbe QBO-Periode außer Phase. Die relative Feuchte entwickelt sich umgekehrt proportional zur Temperatur der Atmosphäre (die relative Luftfeuchte nimmt bei Erwärmung ab), so dass QBO-Modulationen in der relativen Feuchte gegenüber den sich proportional zu den Temperaturanomalien entwickelnden QBO-Modulationen im stratosphärischen Wasserdampfeintrag ebenfalls eine halbe Periode phasenversetzt auftreten: Positive (negative) Anomalien in der relativen Feuchte im Einflussbereich dissipierender östlicher zonaler Winde der QBO stehen in Zusammenhang mit negativen (positiven) Temperaturanomalien (Abbildung 6.5), negativen (positiven) Anomalien im

stratosphärischen Wasserdampfeintrag oberhalb der TTL (Abbildung 6.6, b) und führen einer bis zu $+(-)6\%$ igen Modulation im Wasseraufnahmekoeffizienten der Partikel. Die relativen Modulationen in der Luftfeuchte oberhalb der TTL betragen bis zu $\pm 20\%$. Die relativen Modulationen in der Sulfatdichte und im Sulfatmassenanteil von höchstens $\pm 2\%$ sind eventuell für heterogene chemische Prozesse in Aerosolpartikeln von Relevanz, hier jedoch, in der auf die Aerosoldynamik fokussierten Modellierung stratosphärischer Aerosole spielen QBO-Modulationen der Partikelkomposition eher eine untergeordnete Rolle.

Ursprung von Partikeln der äquatorialen Stratosphäre

Gegenüber dem in östlichen QBO-Phasen intensivierten Tropopausenfluss von SO_2 (Kapitel 6.2.2) treten positive Anomalien in den Aerosolkonzentrationen in Regionen unterhalb ihres Maximums am Äquator etwa eine viertel QBO-Phase später auf (Abbildung 6.16, a und b). Vergleicht man diese mit den Anomalien in den Anzahlkonzentrationen des *Nucleation* bis *Accumulation Mode* (Abbildungen 6.18, a bis c) und den Anomalien der aerosol-mikrophysikalischen Prozesse (Abbildung 6.19) lässt sich schlussfolgern, dass die in westlichen QBO-Phasen auftretenden positiven Aerosolkonzentrationsanomalien unterhalb von 30 hPa hauptsächlich durch QBO-modulierte Partikelformationsprozesse und anschließendes Wachstum dieser Nuclei durch QBO-intensivierte Kondensation hervorgerufen werden.

Im Gegensatz zu Sulfataerosolvorläufergasen und anderen gasförmigen Spurenstoffen (u.a. Gray und Chipperfield, 1990; O'Sullivan und Chen, 1996) kann derzeit keine klar ausgebildete Intensivierung des tropischen Tropopausentransports von Aerosolen in östlichen QBO-Phasen festgestellt werden. Eventuell deuten die Verhältnisse ab 2004 auf eine solche Intensivierung hin, eine längere Integration des Modells ist hier jedoch notwendig um dekadische oder weitere langwellige Modulationen des TTL-Transports von Spurenstoffen der Atmosphäre in den Analysen berücksichtigen zu können. Da sich ein *Tape-Recorder*-Signal in allen photochemisch langlebigen Spurenstoffen der äquatorialen Stratosphäre nachweisen lassen sollte (u.a. Schoeberl et al., 2008), kann jedoch auch in Experiment *QBO* von einem entsprechenden Eintrag troposphärischer Aerosole in die Stratosphäre in den Sommermonaten ausgegangen werden. Sieht man vom monsun-bedingten Eintrag troposphärischer Aerosole bzw. dem von Schwefeldioxid in den Extratropen ab (siehe Kapitel 6.2.4 und 6.2.5), deutet der derzeitige Stand der Analysen darauf hin, dass der Ausgangspunkt der Bildung von Sulfataerosolen im TSR im Oxidationspfad von SO_2 zu finden ist, wie aus den Anomalien der Aerosolvorläufergase und den modeweise integrierten Aerosolkonzentrationen abgeleitet werden kann (Abbildung 6.18): Positive Anomalien in den Gaskonzentrationen und drei unteren Aerosol-Moden bauen zeitlich betrachtet aufeinander auf.

6.2.4 Die Aerosolklimatologie unter dem Einfluss der QBO

Die QBO-Beeinflussung extratropischer Spurenstoffkonzentrationen der Stratosphäre kann nur im Zusammenhang mit dem jährlichen Zyklus der Spurenstoffvariabilität betrachtet werden (Gray und Chipperfield, 1990; Mote et al., 1996; Schoeberl et al., 2008). Bevor die Zusammenhänge von tropischen und extratropischen QBO-Modulationen in den modellierten Aerosolparametern vorgestellt und vor allem die QBO-modulierten Transportmechanismen stratosphärischer Aerosole näher untersucht werden, sollen zunächst in diesem Kapitel die grundlegenden Unterschiede in den modellierten Aerosolparametern beider Experimente examiniert werden, die durch Berücksichtigung der quasi-zweijährigen Schwingung im Modell hervorgerufen werden.

Veränderungen in der Modellvariabilität durch QBO-Assimilation

Abbildung 6.21 zeigt, dass sich durch Assimilation zonaler Winde am Äquator die Variabilität der modellierten prognostischen und diagnostischen Aerosolparameter im klimatologischen Mittel deutlich verändert. Signifikant höhere Standardabweichungen finden sich in Aerosolparametern vor allem am Äquator, aber auch die von Verdunstung geprägten Regionen der stratosphärischen Aerosolschicht weisen eine signifikant höhere Variabilität auf. QBO-Assimilation erhöht die Variabilität ebenfalls in den Extratropen und in den Polarregionen der Stratosphäre, jedoch sind diese nur in wenigen Parametern signifikant.

Positive Standardabweichungen im Bereich der tropischen Tropopause oberhalb 100 hPa deuten auf intensivierten aufwärtsgerichteten Vertikaltransport hin, der durch in dieser Höhe dissipierende zonale Winde der QBO maßgeblich beeinflusst wird (zusammengefasst in Baldwin et al., 2001).

Damit einher gehen höhere Variabilitäten in den Aerosolgrößenparametern Oberflächendichte, Volumendichte und dem effektiven Radius und teilweise auch in den Partikelanzahlkonzentrationen einzelner Moden. Dies lässt auf nicht-lineare Veränderung in den Partikelgrößen- und Anzahlverteilungen durch QBO-induzierte Effekte schließen.

Nahezu linear verhalten sich dagegen die Veränderungen in den von thermodynamischen Zustandsgrößen geprägten Partikeleigenschaften Dichte, Sulfatmassenanteil und Wasseraufnahmekoeffizient. Die Variation dieser Parameter ist maßgeblich an die Luftfeuchte gebunden, welche wiederum mit der Temperaturentwicklung des Modells korreliert ist (Abbildungen 6.10, b und c), wodurch sich ein direkter Zusammenhang zwischen QBO-Modulation der Temperatur in den Tropen sowie Extratropen und den QBO-Modulationen in den Partikeleigenschaften herstellen lässt.

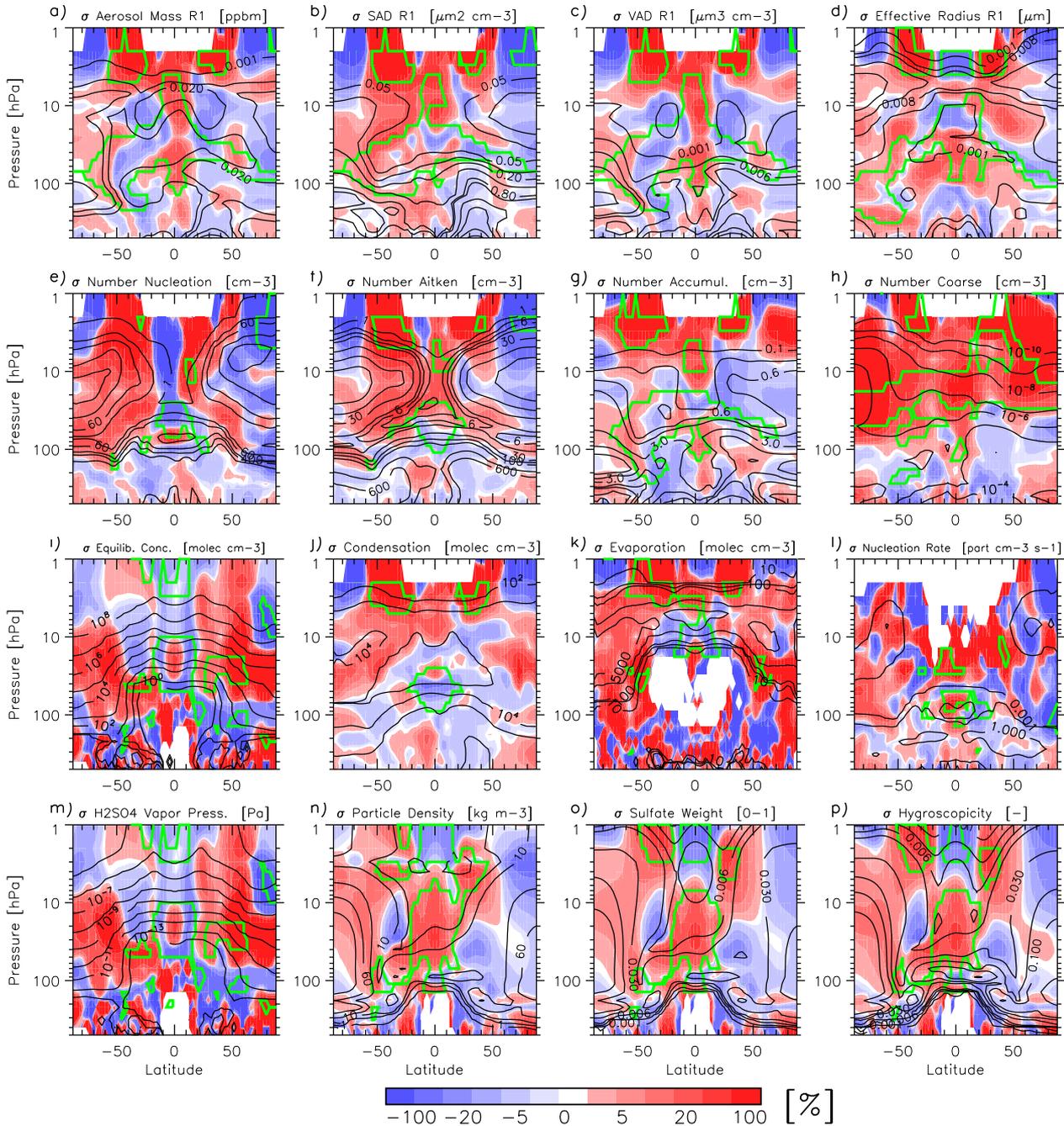


Abbildung 6.21: Prozentualer Unterschied der Standardabweichungen σ von modellierten Aerosolparametern zwischen den Experimenten mit und ohne assimilierter QBO auf Basis der elfjährigen Klimatologie von 1996 bis 2006: (a) Aerosolkonzentration, (b) Partikeloberflächendichte, (c) Partikelvolumendichte, (d) effektiver Radius, modeweise integrierte Partikelanzahlkonzentrationen des (e) *Nucleation Mode*, (f) *Aitken Mode*, (g) *Accumulation Mode* und (h) *Coarse Mode*, (i) H₂SO₄-Gleichgewichtskonzentration, mittlere Massentransferkonzentrationen (j) der Kondensation und (k) Verdunstung, (l) Nukleationsrate, (m) H₂SO₄-Dampfdruck, (n) Sulfatdichte, (o) Sulfatmassenanteil und (p) Wasseraufnahmekoeffizient der Partikel. Die Parameter (a) bis (d) umfassen das gesamte in SAM2 berücksichtigte Partikelgrößenspektrum ($1 \text{ nm} \leq R \leq 2.6 \mu\text{m}$). Schwarze Konturlinien markieren die klimatologische Standardabweichung im nicht-QBO-assimilierten Modell (CTRL), grüne Konturlinien markieren das 90%ige Signifikanzniveau (t-Test).

Klimatologisches Mittel der Aerosolkonzentration

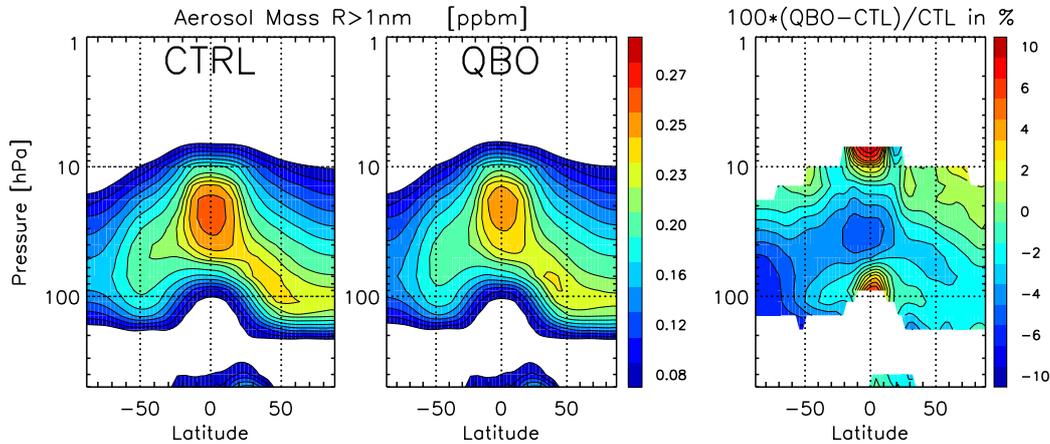


Abbildung 6.22: Gegenüberstellung der elfjährigen Klimatologien des Kontrolllaufs (*CTRL*) und des Experiments mit assimilierter QBO (*QBO*) sowie der prozentuale Unterschied beider Experimente, jeweils anhand der zonal gemittelten Aerosolkonzentrationen des gesamten in SAM2 definierten Partikelgrößenbereichs (Sulfataerosole mit Radien von 1 nm bis 2.6 μm).

Im klimatologischen zonalen Mittel ist die in Experiment *QBO* modellierte Aerosolkonzentration in weiten Teilen der Stratosphäre gegenüber der des Kontrolllaufs *CTRL* deutlich geringer (Abbildung 6.22). Vor allem im TSR und im südlichen Polarwirbel wird die Aerosolmasse des Modells um ein Zehntel reduziert. Eine entsprechende Erhöhung der Aerosolmasse zeigt sich in den von aufwärtsgerichtetem Vertikaltransport gekennzeichneten Regionen der tropischen Tropopause und der oberhalb des TSR. Das Zentrum des TSR verlagert sich in Experiment *QBO* um eine Modellschicht nach oben, von ~ 25 hPa auf ~ 14 hPa (vergleiche auch Abbildung 6.15).

Konturlinienaufweitungen in der unteren Stratosphäre kennzeichnen das untere Transportregime, wie es u.a. aus Aerosolextinktionen der SAGE-Instrumente bekannt ist (Trepte und Hitchman, 1992; Hitchman et al., 1994). Die Aerosolklimatologie der Pre-Pinatubo-Zeit von Hitchman et al. (1994) zeigt eine ähnlich separate Region relativ hoher Aerosolkonzentrationen in der nördlichen Hemisphäre, wie es sich in Experiment *QBO* ausbildet, in Hitchman et al. (1994) ist es allerdings etwa 20° weiter polwärts ausgerichtet. Experiment *QBO* weist zudem eine stärkere Abschirmung des südlichen Polarwirbels gegenüber den Partikelkonzentrationen in den mittleren Breiten der Südhemisphäre auf.

Saisonale klimatologische Mittel ausgewählter Aerosolparameter

Die jahreszeitlichen Mittel der Aerosolkonzentrations-Klimatologie (Abbildung 6.23) werden maßgeblich bestimmt von der extratropischen Beeinflussung durch Sekundärpartikel mit Ursprung in den Konvektionszellen der Tibetischen Hochebene (siehe auch Kapitel 6.2.1). Der Eintrag troposphärischer Aerosole reduziert sich in Experiment *QBO* entsprechend der Gesamtreduktion der Aerosolmasse in der Stratosphäre.

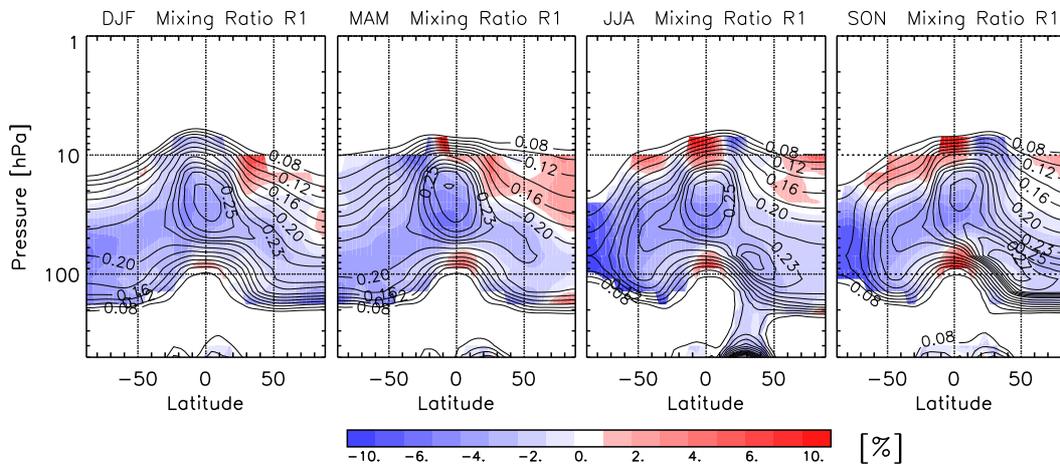


Abbildung 6.23: Prozentualer Unterschied der Aerosolkonzentration des Partikelgesamtspektrums zwischen den Experimenten *QBO* und *CTRL* anhand der saisonal und zonal gemittelten Klimatologie des Zeitraums 1996 bis 2006. Schwarze Konturlinien kennzeichnen die im Kontrolllauf *CTRL* modellierte Aerosolkonzentration [ppbm(S)], dessen Integration über das gesamte in SAM2 definierte Partikelspektrum erfolgt, *R1* kennzeichnet demnach Partikel mit einem Radius ≥ 1 nm.

Die jahreszeitliche Verlagerung des TSR in die jeweilige Sommerhemisphäre und die damit einhergehende intensivierte Abschirmung der TSR-Aerosole von quasi-isentropischem Ausmischen in die mittleren Breiten wird durch die nahezu horizontal verlaufenden Konzentrationsgradienten in den Subtropen ersichtlich. Die Aerosolkonzentrationen der jeweiligen Winterhemisphären sind in Experiment *QBO* oberhalb von 30 hPa um mehrere Prozent erhöht und lassen auf erhöhte Ausmischung von Aerosolen aus dem TSR durch intensivierte Aktivität planetarer Wellen schließen.

Die im klimatologischen Mittel im *QBO*-assimilierten Experiment erhöhte Aerosolkonzentration im Bereich der tropischen Tropopause (Abbildung 6.22) stellt keine Charakteristik der nordhemisphärischen Wintermonate dar.

Wird zur Integration des Parameters das gesamte in SAM2 definierte Partikelspektrum herangezogen, reduziert sich im *QBO*-assimilierten Experiment die Aerosoloberflächendichte vergleichsweise homogen in der gesamten Stratosphäre (Abbildung 6.24). Korrespondierend zu den erhöhten Aerosolkonzentrationen in der tropischen Tropopause (Abbildung 6.23) zeigt sich eine leichte Erhöhung der SAD außer im nordhemisphärischen Winter. Dieser Effekt verstärkt sich, zieht man ausschließlich Partikel im *Accumulation* und *Coarse Mode* in die Betrachtung ein.

Die SAD ist außerdem stark erhöht in den von Verdunstung gekennzeichneten Regionen oberhalb der zentralen Bereiche der stratosphärischen Aerosolschicht, da Verdunstung von Partikelmaterial mit einer Erhöhung des Mischungsverhältnisses kleiner Partikel einhergeht (Partikel schrumpfen in ihrer Größe). Beide SAD-Integrale in diesen Regionen lassen sich mit der im *QBO*-assimilierten Modell intensivierten Verdunstung in Verbindung bringen, da nicht nur ultra-feine Partikel durch Verdunstung gebildet werden, sondern auch kleinere Partikel in den höheren Moden, also Partikel, die dem *Accumulation Mode* zugeordnet werden. Letzteres erklärt die positiven Abweichungen der SAD *R50* in den Verdunstungsregionen der stratosphärischen Aerosolschicht.

Weiterhin können durch *QBO*-Assimilation intensivierte Mischungsvorgänge in der *Surf Zone* (McIntyre und Palmer, 1984) der jeweiligen Winterhemisphären zu erhöhten Oberflächendichten beitragen.

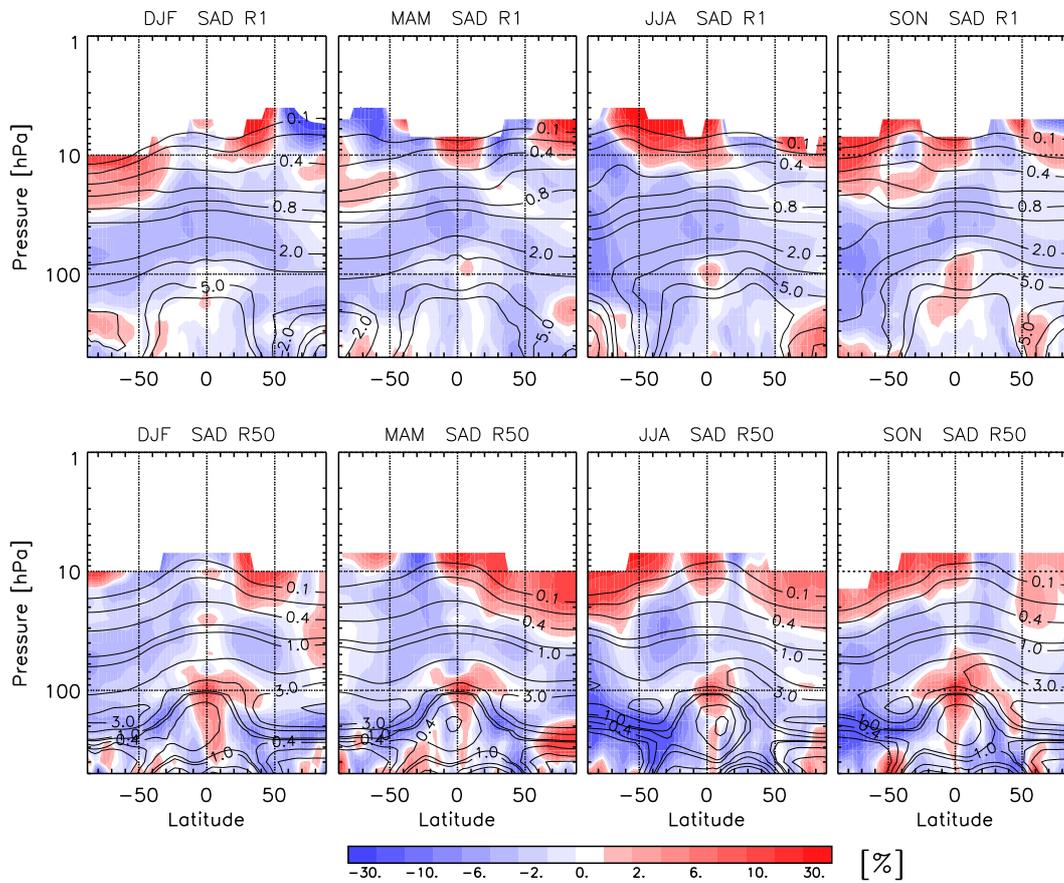


Abbildung 6.24: Wie 6.23, aber hier für die Aerosoloberflächendichte des Partikelgesamtspektrums (obere Reihe) und für Partikel mit einem Radius ≥ 50 nm (untere Reihe). Konturen in $[\mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}]$.

Die Klimatologien der Aerosolvolumendichte weisen in beiden Experimenten ähnliche Charakteristika auf wie die SAD, daher soll an dieser Stelle auf eine entsprechende Abbildung dieses Parameters verzichtet werden. Der effektive Radius (Abbildung 6.25), als flächengewichtete Kenngröße der modellierten Partikelgrößenverteilung, weist die Regionen der Stratosphäre aus, in denen durch QBO-Assimilation unterschiedliche Modulationen in Volumendichte und Oberflächendichte hervorgerufen werden.

Verglichen mit den relativen Unterschieden zwischen beiden Experimenten in der modellierten SAD fallen die Abweichungen in der Klimatologie des effektiven Radius durch QBO-Assimilation gegenüber dem Standardmodell gering aus. Abgesehen von den Unterschieden beider Experimente oberhalb von 10 hPa lässt sich ein gesteigertes Verhältnis von Volumen- zu Oberflächendichte in Experiment *QBO* nur in der tropischen UT/LS-Region feststellen. Ausgeprägte, am Äquator in ~ 30 hPa zentrierte Minima zeigen sich in allen Jahreszeiten in beiden Integrationen des effektiven Radius. Dies deutet auf eine Verlagerung des Parameters in Richtung kleinere Partikel hin, jedoch kann zur Zeit nicht eindeutig festgestellt werden, welche Prozesse diese mehr oder weniger stationäre Charakteristik hervorrufen.

Die Gegenüberstellung der Klimatologien der modeweise integrierten Partikelanzahlkonzentrationen (Abbildung 6.26) beider Experimente offenbart sehr hohe positive Unterschiede im QBO-assimilierten Modell, vor allem in der mittleren Stratosphäre und den Extratropen. Im TSR des Experiments *QBO* finden sich weniger ultra-feine Partikel, wodurch letztlich entsprechend negative Unterschiede in SAD *R1* gegenüber Experiment *CTRL* hervorgerufen werden (Abbildung 6.24). In Bezug auf die erhöhten

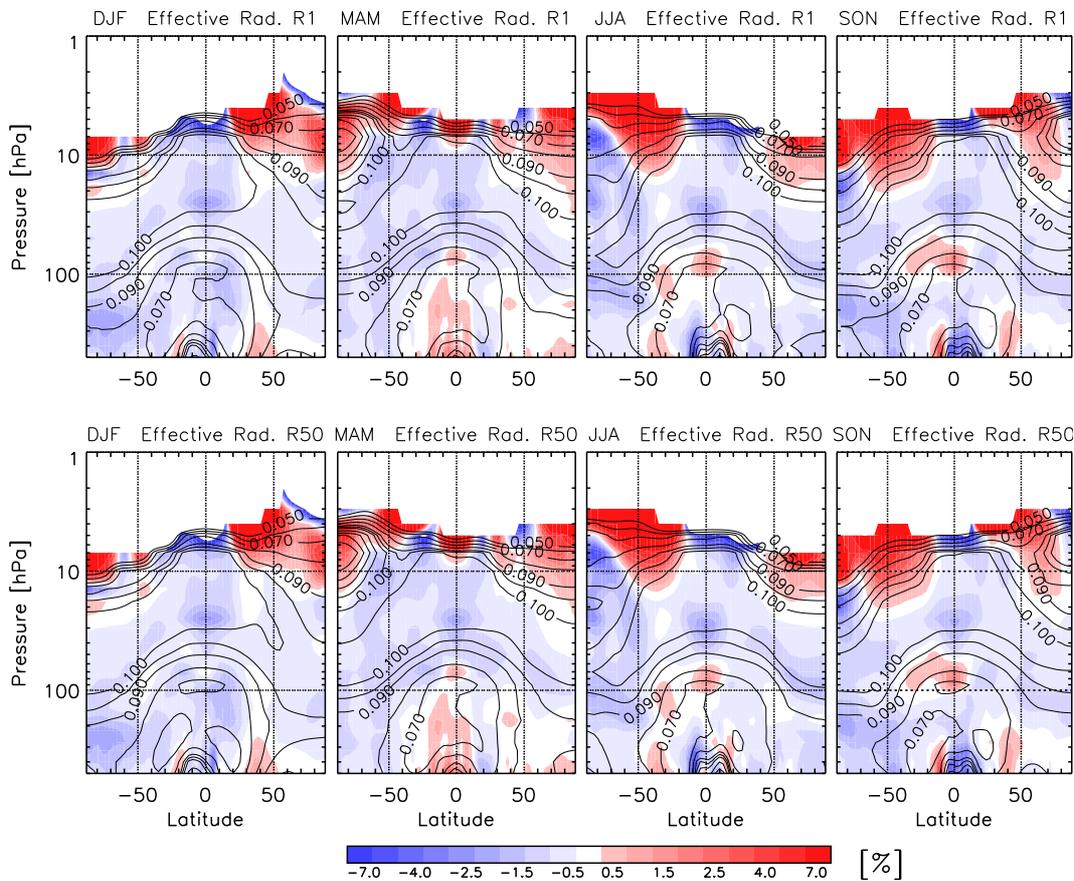


Abbildung 6.25: Wie 6.24, aber hier für den effektiven Radius. Konturen in $[\mu\text{m}]$.

Oberflächendichten, die ausschließlich durch Partikel im *Accumulation Mode* und *Coarse Mode* gebildet werden, lässt sich aus Abbildung 6.26 schlussfolgern, dass im QBO-assimilierten Experiment vornehmlich Partikel der beiden oberen Moden aus der tropischen Konvergenzzone in die Stratosphäre transportiert werden, da eine entsprechende Modulation von Partikeln des *Aitken Mode* nicht feststellbar ist. Die in der tropischen Stratosphäre erhöhten Konzentrationen von Partikeln im *Nucleation Mode* scheinen größtenteils mit der in Experiment *QBO* intensivierten Partikelformation zusammenzuhängen, nicht aber mit dem Transport der Partikel dieses Modes durch die tropische Tropopause.

Weiterhin auffällig sind höhere Partikelkonzentrationen im *Coarse Mode* in und oberhalb des zentralen Bereichs der Aerosolschicht in Experiment *QBO*, die mit einer deutlich erhöhten Variabilität des QBO-assimilierten Modells bezüglich dieses Parameters zusammenhängt (Abbildung 6.21, h). Nichtsdestotrotz bleiben die Konzentrationen von Partikeln im *Coarse Mode* derart gering, dass sie in stratosphärischen Partikelanzahlverteilungen kaum zur Geltung kommen, vergleiche Abbildung 6.43.

Die Klimatologie der H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration im QBO-assimilierten Experiment (Abbildung 6.27) wird in direkter Weise von den QBO-Modulationen der Temperatur (Anhang E, Abbildung E.3) beeinflusst. Temperaturanomalien von wenigen Kelvin induzieren vergleichsweise hohe Änderungen im H_2SO_4 -Dampfdruck und somit in der H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration von teilweise über 100 % in den mittleren bis hohen Breiten (vergleiche Abbildung 3.1). Diese wirken sich nahezu zwangsläufig auf die mikrophysikalischen Transfergrößen der Nukleation, der Kondensation und der Verdunstung aus. In

Abhängigkeit der QBO-induzierten Modulationen in der Verfügbarkeit von Wassermolekülen (spezifische und relative Feuchte, Abbildungen 6.10 und 6.30) können sich Hydratcluster formieren, die durch Kondensation von H_2O und H_2SO_4 -Gasmolekülen in ihrer Größe weiter anwachsen und schließlich stabile Aerosolpartikel bilden.

Der Nukleationsprozess wird in weiten Bereichen der oberen Troposphäre im QBO-assimilierten Experiment intensiviert, wie Abbildung 6.27 zeigt. Die Parametrisierung der binären homogenen Nukleation nach Vehkamäki et al. (2002) ist sensitiv gegenüber extrem tiefen Temperaturen in der tropischen und subtropischen UT/LS-Region (Abbildungen E.3 und E.4). Die im QBO-assimilierten Experiment hervorgerufene positive Temperaturanomalie in der äquatorialen Tropopause intensiviert den Nukleationsprozess, einhergehend mit im klimatologischen Mittel negativen Temperaturanomalien ist die subtropische untere Stratosphäre jedoch von einer Unterdrückung des Partikelbildungsprozesses gekennzeichnet.

Die bereits in Kapitel 6.2.3 diskutierten Zusammenhänge zwischen Verdunstung und Kondensation in der äquatorialen Stratosphäre lassen sich auf die Extratropen übertragen, wie aus Abbildung 6.27 ersichtlich wird. Beide Prozesse stehen in direktem Zusammenhang mit Modulationen in der H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration im QBO-assimilierten Experiment und treten im Langzeitmittel weitestgehend simultan auf.

Ebenfalls in Kapitel 6.2.3 angesprochen wurde die geringe Modulation der Kenngrößen der Partikelkomposition. Die Abbildungen 6.29 und 6.28 schließen sich dem an, zumindest bezüglich der Schwefelsäure-Parameter. Das Feuchtwachstum der Partikel (Hygroskopie) verhält sich analog zur Entwicklung der relativen Feuchte (Abbildung 6.30). Vor allem Partikel in den Polarregionen werden von den QBO-induzierten Modulationen der Temperatur und des Wasserdampfgehalts der Stratosphäre beeinflusst, Aerosole weisen dort eine geringfügig reduzierte Sulfatkonzentration auf. Obwohl entsprechende Modulationen prozentual gesehen gering ausfallen, können sie doch für die heterogene Chemie des Ozonabbaus bzw. für dessen Relaxation eine Rolle spielen, da bereits geringe Konzentrationsänderungen im Sulfatanteil unter tiefen Temperaturen von (hier nicht miteinbezogenen) chloraktivierenden Substanzen ersetzt werden (Zhang et al., 1993a,b; Tabazadeh et al., 1994b, 2000; Hanson et al., 1994; Hamill et al., 1996).

Durch die Gegenüberstellungen der Aerosolklimatologien der Experimente mit und ohne assimilierter QBO offenbaren sich signifikante Unterschiede in der Modellierung stratosphärischer Aerosole. Sowohl im direkten Einflussbereich der am Äquator absteigenden zonalen Winde der QBO aber auch in den Subtropen bis hohen Breiten zeigen sich zum Teil hohe Modulationen in den Aerosolparametern, die mit den von der QBO induzierten Modulationen der stratosphärischen Zirkulation zusammenhängen. Es ist jedoch teilweise schwierig, anhand des Vergleichs von Klimatologien einzelner Aerosolparameter abzuleiten, wie sich die Berücksichtigung der QBO in der Modellierung der Aerosoldynamik auf die Partikelspektren von Masse, Anzahl und insbesondere auf die Partikelgröße auswirkt, da QBO-induzierte Modulationen der mikrophysikalischen Prozesse vor allem in den Extratropen in einem nicht-linearen Zusammenhang mit den QBO-Modulationen dieser Aerosolparameter stehen. So geht beispielsweise eine in bestimmten Regionen der Stratosphäre reduzierte SAD im QBO-assimilierten Modell nicht zwangsläufig mit einer Reduktion der Anzahlkonzentration kleiner bzw. ultra-feiner Partikel einher. Zahlreiche Effekte scheinen sich im globalen Kontext zu widersprechen, sind aber eventuell unter regionalen Gesichtspunkten erklärbar. Daher ist es unerlässlich, einzelne Prozesse in Experiment *QBO* detaillierter und in ihrer zeitlichen Entwicklung zu analysieren, denn das periodische Signal der quasi-zweijährigen Schwingung findet sich nicht nur in Zirkulationsparametern und der damit assoziierten stratosphärischen Temperaturentwicklung, sondern ebenso in den meridionalen und vertikalen Ausbreitungen von stratosphärischen Spurenstoffkonzentrationen (u.a. Gray und Chipperfield, 1990; O'Sullivan und Chen, 1996; Gray, 2000; Shuckburgh et al., 2001).

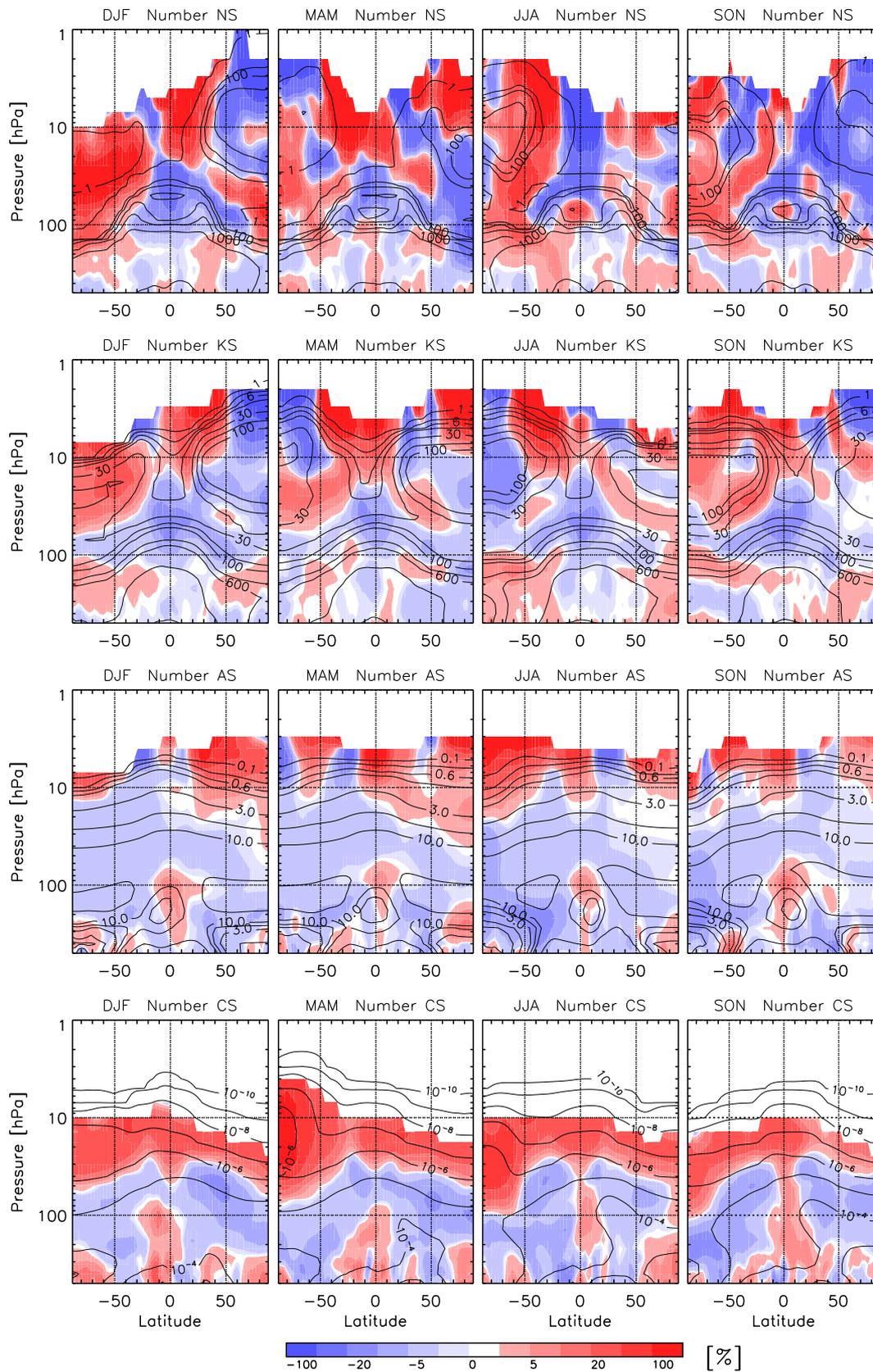


Abbildung 6.26: Wie 6.23, aber hier für die modeweise integrierten Partikelanzahlkonzentrationen. Konturen in $[\text{cm}^{-3}]$.

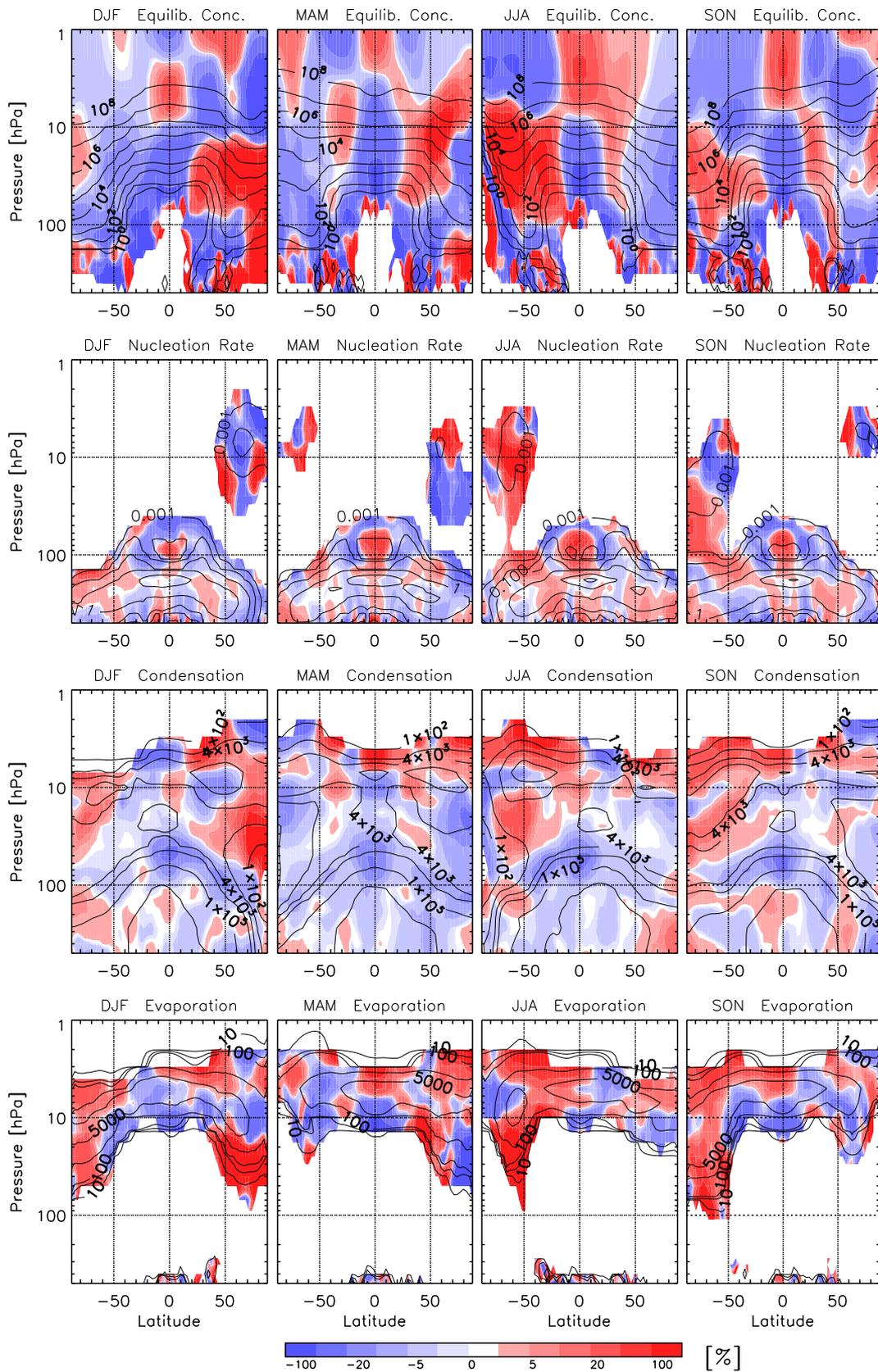


Abbildung 6.27: Wie 6.23, aber hier für die H_2SO_4 -Gleichgewichtskonzentration und die aerosol-mikrophysikalischen Prozessgrößen (Konturen in $[\text{Moleküle cm}^{-3}]$, Nukleationsrate in $[\text{Partikel cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$).

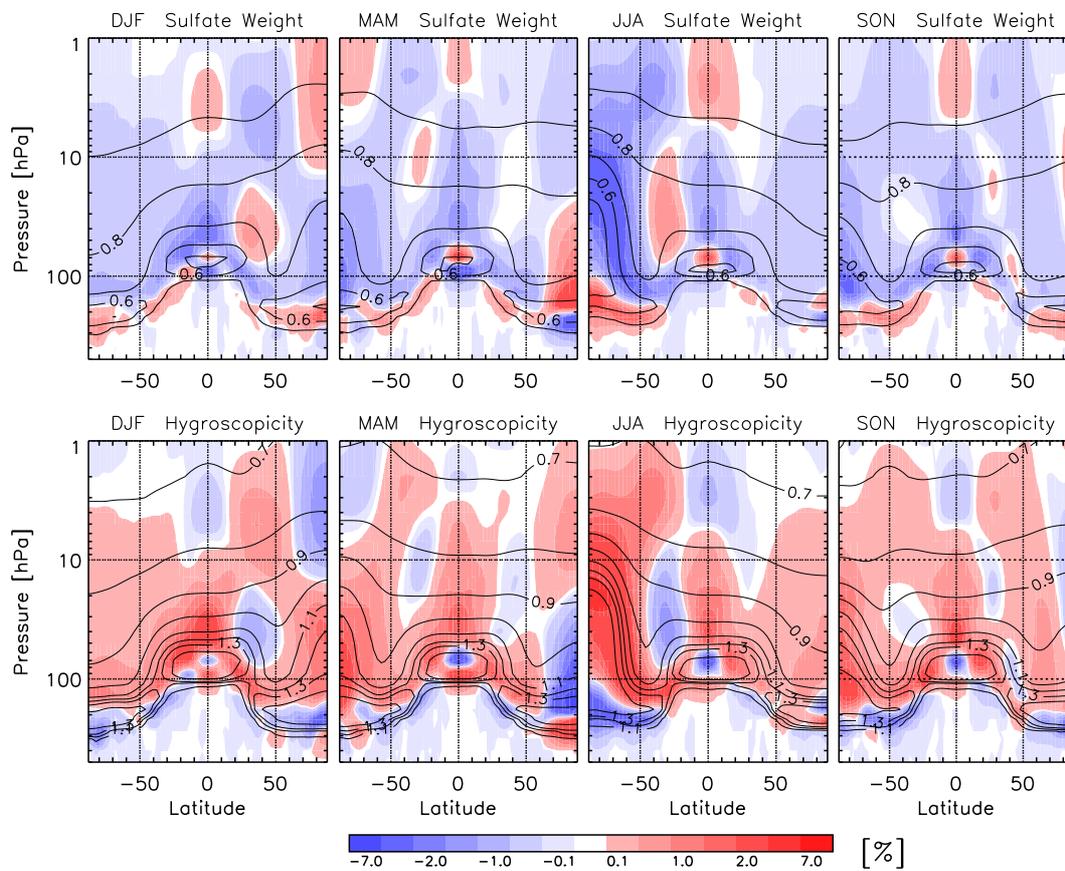


Abbildung 6.28: Wie 6.23, aber hier für den Sulfatmassenanteil (obere Reihe) und den Wasseraufnahmekoeffizienten der Partikel (untere Reihe). Konturen [-].

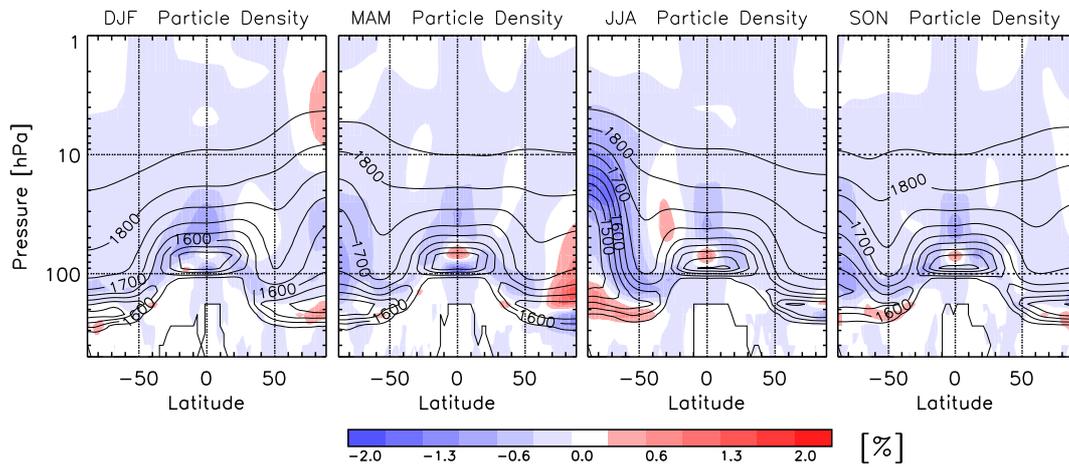


Abbildung 6.29: Wie 6.23, aber hier für die Sulfatdichte in den Partikeln. Konturen in $[\text{kg m}^{-3}]$.

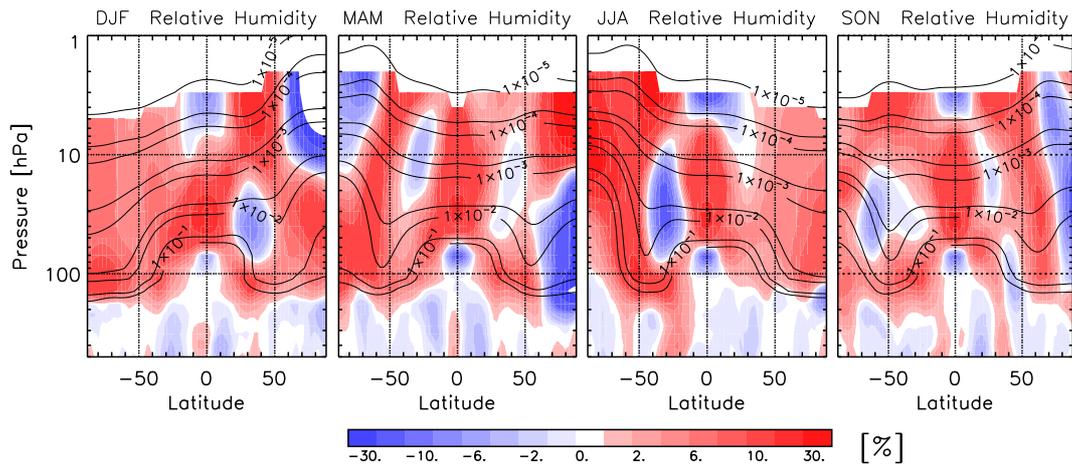


Abbildung 6.30: Wie 6.23, aber hier für die in SAM2 korrigierte relative Luftfeuchte. Konturen [-].

6.2.5 QBO-Modulation im meridionalen Aerosoltransport

Analysen von Aerosolextinktionen der Satelliteninstrumente SAM II und SAGE I/II in der vulkanisch belasteten stratosphärischen Aerosolschicht der Dekade vor der Eruption des Mt. Pinatubo 1991 zeigen eine hohe Variabilität in der vertikalen Struktur und der meridionalen Verteilung von Aerosolpartikeln der tropischen Stratosphäre. Die Arbeiten von Trepte und Hitchman (1992), Hitchman et al. (1994) und Hasebe (1994) offenbarten den Zusammenhang zwischen den sich dynamisch verändernden Strukturen der beobachteten Aerosolextinktionen und den QBO-modulierten Transportmechanismen der Brewer-Dobson-Zirkulation. Trepte und Hitchman (1992) schlussfolgerten, dass die Zyklen von advektivem tropischen Aerosol-Vertikaltransport und der meridionalen Verteilung der Partikel in QBO-kontrollierten Transportregimen zur Ausbildung eines tropischen stratosphärischen Reservoirs (TSR) oberhalb der Tropopause führt. Dessen QBO-Modulationen und Interaktionen mit extratropischen planetaren Wellen spielen eine bedeutende Rolle in der gesamtstratosphärischen Verteilung von Spurenstoffen.

Trepte und Hitchman (1992) identifizierten anhand der Aerosolextinktionsgradienten einen effektiven meridionalen Aerosoltransport in der unteren Stratosphäre innerhalb weniger Kilometer oberhalb der Tropopause, der die globale Ausbreitung tropischer Injektionen vulkanischen Ursprungs innerhalb weniger Monate ermöglicht und vorzugsweise in die Winterhemisphäre gerichtet ist. Der Meridionaltransport von Aerosolen in diesem unteren Regime ist eine direkte Konsequenz der mit der QBO assoziierten Sekundärzirkulation: Tropische Spurenstoffkonzentrationen unterhalb der Zonen maximaler meridionaler Konvergenz in westlichen QBO-Phasen (die ein vertikal gestrecktes und vertikal leicht angehobenes TSR ausbilden) stehen unter dem Einfluss östlicher zonaler Winde und sind von meridionaler Divergenz geprägt (Plumb und Bell, 1982; Choi et al., 2002). Spurenstoffe, die am Äquator durch QBO-induzierte Advektion in Regionen oberhalb des unteren Transportregimes gelangen, tendieren dazu, eine gewisse Zeit im TSR zu verbleiben, bevor sie vorzugsweise in östlichen QBO-Scherphasen relativ zur Brewer-Dobson-Zirkulation polwärtig transportiert werden, wobei hier der nordhemisphärische Transport dominiert (Trepte und Hitchman, 1992; Choi et al., 2002).

Die Brechung von in westlichen Winden der Winterhemisphären vertikal und horizontal frei propagierenden Rossbywellen induziert großskalige Mischungsprozesse, welche irreversibel und effektiv Aerosole und andere Spurenstoffe aus dem TSR entfernen und welche maßgeblich die homogene Durchmischung der *Surf Zone* prägen (u.a. Randel et al., 1993). Die durch diese Mischungsprozesse verursachte Erosion der subtropischen Mischungsbarriere ist gekennzeichnet von der Ausbildung starker quasi-isentropischer Konzentrationsgradienten an fast vertikal verlaufenden Konzentrationsisoplethen im Bereich der Subtropen (u.a. Polvani et al., 1995; Neu et al., 2003). Der Prozess der Ausmischung von TSR-Spurenstoffen ist prinzipiell mit den Interaktionen von Rossbywellen an den Polarwirbeln vergleichbar, eine Zusammenfassung der grundlegenden Mechanismen, die diesen Mischungsprozessen zugrunde liegen, erfolgt in Haynes (2005). Während östlicher QBO-Phasen können Rossbywellen aus den Winterhemisphären nicht in die Tropen vordringen, wodurch im TSR residierende Aerosole weitestgehend von den mittleren Breiten isoliert werden (O'Sullivan und Chen, 1996; Shuckburgh et al., 2001). Diese Isolation von der relativ gut durchmischten *Surf Zone* führt konsequenterweise ebenfalls zu stark ausgeprägten Konzentrationsgradienten im Bereich der subtropischen Mischungsbarrieren. In den Winterhemisphären lässt sich unter dem Einfluss westlicher QBO-Phasen eine Verlagerung der *Surf Zone* in Richtung Äquator feststellen. Verschiedene Arbeiten zeigten hier Rossbywelleninteraktion innerhalb des TSR bzw. an der gegenüberliegenden subtropischen Mischungsbarriere der Sommerhemisphäre (u.a. O'Sullivan und Chen, 1996).

Abbildung 6.31 zeigt zonale Mittel der modellierten Aerosolkonzentrationen, die ergänzt werden um die Darstellungen der QBO-induzierten Aerosolkonzentrationsanomalien in Abbildung 6.32, jeweils separiert

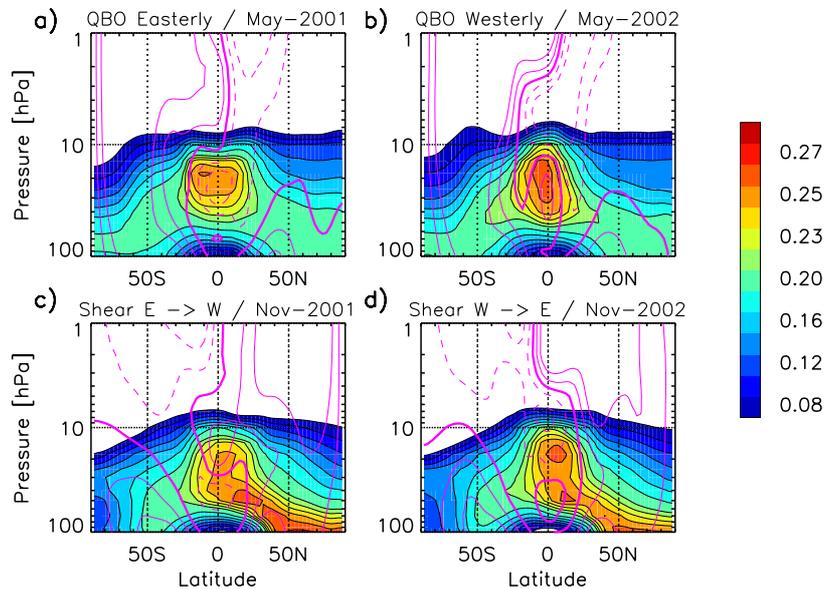


Abbildung 6.31: Meridionale Verteilungen der modellierten Aerosolkonzentration [ppbm(S)] im QBO-assimilierten Modell: (a) dominierende östliche QBO-Phase bei 1.4°N im Mai 2001, (b) dominierende westliche QBO-Phase im Mai 2002 sowie für (c) die Phasentransitionen von östlicher nach westlicher Phase (westliche Scherphase) im November 2001 und (d) die Transitionen von westlicher nach östlicher QBO-Phase (östliche Scherphase) im November 2002, jeweils auf Basis zonalen Monatsmittel und integriert über den gesamten in SAM2 definierten Partikelgrößenbereich ($1\text{ nm} \geq R \geq 2.6\text{ }\mu\text{m}$). Konturlinien in magenta kennzeichnen den zonalen Wind des jeweiligen zonalen Monatsmittels (Konturlinien-Intervall 10 m s^{-1} , westlich gerichteter Wind gestrichelt), wobei das Kriterium der Phasenseparation in 30 hPa ($\bar{u} = 0$) mit einer dicken Konturlinie markiert ist.

nach dominierenden QBO-Ostphasen und QBO-Westphasen im Mai 2001 bzw. Mai 2002 sowie den im November beider Jahre auftretenden QBO-Scherphasen. Abbildung 6.31 unterscheidet sich von den in Trepte und Hitchman (1992) und Hitchman et al. (1994) gezeigten QBO-Modulationen in Aerosol-extinktionen durch eine striktere Separation von dominierenden QBO-Phasen und den entsprechenden Transitionsphasen. Als letztere werden jene zonalen Monatsmittel angesehen, deren Betrag im zonalen Wind in 30 hPa kleiner ist als 5 m s^{-1} . Demgegenüber separieren die oben genannten Autoren die zur Analyse herangezogenen Satellitendaten je nach Ausrichtung des vertikalen Gradienten im zonalen Wind $\partial u/\partial z \leq 0$ zwischen 20 und 30 km Höhe und beziehen sich in den Analysen ausschließlich auf QBO-Scherphasen. Aufgrund der Mittlung über teilweise längere Zeiträume (wie in Hitchman et al., 1994) spiegeln die dort gezeigten Daten aber jeweils die Charakteristika des TSR unter maximalen zonalen Winden, also vor dem Auftreten der jeweiligen Scherphasen wieder.

Meridionale Divergenz und Konvergenz in den Verteilungen der Aerosole in den Zentren des TSR werden im Modell korrespondierend zu den Beobachtungen (Trepte und Hitchman, 1992; Hitchman et al., 1994; Hasebe, 1994) in dominierenden Ostphasen und Westphasen der QBO wiedergegeben. Ebenfalls mit Beobachtungen konsistent sind die Ausbildung einer charakteristischen Doppelstruktur oberhalb des äquatorialen Zentrums des TSR und die damit einhergehende vertikale Divergenz im Bereich der subtropischen Mischungsbarrieren während der QBO-Ostphase sowie die höher reichende vertikale Ausdehnung der stratosphärischen Aerosolschicht am Äquator in der westlichen QBO-Phase. Die Verlagerung der TSR-Zentralbereiche in die Südhemisphäre während beider QBO-Phasen spiegelt die jahreszeitliche

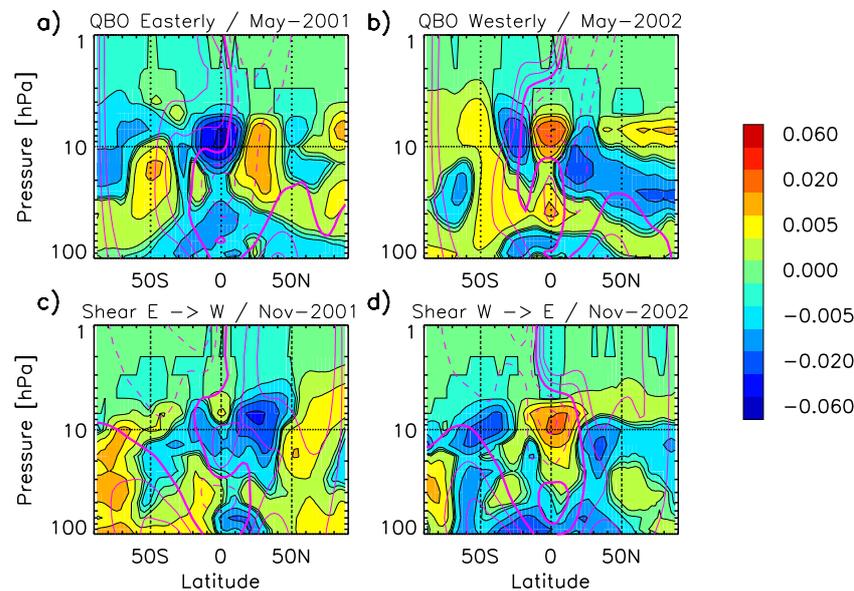


Abbildung 6.32: Wie 6.31, aber hier anhand der QBO-induzierten Anomalien in der modellierten Aerosolkonzentration [ppbm(S)].

Ausrichtung der tropischen Tropopausenfluss-Regionen in die Sommerhemisphären wieder und ist Folge der jahreszeitlichen Ausrichtung des polwärtigen Spurenstofftransports der Residualzirkulation (Holton et al., 1995; Neu et al., 2003, verdeutlicht in den Abbildungen 6.33 und 6.34). Die latitudinale Ausweitung des TSR in den östlichen QBO-Phasen reduziert die Maximalkonzentration von Aerosolen relativ zu den QBO-Westphasen, gleichzeitig intensivieren sich in beiden QBO-Phasen die meridionalen Gradienten im Bereich der subtropischen Mischungsbarriere der südlichen Hemisphäre (Spätherbst, westliche Winde). Die Aerosolkonzentrationen in den mittleren und hohen Breiten der Nordhemisphäre sind sowohl in der östlichen als auch in der westlichen QBO-Phase gekennzeichnet von homogener Durchmischung aufgrund der Rossbywellenaktivität in den östlichen Winden des vorangegangenen Winters (u.a. Gray und Russell III, 1999).

Der polwärtige Transport im unteren Regime (unterhalb 40 hPa) ist, konsistent mit Trepte und Hitchman (1992), deutlich stärker ausgeprägt in der QBO-Westphase, wobei auch im Modell der Transport in die Winterhemisphäre dominiert. Aufgrund der vertikalen Auflösung liegt das untere Transportregime im Modell mindestens 10 hPa oberhalb der Beobachtungen.

Ausschließlich in den Scherphasen konsistent mit anderen Arbeiten sind die relative Aufwärtsverlagerung des TSR-Zentralbereichs in östlichen QBO-Scherphasen und der damit verbundenen meridionalen Konvergenz im unteren Transportregime sowie die relative Abwärtsverlagerung des TSR-Zentralbereichs in westlichen Scherphasen. Trepte und Hitchman (1992) geben einen Vertikalversatz des TSR-Zentralbereichs von 4 km zwischen 20 und 24 km an, im Modell pendeln die Zentralbereiche in den Scherphasen zwischen ca. 30 und 8 hPa (~ 24 bis 32 km), wobei hier die unterschiedlichen Phasen-separationen der Analysen in Betracht zu ziehen sind.

Nicht in den hier vorgestellten Modellergebnissen nachvollziehbar sind folgende von Trepte und Hitchman (1992) aus SAGE-II-Aerosolextinktionen abgeleiteten Transportcharakteristika: 1) Vertikale Advektion von Aerosolpartikeln am Äquator während der östlichen QBO-Phase bzw. der westlichen Scherphase entgegen des abwärts gerichteten Äquatorialtransports der Doppelstruktur oberhalb der höchsten

TSR-Konzentrationen. Sowohl Konzentrationsgradienten als auch Aerosolanomalien (Abbildung 6.32) zeigen eher das Gegenteil, und zwar eine leichte Abwärtsbewegung des TSR relativ zur Residualzirkulation. 2) Die Ausbildung einer Doppelstruktur in der westlichen QBO-Scherphase. 3) Die meridionale Divergenz von modellierten Aerosolkonzentrationen unterhalb des TSR-Zentralbereichs fällt in den, meist am Jahresende auftretenden, westlichen Scherphasen gering aus, da zu dieser Zeit Aerosole im TSR unter dem Einfluss der in die Stratosphäre beförderten extratropischen "Monsun-Aerosole" stehen.

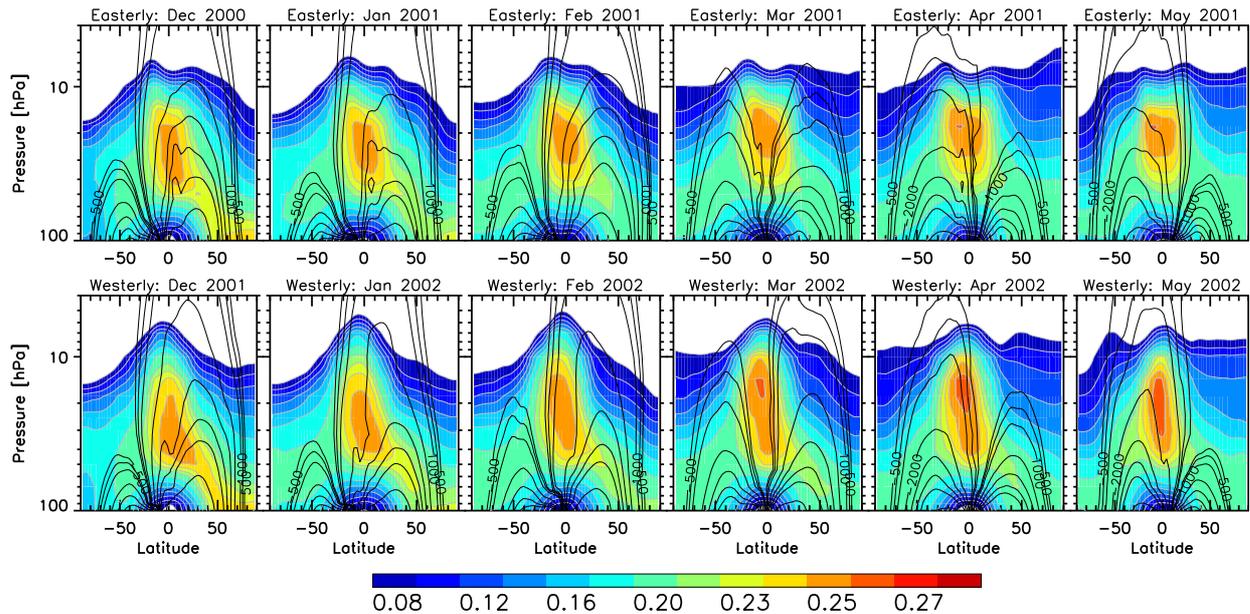


Abbildung 6.33: In Richtung Nordhemisphäre dominierter Meridionaltransport von Aerosolen im unteren Transportregime der Stratosphäre während der östlichen QBO-Phase (obere Reihe) und der westlichen QBO-Phase (untere Reihe) auf Basis zonaler Monatsmittel der Aerosolkonzentration [ppbm(S)]. Schwarze Konturlinien kennzeichnen die transformierte Eulersche Massenstromfunktion χ in [10^6 kg s^{-1}].

Die Abbildungen 6.33 und 6.34 geben weitere detaillierte Einblicke in die QBO-modulierten Transportmechanismen der modellierten Aerosolkonzentration anhand der zeitlichen Entwicklung zonaler Monatsmittel über einen vollständigen QBO-Zyklus beginnend im Dezember 2000 bis einschließlich November 2001. Abbildung 6.33 fasst den in die Nordhemisphäre dominierten Meridionaltransport im unteren Transportregime zusammen, Abbildung 6.34 den in Richtung Südhemisphäre. Aus den Abbildungen geht hervor, dass die zuvor in den Abbildungen 6.31 (a) und (b) gezeigten zonalen Mittel der Aerosolkonzentration das Auftreten höchster meridionaler äquatorialer Divergenz (Konvergenz) unter dem Einfluss maximaler östlicher (westlicher) Winde der QBO beispielhaft repräsentieren.

Da die Isoplethen der transformierten Eulerschen Massenstromfunktion χ (TEM, Andrews et al., 1987) mit den Transportwegen der Residualzirkulation verknüpft sind, spiegelt sich in den Abbildungen 6.33 und 6.34 die maßgeblich durch Advektion geprägte vertikale Verteilung von Aerosolen wieder. Das obere Transportregime folgt den Isoplethen der Massenstromfunktion auch unter einsetzenden abwärts propagierenden westlichen Winden im Einflussbereich der SAO (Dezember 2000, Anfang 2001). Die sich dadurch ausbildende Doppelstruktur am Äquator oberhalb von 10 hPa zeigt sich auch in anderen langlebigen Spurenstoffkonzentrationen der Stratosphäre, z.B. Methan, ebenso die abgestufte Form der vertikalen Gradienten im Bereich der subtropischen Mischungsbarriere (Randel et al., 1998; Gray, 2000).

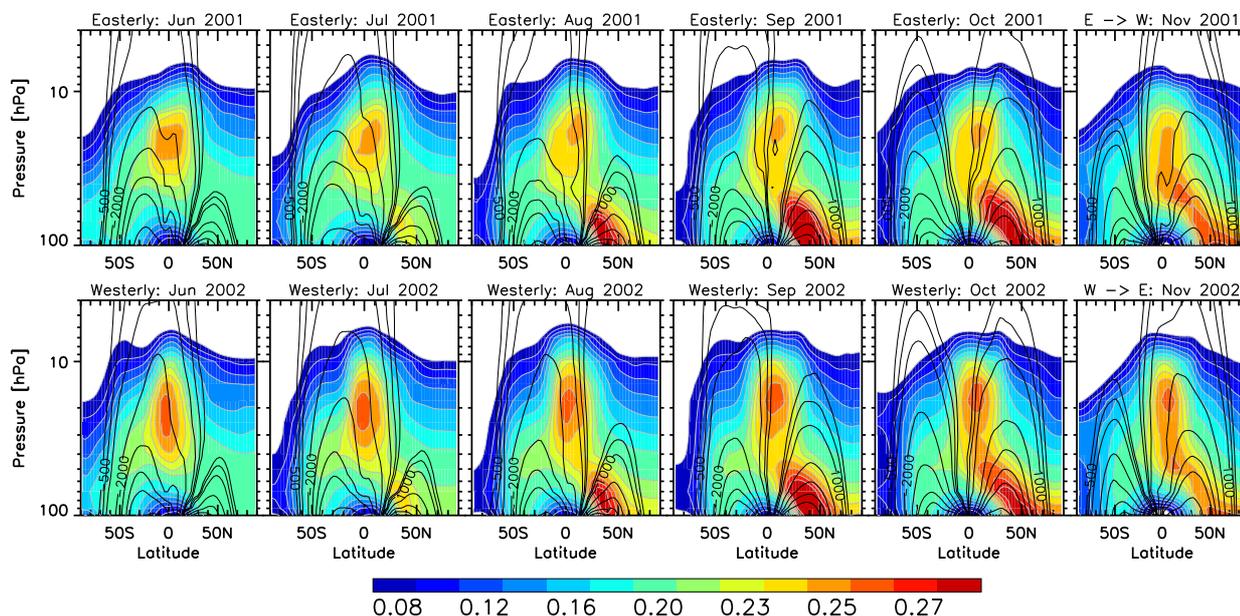


Abbildung 6.34: Wie 6.33, aber hier anhand des in Richtung Südhemisphäre gerichteten Meridionaltransports im unteren Regime.

Meridionale Divergenz im unteren Transportregime bedingt die zwischen 60 und 30 hPa in westlichen QBO-Phasen am Äquator deutlich voneinander separierten Zirkulationszellen (beispielsweise im März 2002). Meridionale Konvergenz im unteren Regime während der östlichen QBO-Phase zeigt sich anhand der in diesen Höhen am Äquator stärker ausgeprägten horizontalen Gradienten der Massenstromfunktion (April 2001). Die Stärke des Transports im unteren Regime wird zwar von der QBO moduliert (intensiviert in westlichen QBO-Phasen), die generelle Ausrichtung des Regimes ist jedoch, wie die des oberen Regimes, an die jahreszeitliche Entwicklung der Residualzirkulation gekoppelt.

Der Einfluss des im Sommer und Herbst jeden Jahres durch konvektiven Vertikaltransport über der tibetischen Hochebene in die Stratosphäre transportierten Aerosols auf das tropische Reservoir lässt sich bis in den Januar des darauf folgenden Jahres nachweisen. Eine QBO-Modulation dieses Phänomens existiert, wie aus den QBO-induzierten Aerosolkonzentrationsanomalien in Abbildung 6.36 ersichtlich wird, diese sind jedoch im klimatologischen Mittel nicht signifikant (Abbildung 6.21, a).

Die subtropische Mischungsbarriere verlagert sich in den Winterhemisphären unter dem Einfluss westlicher QBO-Phasen einige Grad in Richtung Äquator. Obwohl an dieser Stelle keine direkte Analyse der modellierten Wellenaktivität erfolgt, lässt sich aus den Aerosolkonzentrationsgradienten schlussfolgern, dass Rossbywelleninteraktionen mit den subtropischen Mischungsbarrieren reproduziert werden können. Zum einen erscheinen die *Surf Zonen* im späten Winter und in den Frühjahrsmonaten in den jeweiligen Hemisphären homogen durchmischt (u.a. Gray und Russell III, 1999). Zum anderen zeigen sich in den Winterhemisphären stärkere Konzentrationsgradienten und steilere Konzentrationsisoplethen in westlichen QBO-Phasen als in östlichen QBO-Phasen, welche eine stärkere Erosion der subtropischen Mischungsbarrieren kennzeichnen und zudem ein Indiz für Rossbywelleninteraktionen in den Tropen sind (u.a. Polvani et al., 1995; O'Sullivan und Chen, 1996; Shuckburgh et al., 2001).

Da die Nordhemisphäre von erhöhter Wellenaktivität geprägt ist (Andrews et al., 1987), sollte die subtropische Mischungsbarriere der nordhemisphärischen Winterseite in westlichen QBO-Phasen (DJF 2002)

wegen der stärkeren Erosion größere Gradienten aufweisen als die der südlichen Winterhemisphäre (JJA 2002). Dies scheint jedoch vom monsunbedingten Eintrag relativ hoher Aerosolkonzentrationen aus der Troposphäre der Nordhemisphäre im Herbst zuvor (SON 2001) relativiert zu werden (mit anderen Worten: mehr Aerosolmasse, die im Nordhemisphärenwinter von Rossbywellenaktivität in die mittleren Breiten zu mischen ist).

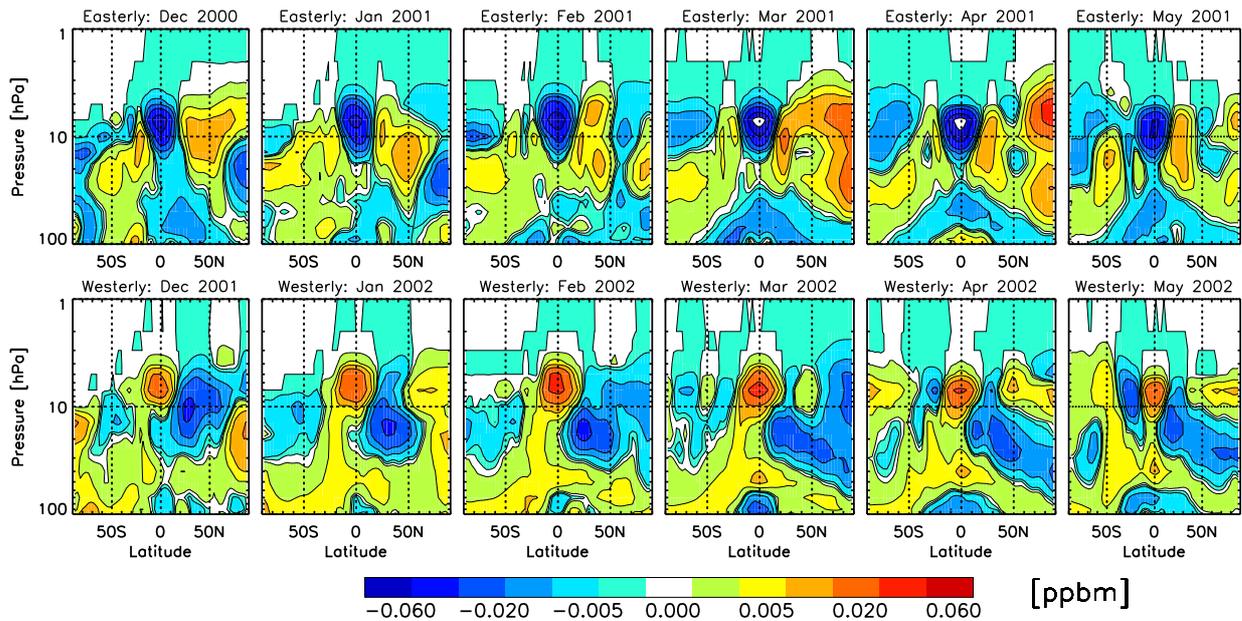


Abbildung 6.35: Wie 6.33, aber hier anhand der QBO-induzierten Anomalien in den modellierten Aerosolkonzentrationen.

Nahezu senkrecht verlaufende Isoplethen der modellierten subtropischen Aerosolkonzentrationen („subtropisches Stufenmuster“) in östlichen QBO-Phasen (Randel et al., 1998; Baldwin et al., 2001) stehen im Zusammenhang mit asymmetrischen extratropischen QBO-Zirkulationsanomalien in der mittleren Stratosphäre (Kinnersley, 1999; Gray, 2000). Ein zweites extratropisches Stufenmuster in den Isoplethen der modellierten Aerosolkonzentrationen zeigt sich in der südlichen Hemisphäre verstärkt unter dem Einfluss westlicher QBO-Phasen und ist auf die Isolation des sich im Juni formierenden und im Oktober/November auflösenden südlichen Polarwirbels zurückzuführen.

Die vertikale Auflösung des Modells scheint jedoch einen Höhenversatz in der Ausbildung der subtropischen Mischungsbarriere und somit in der Abschirmung der TSR-Partikel von in die mittleren Breiten gerichteten Transportprozessen zu bewirken: Im Modell reicht sie bis hinunter nach 30 hPa, Beobachtungen von Hitchman et al. (1994) zeigen hier deutlich ausgeprägtere Abschirmungen von TSR-Aerosolen, die bis hinunter nach 55 hPa reichen.

Aus den zu den Abbildungen 6.33 und 6.34 korrespondierenden Aerosolkonzentrationsanomalien (Abbildungen 6.35 und 6.36) geht hervor, dass vor allem TSR-Aerosole oberhalb von 10 hPa deutlichen QBO-Modulationen ausgesetzt sind. Aufwärts (abwärts) gerichteter Vertikaltransport in östlichen (westlichen) QBO-Scherphasen oberhalb der absteigenden Region maximaler westlicher (östlicher) Winde induziert diese positiven (negativen) Anomalien. Dies beeinflusst vor allem die u.a. in Abbildung 6.15 dargestellte maximale vertikale Ausdehnung der stratosphärischen Aerosolschicht, die bedingt durch diese

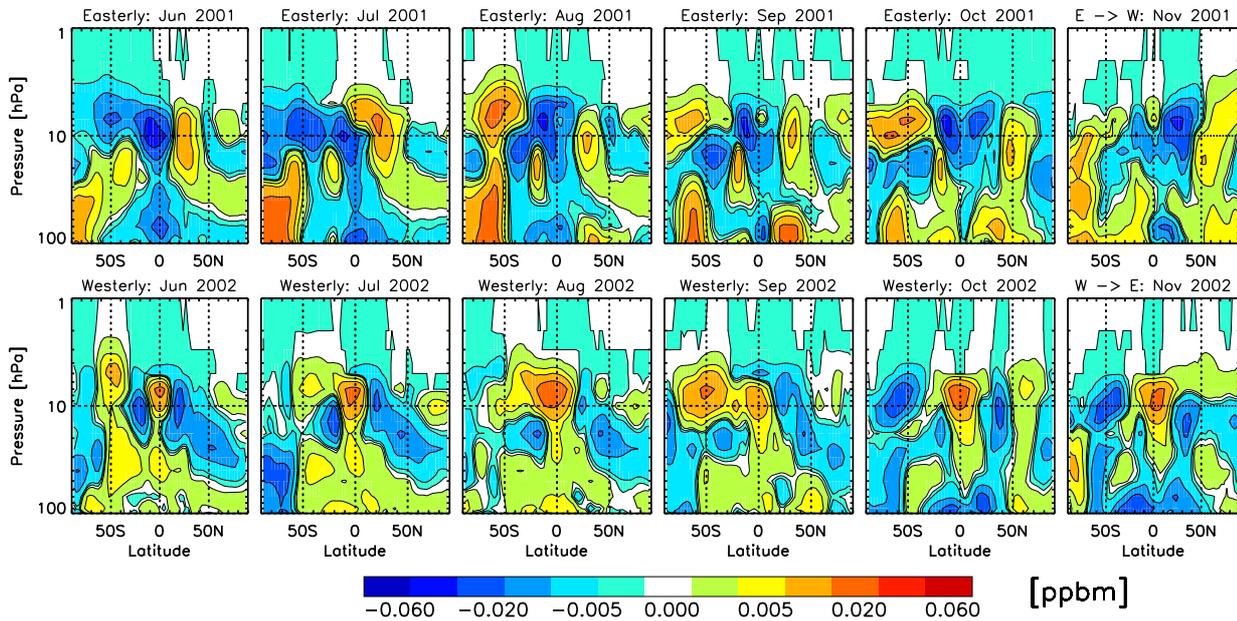


Abbildung 6.36: Wie 6.34, aber hier anhand der QBO-induzierten Anomalien in den modellierten Aerosolkonzentrationen.

QBO-Modulationen oberhalb der des Experiments *CTRL* liegt (vergleiche Abbildungen 6.5 und 6.16).

Meridionale Dispersion

Choi et al. (1998) hoben die Bedeutung der äquatorialsymmetrischen Struktur des TSR auf die meridionale Dispersion von Aerosolen im Zuge der Mt.-Pinatubo-Eruption hervor und bestätigten anhand von HALOE-Aerosolextinktionen, dass die meridionale Ausbreitung von Aerosolen von der Phase der QBO abhängt und konsistent einhergeht mit den Zirkulationsmustern der QBO-induzierten Sekundärzirkulation. Darüber hinaus wurde gezeigt, dass die in stratosphärischen Spurenstoffkonzentrationen in östlichen QBO-Phasen auftretenden Doppelstrukturen oberhalb von 10 hPa sich ebenfalls in den Aerosolextinktionen der unteren Stratosphäre zwischen 450 K und 550 K (~ 50 bis 30 hPa) nachweisen lassen. Diese Doppelstrukturen im Zentralbereich der tropischen Aerosolschicht werden von den gleichen Mechanismen geformt, wie die Doppelstrukturen oberhalb von 10 hPa, die in vielen Tracergasen nachgewiesen worden sind (Randel et al., 1998).

Die Übertragung der von Choi et al. (1998) gewählten Analyse normalisierter Aerosolverteilungen auf die hier vorgestellten Modellergebnisse zeigt auch für den von relativ geringer globaler Aerosolmasse gekennzeichneten stratosphärischen Hintergrundzustand signifikante Zonen meridionaler Dispersion innerhalb des TSR, die mit den von Choi et al. (1998) gefundenen QBO-Modulationen in TSR-Aerosolen vulkanischen Ursprungs korrespondieren.

Die Normalisierung der in den Abbildungen 6.37 bis 6.39 gezeigten modellierten Aerosolparameter erfolgt dabei analog zu Choi et al. (1998), indem das zonale Monatsmittel jeder Modellschicht in Relation zum jeweiligen latitudinalen Maximum gesetzt wird. Die Darstellung bzw. Analyse erfolgt allerdings nicht wie in Choi et al. (1998) auf isentropischen Flächen, sondern auf interpolierten Druckniveaus, um Vergleichbarkeit mit den vorangegangenen Abbildungen zu bewahren.

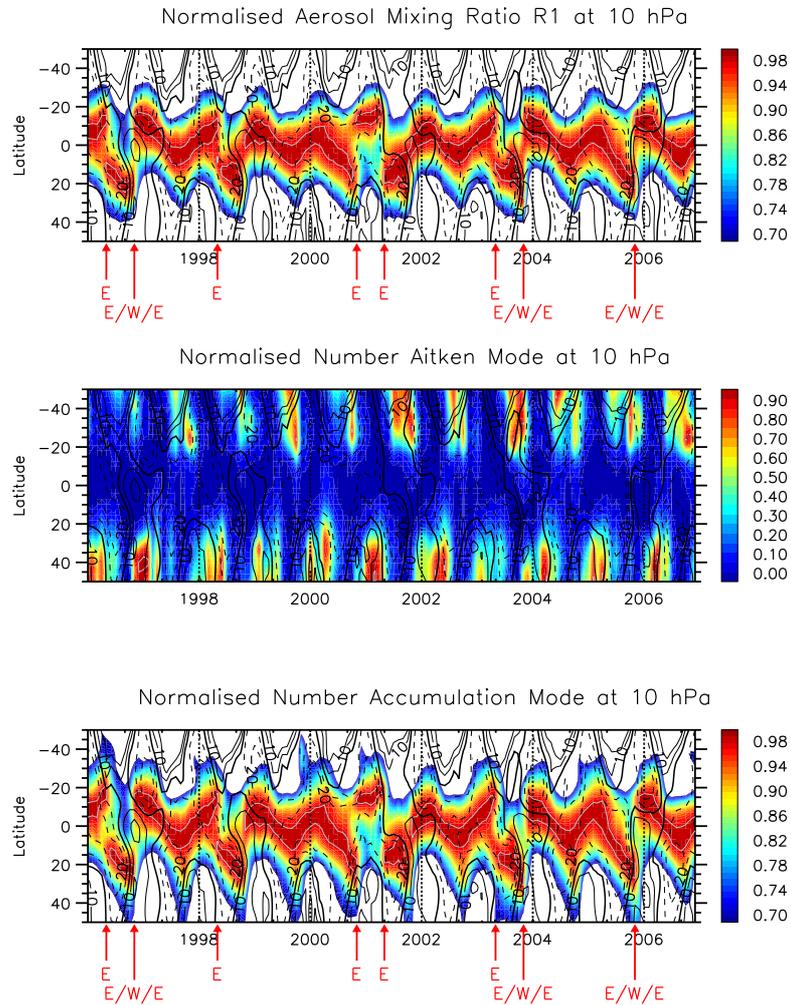


Abbildung 6.37: Zeitliche Entwicklung zentraler Monatsmittel der modellierten normalisierten Aerosolkonzentrationen in den Tropen und mittleren Breiten in 10 hPa. Das Partikelmassenmischungsverhältnis wurde integriert über das gesamte in SAM2 definierte Partikelspektrum, die gezeigten Partikelanzahlkonzentrationen jeweils für den *Aitken* und *Accumulation Mode*. Man beachte die Legende des *Aitken Mode*. Die graue Kontur kennzeichnet das jeweilige 98%ige Konzentrationsniveau. Schwarze Konturen kennzeichnen westliche zonale Winde, strich-punktierte Konturen östliche zonale Winde. Die dicke schwarze Kontur kennzeichnet das Nullniveau im zonalen Wind.

Die Detektion äquatorialer Minima in den modellierten Aerosolkonzentrationen, welche die charakteristischen Doppelstrukturen auszeichnet, gestaltet sich schwierig. Am häufigsten lassen sich Doppelstrukturen in 10 hPa nachweisen, entsprechende Muster mit klar ausgeprägten äquatorialen Minima ($> 1\%$ der jeweiligen monatlich zonal gemittelten Aerosolmasse) finden sich auch bei genauer Analyse in darunter liegenden Modellschichten kaum. Entsprechende Muster, die unter dem Einfluss östlicher Winde hervorgerufen werden, sind in den Abbildungen 6.37 bis 6.39 markiert mit *E* (*Easterly*). Es finden sich desweiteren Muster, die unter westlichen Winden am Äquator auftreten und westlichen Scherphasen zuzuordnen sind. Sie werden mit *E/W/E* (*Easterly/Westerly/Easterly*) markiert, jene, die klar im Zusammenhang mit dem Jahresgang stehen, mit *AO* (*Annual Oscillation*). Es lassen sich in 50 hPa auch Doppelstrukturen nachweisen, die westlichen QBO-Phasen zuzuordnen sind, diese werden mit *W* markiert.

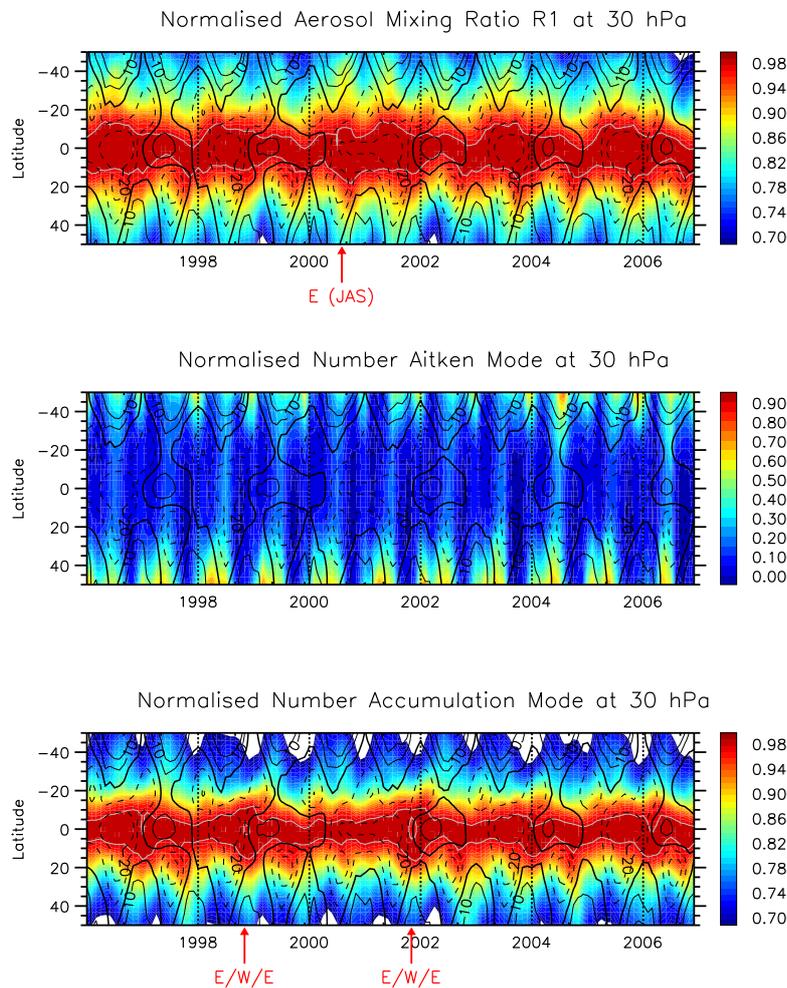


Abbildung 6.38: wie 6.37 aber hier für 30 hPa.

Jahreszeitlich bedingte Asymmetrien in normalisierten Tracerkonzentrationen finden sich in allen Höhenbereichen. Sie sind generell in die Sommerhemisphäre ausgerichtet, deutlich intensiviert in Richtung Nordhemisphäre, in 30 hPa und 10 hPa stehen sie darüber hinaus im Zusammenhang mit östlichen Scherwinden.

In 10 hPa (Abbildung 6.37) zeigen sich Doppelstrukturen, die mit denen der Meridionalschnitte (Abbildungen 6.34 und 6.34) korrespondieren. Diese Strukturen stehen im Zusammenhang mit dem jährlichen Zyklus, mit der Sekundärzirkulation der QBO, QBO-induzierten Asymmetrien in extratropischen Zirkulationszellen und der SAO der oberen Stratosphäre. Diese mit *E/W/E* markierten Zellen korrespondieren mit denen in Choi et al. (1998) und Trepte und Hitchman (1992) gefundenen Doppelstrukturen der vulkanisch belasteten Aerosolschicht, die äquatoriale Minima in den *E/W/E*-Zellen werden von am Äquator absteigenden westlichen Winden hervorgerufen.

Für die meridionale Dispersion der mit *E* markierten Zellen, die ebenfalls ein äquatoriales Minimum aufweisen, kommen mehrere Effekte in Frage. In den äquatorialen Aerosolkonzentrationen oberhalb von 10 hPa lässt sich ein Relaxations-Effekt an advektiv in höhere Schichten transportierten Aerosolen feststellen. Die Konzentration oberhalb von 10 hPa nimmt in ihrer zeitlichen Entwicklung nahezu linear ab, und

zwar ausschließlich in östlichen QBO-Phasen (Abbildung 6.15, b), obwohl sie mit negativen Temperatur-anomalien verknüpft sind, Partikel also advektiv aufwärts gerichtet transportiert werden sollten. In diesen Höhen kommen jedoch zwei Senkenprozesse zum Tragen, die letztlich die vertikale Ausdehnung der Aerosolschicht im globalen Maßstab limitieren: Sedimentation (u.a. Toon et al., 1979; Weisenstein et al., 2007) und Verdunstung (u.a. Hamill et al., 1977b). Sedimentation von Partikeln wird im wesentlichen nicht von der QBO moduliert, da der Prozess letztlich vom Gewicht der Partikel abhängt, das in diesen Höhen kaum einer QBO-Modulationen unterliegt (Abbildungen 6.20, 6.29 und 6.28). Sedimentationsraten auf diesem Höhenniveau können also mit guter Näherung als statisch angesehen werden. Dagegen weist der Verdunstungsprozess oberhalb von 20 hPa starke positive Anomalien auf (Abbildung 6.19, b), die wie die *E*-Zellen in Abbildung 6.37 den westlichen QBO-Phasen voraus gehen. Es scheint sich also oberhalb von 10 hPa ein zyklisches Gleichgewicht aus advektivem Vertikaltransport, Sedimentation und Verdunstung einzustellen (Kondensation und Verdunstung finden auf längeren Zeitskalen simultan statt, Kapitel 6.2.3). Daraus lässt sich schlussfolgern, dass die in 10 hPa (Abbildung 6.37) überwiegende Zahl äquatorialer Doppelstrukturen in den normalisierten Aerosolkonzentrationen auf Sedimentation, also abwärtsgerichtetem Transport relativ zur Brewer–Dobson–Zirkulation und relativ zum QBO-induzierten *Upwelling* zurückzuführen sind oder die entsprechende Partikelmasse durch Gas–Partikel–Wechselwirkungen in die Gasphase überführt wird.

Die in der Literatur oft aufgegriffene, von Trepte und Hitchman (1992) geprägte Aussage bezüglich des TSR: "...there is a tropical stratospheric reservoir (TSR) which has an air mass that is distinctly different from that in the midlatitude stratosphere..." lässt sich anschaulich anhand der normalisierten Aerosolkonzentration in 30 hPa zeigen: Die Verhältnisse in 30 hPa (Abbildung 6.38) liegen (im Vergleich zu den anderen beiden Abbildungen) dem Zentralbereich der Aerosolschicht am nächsten, entsprechend deutlich fällt die meridionale Divergenz innerhalb des TSR unter östlichen Winden auf (u.a. Grant et al., 1996; Choi et al., 2002). 98 % der Aerosolmasse residiert zwischen $\pm 15^\circ$, während sich die 0.98-Kontur im TSR in westlichen QBO-Phasen auf ein latitudinales Band von ca. 10° Breite einschnürt. Doppelstrukturen in dieser Höhe, wie sie im ersten Jahr nach Ausbruch des Mt. Pinatubo zu beobachten waren, sind zwar präsent, liegen aber unterhalb von einem Prozent und sind daher nicht visualisierbar, wenn man wie in den Abbildungen 6.37 bis 6.39 Konturintervalle von einem Prozent wählt. Lediglich ein Indikator für eine Doppelstruktur in 30 hPa zeigt sich in den Aerosolkonzentrationen im Sommer 2000. Die leichte Asymmetrie mit höheren Konzentrationen nördlich des Äquator korrespondiert dabei mit dem in die Winterhemisphäre gerichteten Aerosoltransport relativ zur Residualzirkulation (vergleiche Abbildungen 6.33 und 6.34).

In 30 hPa zeigen sich ebenfalls zwei meridionale Dispersionszonen in der normalisierten Partikelanzahl, integriert über den *Accumulation Mode*. Deren äquatoriales Minimum wird von abwärts gerichtetem Transport unter dem Einfluss westlicher Winde am Äquator verursacht. Die sich so ausbildenden Doppelstrukturen korrespondieren mit denen des Zentralbereichs der Aerosolschicht, die von Choi et al. (1998) in HALOE-Aerosolextinktionen nachgewiesen worden sind. Möglicherweise lassen sich Doppelstrukturen leichter in modellierten Partikelanzahlkonzentrationen als in modellierten Massenmischungsverhältnissen nachweisen.

Interessant sind die Strukturen in 50 hPa (Abbildung 6.39): Gegenüber den Satellitendatenanalysen von Choi et al. (1998) sind die modellierten normalisierten Aerosolverteilungen in 50 hPa von einer hohen Asymmetrie geprägt, die im Zusammenhang mit dem jährlichen Zyklus stehen. Choi et al. (1998) argumentieren, dass dominante QBO-Modulationen, vor allem hinsichtlich der polwärtigen Transportwege von Aerosolen in der unteren Stratosphäre, in dieser Höhe eine gewisse äquatoriale Symmetrie in den Verteilungen der Aerosolparameter erwarten lassen würden. Hitchman et al. (1994) zeigen jedoch, dass sich beobachtete Aerosolextinktionen in der Winter–Nordhemisphäre in 20 km Höhe (~ 50 hPa)

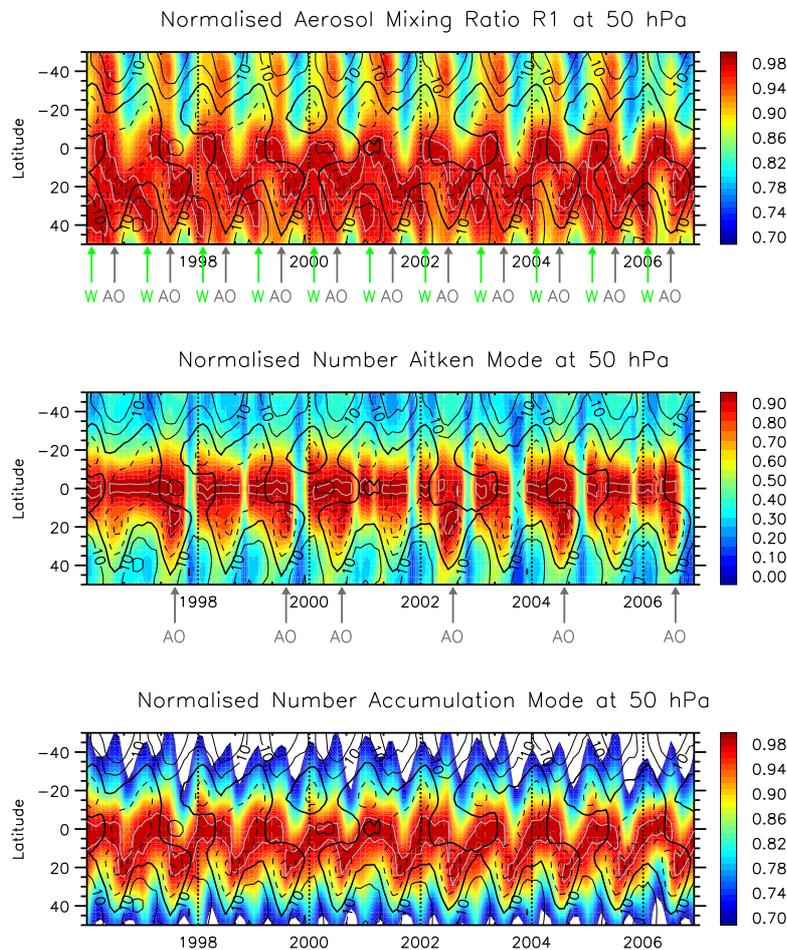


Abbildung 6.39: wie 6.37 aber hier für 50 hPa.

im klimatologischen Mittel um mindestens +20 % von denen der Südhemisphäre im Bereich der Tropen/Subtropen unterscheiden, in den mittleren Breiten sogar um +40 bis +60 %. Diese in Richtung Nordhemisphäre gerichtete Asymmetrie wird im Modell in 50 hPa wiedergegeben. Sich in die Nordhemisphäre entwickelnde mäanderförmige Strukturen maximalen Aerosols spiegeln das untere Transportregime wieder, entsprechende gegenläufige Strukturen kennzeichnen extratropischen aufwärtsgerichteten Tropopausenfluss aus den Konvektionszellen Mittelsüdostasiens, deren Material im Winter das TSR erreicht. Zwei Dinge fallen auf: 1) Die im unteren Regime transportierte normierte Aerosolmasse dominiert gegenüber der südhemisphärischen, was bedeutet, dass das in die Nordhemisphäre gerichtete untere Transportregime den überwiegenden Teil der TSR-Aerosolmasse polwärtig transportiert bzw. effektiver größere und schwerere Partikel aus dem TSR entfernt. 2) In normalisierter Darstellung relativiert sich die Dominanz des monsunbedingten Partikeleintrags in die untere Stratosphäre (siehe Abbildung 6.34).

Schaut man sich die modellierten modeweise integrierten Partikelanzahlkonzentrationen an, zeigt sich in 50 hPa, dass sich konträr zu den Verhältnissen in 30 hPa keine meridionale Dispersion bei Partikeln im *Accumulation Mode* nachweisen lässt, dafür aber in normalisierten Verteilungen von Partikeln im *Aitken Mode*. Deren Dispersion steht aber nicht im Zusammenhang mit der QBO-Modulation über den unteren Transportweg. Sie stehen vielmehr mit dem jährlichen Zyklus in Verbindung, der in die Sommerhemisphäre gerichtet ist. Im Modell beschränkt sich die Partikeldispersion im *Aitken Mode* zudem

auf die Nordhemisphäre. In diesem Zusammenhang fallen die starken Gradienten in den normalisierten Verteilungen von Partikeln im *Aitken Mode* auf (vergleiche Legende). Dies ist ein Hinweis auf den hohen latitudinalen Konzentrationsgradienten ultra-feiner Partikel im Zentralbereich der globalen stratosphärischen Aerosolschicht, eine Charakteristik, die sich, wie später gezeigt werden wird (Abbildung 6.43), durch QBO-Assimilation verstärkt.

Intensivierter aufwärtsgerichteter tropischer Tropopausentransport von Aerosolen spiegelt sich in den hier gezeigten normalisierten Aerosolkonzentrationen kaum wieder. Weder Lage noch Stärke der subtropischen Mischungsbarriere lässt sich anhand der Gradienten normalisierter Aerosolverteilungen eindeutig nachweisen. Neu et al. (2003) lokalisieren einen Bereich, der in 30 hPa oberhalb der 86%-Kontur liegt. Daraus folgt, dass im Modell im Zentralbereich der stratosphärischen Aerosolschicht mehr als 86 % der Aerosolmasse innerhalb des TSR residiert.

Welche dieser hier vorgestellten Muster sind nun auf isentropische meridionale Dispersion zurückzuführen, die in Zusammenhang mit der sekundären Meridionalzirkulation stehen? Ausschließlich von der SMC verursachte meridionale Dispersion in Aerosolkonzentrationen des TSR scheint kaum in Frage zu kommen. Vielmehr beruhen die hier gefundenen Strukturen meridionaler Dispersion auf einer Überlagerung verschiedener QBO-induzierter Mechanismen, die sich vor allem oberhalb der zentralen Bereiche der Aerosolschicht nachweisen lassen und die von (mikro-)physikalischen Mechanismen überlagert werden. Letztere unterliegen wiederum selbst QBO-Modulationen. Man kann sich also hier der Schlussfolgerung von Choi et al. (1998) anschließen, wonach sich meridionaler Transport von Aerosolen anhand qualitativer Analysen von Tracerkonzentrationen nur schwer detektieren lässt. Äquatoriale Dispersion der modellierten Aerosole in 50 hPa beruht nicht auf den Mechanismen, die zu äquatorialer Dispersion in Doppelstrukturen führen und die im Zusammenhang mit östlichen QBO-Phasen stehen. Da die stratosphärische Aerosolschicht im Modell etwas höher angesiedelt zu sein scheint, als es aerosol-optische Parameter aus Satellitenbeobachtungen zeigen, beruht die in 50 hPa gefundene meridionale Dispersion in normalisiertem Aerosol auf QBO-moduliertem Meridionaltransport im unteren Regime, das sich intensiviert in QBO-Westphasen. In zahlreichen Arbeiten (u.a. Trepte und Hitchman, 1992; Hitchman et al., 1994; Grant et al., 1996; Hamill et al., 1997) wird darauf hingewiesen, dass Aerosole effektiv und schnell über das untere Transportregime in die mittleren Breiten transportiert werden. Die in Abbildung 6.39 gezeigten Zonen hoher normalisierter Aerosolkonzentration bestätigen, dass dieser Transportweg existiert und darüber TSR-Material bis mindestens in die mittleren Breiten transportiert wird.

Die Analyse von normalisierten Aerosolkonzentrationen bringt eine bessere direkte Vergleichbarkeit mit aerosol-optischen Parametern aus Satellitenbeobachtungen mit sich, ohne dass man letztere unter vereinfachten Annahmen bezüglich des Partikelspektrums und der Partikeleigenschaften in nicht-optische Aerosolparameter transformiert. Meridionale Transportwege sind besser zu identifizieren als anhand von Spurenstoffkonzentrationsgradienten, da deren Beträge im globalen Maßstab sehr groß sein können und vor allem bei Anzahlkonzentrationen mehrere Größenordnungen umfassen. Analysen der mit der Sekundärzirkulation der QBO in Verbindung stehenden Doppelstrukturen von TSR-Aerosolkonzentrationen in der unteren Stratosphäre können somit helfen die Relaxation vulkanischer Störungen der stratosphärischen Aerosolschicht besser zu verstehen, bislang hat diese Methode kaum Beachtung in entsprechenden Modellstudien gefunden.

Vertikale Aerosolverteilung im Bereich der subtropischen Mischungsbarriere

Lidar-Beobachtungen stratosphärischer Aerosole am NOAA Mouna Loa Observatorium in Hawaii (kurz: MLO, 19.5°N, 155.6°W) unterliegen der saisonalen Verlagerung der subtropischen Mischungsbarriere (Grant et al., 1996; Barnes und Hofmann, 1997) und detektieren Spurenstoffe sowohl in tropischen Luftmassen als auch in Luftmassen aus den mittleren Breiten des mittleren Pazifiks (Barnes und Hofmann, 2001). Barnes und Hofmann (2001) konnten eine signifikante Beeinflussung der QBO auf die vertikale Verteilung der vulkanisch relativ unbelasteten Aerosolschicht in Lidar-Messungen dieser Station nachweisen und analysierten zudem die saisonale Variabilität dieser Daten.

Die jahreszeitliche Variabilität der stratosphärischen Aerosolschicht über MLO der von Barnes und Hofmann (2001) untersuchten Jahre 1995 bis 2000 ist gekennzeichnet von einer etwa 40%igen Reduktion des Verhältnisses der aerosolbedingten und molekularen Rückstreukoeffizienten in den Sommermonaten gegenüber den Wintermonaten unterhalb von 26 km Höhe (Abbildung 6.40, a). Signifikant unterschiedlich sind die Vertikalprofile zwischen 23 km und 33 km mit einer 20%igen Erhöhung des Rückstreuverhältnisses in östlichen QBO-Phasen gegenüber den westlichen QBO-Phasen (Abbildung 6.41, a). Demgegenüber ist das Rückstreuverhältnis unterhalb der Tropopause (15 bis 16 km) etwa 50 % höher in den Westphasen der QBO als in den Ostphasen.

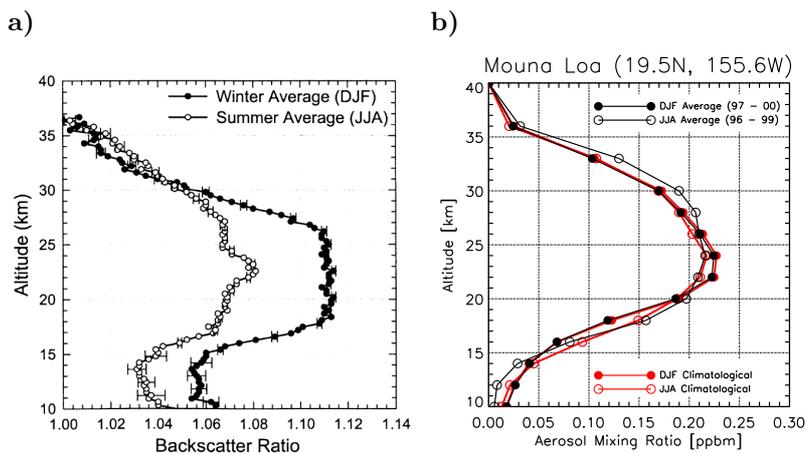


Abbildung 6.40: Mittlere Sommer- (JJA) und Winterprofile (DJF) stratosphärischer Aerosole im Bereich der subtropischen Mischungsbarriere im mittleren Pazifik (Mouna Loa, 19.5°N, 155.6°W): (a) Anhand des Rückstreuverhältnisses von Multiwellenlängen-Lidarbeobachtungen nach Barnes und Hofmann (2001) und (b) anhand der in Experiment *QBO* modellierten Aerosolkonzentration als Mittel der diese Station repräsentierenden Modellgitterfläche. Schwarze Profile in (b) kennzeichnen die Modelldaten der Jahre 1996 bis 2000, die entsprechend den Beobachtungen in diese Analyse einbezogen wurden, rote Profile markieren das klimatologische Mittel des elfjährigen Analysezeitraums.

Aus den Abbildungen 6.40 (b) und 6.41 (b) wird ersichtlich, dass die in MLO beobachteten Charakteristika der stratosphärischen Aerosolschicht im *QBO*-assimilierten Experiment anhand von modellierten Aerosolkonzentrationen nur teilweise reproduziert werden können. Vor allem die jahreszeitliche Schwankung fällt im Modell qualitativ deutlich geringer aus, der oberhalb von 30 km Höhe beobachtete typische jahreszeitliche Versatz in der vertikalen Ausdehnung der Schicht zwischen Sommer und Winter kann jedoch reproduziert werden. Die vertikale Auflösung des Modells scheint ausschlaggebend für die mäßige Wiedergabe der qualitativen Ausprägung des Vertikalprofils zu sein (Symbole in Abbildung 6.40 b kennzeichnen

die interpolierten Druckniveaus, die in Bezug auf die US-Standardatmosphäre mehr oder weniger auch die Modellschichten repräsentieren). Weder die vertikale Homogenität der in MLO beobachteten Aerosolschicht in DJF kann reproduziert werden, noch der steile Gradient auf Tropopausenniveau.

Quantitativ relativiert sich dieses Bild einer scheinbar mäßig vom Modell wiedergegebenen Variabilität stratosphärischer Aerosole im Bereich der subtropischen Mischungsbarriere der NH kaum: In 28 km Höhe lässt sich eine etwa 10 % höhere Aerosolkonzentration in JJA gegenüber den Wintermonaten feststellen (Abbildung 6.40, b). Im unteren Zentralbereich der Schicht in ca. 22 km Höhe ist das DJF-Mittel der analysierten Jahre etwa 7 % höher. Der Tropopausenbereich über dem Nordostpazifik ist im Modell von einer gegen Null tendierenden Aerosolmasse gekennzeichnet, was den Lidar-Messungen am Mouna Loa nicht entspricht. Dennoch dominiert auch hier das DJF-Mittel um mehr als 100 %. Die gegenüber den Konzentrationen im Winter vergleichsweise niedrigen JJA-Mittel unterhalb des Konzentrationsmaximums in Abbildung 6.40 (b) stehen scheinbar im Gegensatz zu der u.a. in Abbildung 6.23 gezeigten saisonalen Abhängigkeit des monsunbedingten Eintrags troposphärischen Materials in die untere Stratosphäre, das im Laufe weniger Monate bis in das TSR vordringen kann (SO₂ und möglicherweise auch Primär- und troposphärische Sekundäraerosole). Da im nordhemisphärischen Sommer und Winter über MLO im klimatologischen Mittel in der Stratosphäre westlich gerichtete Winde dominieren (vergleiche Abbildung 6.3), kann davon ausgegangen werden, dass die MLO-Stationsdaten von dieser Charakteristik wenig affektiert werden, obwohl nach Barnes und Hofmann (2001) die Stratosphäre über MLO vor allem in den Sommermonaten unter dem Einfluss nicht-tropischer Luftmassen steht.

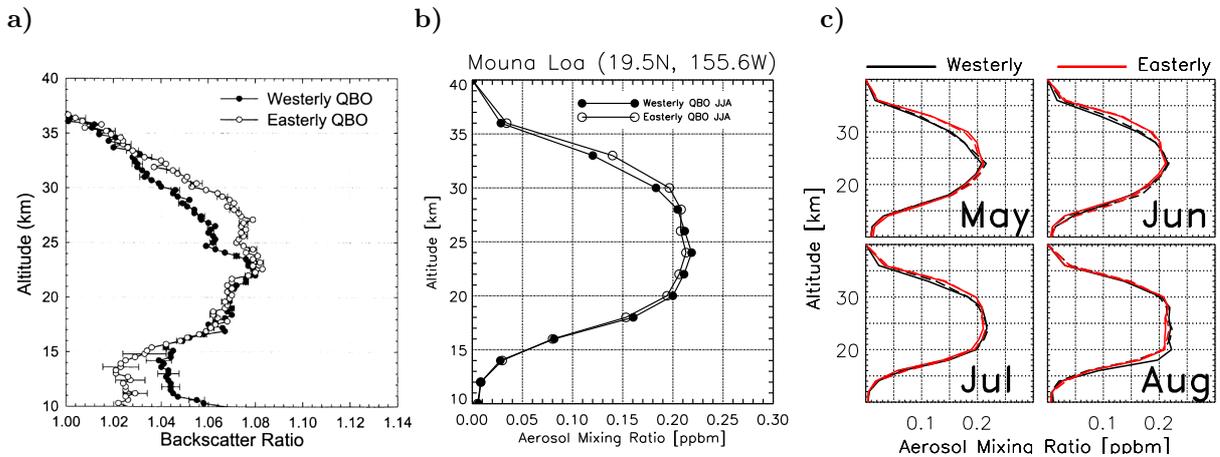


Abbildung 6.41: Wie Abbildung 6.40, aber hier separiert nach westlichen und östlichen QBO-Phasen während der Sommermonate (JJA), ergänzt um die entsprechenden Modellcharakteristika auf Basis von Monatsmitteln von Mai bis August in Abbildung (c).

Die in Abbildung 6.41 (b) gezeigte Antwort der modellierten stratosphärischen Aerosole über MLO gegenüber der QBO fällt ebenfalls scheinbar qualitativ gering aus. Mit Ausnahme der Region unterhalb der Tropopause (~ 16 km) entspricht die modellierte Charakteristik aber den MLO-Daten von Barnes und Hofmann (2001), die QBO-Modulation fällt im Modell jedoch etwa um die Hälfte geringer aus: Die Aerosolkonzentrationen unter überwiegend in den Sommermonaten maximalen westlich gerichteten Winden in östlichen QBO-Phasen zwischen 1996 und 2000 bedingt eine um ~ 10 % höhere Aerosolkonzentration im Bereich negativer Konzentrationsgradienten oberhalb von 28 km. Im Bereich positiver Konzentrationsgradienten im unteren Zentralbereich der Aerosolschicht dominiert dagegen leicht die QBO-Westphase. Letztere Charakteristik ist zwar im unteren Zentralbereich der Aerosol-

schicht kurz oberhalb der Tropopause detektiert worden (Abbildung 6.41, a), wirklich relevant sind höhere Rückstreuverhältnisse in westlichen Phasen aber nur im Bereich unterhalb der Tropopause, wo sie aber wiederum vom Modell anhand von Aerosolmassenmischungsverhältnissen nicht reproduziert werden können.

Differenziert man die Modelldaten nach Monatsmitteln (Abbildung 6.41, c) fällt auf, dass der QBO-Einfluss auf die stratosphärische Aerosolschicht gegenüber den MLO-Mitteln mindestens einen Monat außer Phase läuft, wodurch die Ostphasendominanz im Bereich negativer Konzentrationsgradienten in den saisonalen Mitteln von Abbildung 6.41 (b) relativiert wird. Weiterhin ist ersichtlich, dass die oben bemängelte vertikale Homogenität der modellierten Aerosolschicht durchaus im Modell repräsentiert werden kann, aber aufgrund des Phasenversatzes gegenüber den Beobachtungen nicht in den entsprechenden saisonalen Mitteln.

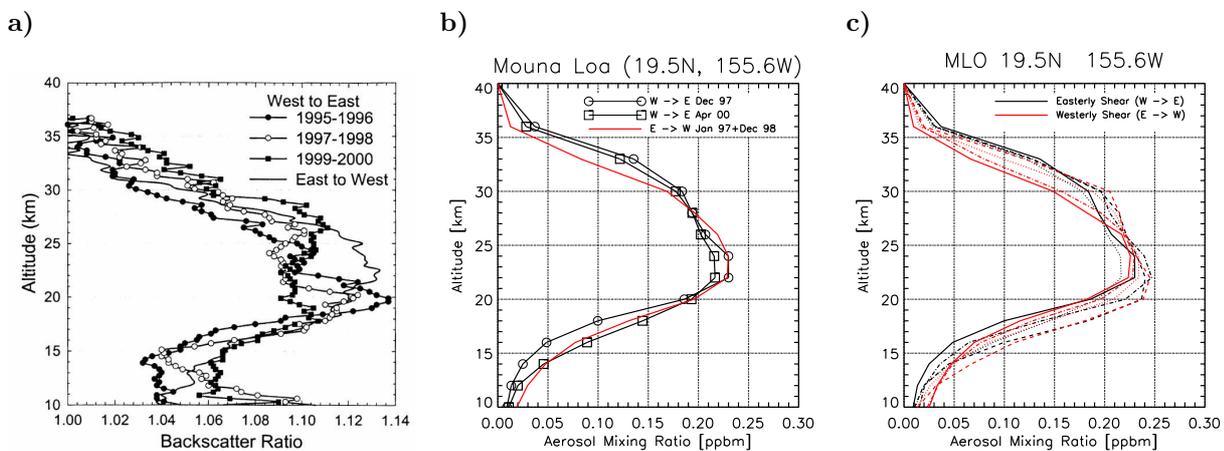


Abbildung 6.42: Vertikalprofile stratosphärischer Aerosole in MLO unter dem Einfluss von QBO-Scherphasen: (a) beobachtete Rückstreuverhältnisse des MLO Multiwellenlängen-Lidars nach Barnes und Hofmann (2001). Die Lidar-Daten werden repräsentiert von drei individuellen DJF-Mitteln während östlicher Windtransitionen und dem gemeinsamen DJF-Mittel zweier westlicher Windtransitionen in den Jahren 1996/97 und 1998/99. (b) zeigt die entsprechenden Modelldaten des Experiments *QBO*, aber anhand individueller Monatsmittel, die dem Auftreten der Windtransitionen zuzurechnen sind. (c) zeigt die vertikalen Verteilungen der modellierten Aerosolkonzentrationen in allen zwischen 1996 und 2006 modellierten QBO-Transitionen, vier westliche (rot) und fünf östliche Transitionen (schwarz).

Auch in den QBO-Transitionsphasen lassen sich in den über MLO gemessenen aerosol-optischen Parametern charakteristische QBO-induzierte Eigenschaften nachweisen. Die von Barnes und Hofmann (2001) analysierten sechs QBO-Transitionsphasen zeichnen aber ein eher diffuses Bild (Abbildung 6.42, a), die den Einfluss des jährlichen Zyklus auf die gezeigten Daten nicht ausschließen lassen. So ist die östliche Scherphase von 1995/96 dem Spätsommer (September) zuzuordnen, die des Jahres 1999/2000 setzte sich, wie auch aus Abbildung 6.2 (b) ersichtlich wird, oberhalb von 30 hPa erst allmählich durch (die Transitionsphase auf dem Druckniveau von 30 hPa dauerte insgesamt 7 Monate). Trotzdem geben die von den Autoren gezeigten Vertikalprofile aerosol-optischer Parameter in zeitlich gemittelten QBO-Transitionsphasen vor allem einen Hinweis auf die hohe zirkulationsbedingte Variabilität stratosphärischer Spurenstoffkonzentrationen unter dem Einfluss der QBO, wie im Folgenden erläutert werden soll.

Barnes und Hofmann (2001) lassen vermuten, dass die vertikale Aerosolverteilung in westlichen QBO-

Scherphasen homogener zu sein scheint als in östlichen QBO-Scherphasen (Abbildung 6.42, a). Darüber hinaus scheint die vertikale Ausdehnung der Aerosolschicht tendenziell in westlichen Scherphasen um einige Kilometer geringer zu sein. Letzteres kann anhand der Modelldaten bestätigt werden (Abbildungen 6.42 b und c). Höhere Aerosolkonzentrationen in zentralen Bereichen der Schicht, wie sie in MLO in westlichen Scherphasen beobachtet wurden, sind im Mittel nicht reproduzierbar, allerdings weisen die modellierten Aerosolkonzentrationen im Zentralbereich der Schicht und unterhalb dieser in den QBO-Transitionsphasen eine hohe Schwankungsbreite von $\sim 20\%$ auf (Abbildung 6.42, c).

Auffällig ist auch die hohe Variabilität der modellierten Aerosolkonzentrationen in den westlichen Scherphasen oberhalb von 25 km, im Bereich negativer Konzentrationsgradienten. Die dagegen vergleichsweise geringe Variabilität oberhalb von 30 km in östlichen Transitionsphasen ist zum einen ein Indikator für einen relativ gleichmäßigen polwärtigen Meridionaltransport im oberen Transportregime, welches maßgeblich von der Residualzirkulation geprägt wird, zum anderen erklärt sich diese geringe Variabilität dadurch, dass der vom thermischen Windgleichgewicht geforderte aufwärtsgerichtete Vertikaltransport von Aerosolen unter auftretenden negativen Temperaturanomalien in dieser Höhe mit der Stabilitätsbedingung der Sulfatpartikel einher geht (Gleichgewichtskonzentration bzw. Dampfdruckverhältnis der Partikelkomponenten) und zudem noch unter dem entgegengesetzt gerichteten Einfluss relativ starker Sedimentationsflüsse steht. Dadurch beschränkt sich in östlichen QBO-Scherphasen die maximale Vertikalausdehnung der stratosphärischen Aerosolschicht auf ein bestimmtes Höhenniveau, wie auch aus Abbildung 6.15 (b) ersichtlich wird. Sulfataerosole, die über dieses Höhenniveau hinaus transportiert werden, verdunsten nahezu augenblicklich (Hamill et al., 1977b).

Es lässt sich demnach schlussfolgern, dass die hohe Variabilität der modellierten Aerosolkonzentrationen über MLO oberhalb von 28 km in westlichen QBO-Scherphasen vor allem die Variabilität des relativ zur Residualzirkulation stattfindenden abwärts gerichteten Aerosoltransports widerspiegelt. Je nach Ausprägung und Persistenz der oberhalb der zentralen Bereiche der stratosphärischen Aerosolschicht in westlichen Scherphasen induzierten positiven Temperaturanomalien kann die vertikale Ausdehnung der Aerosolschicht um mehrere Kilometer variieren.

6.2.6 QBO-Modulation des Partikelanzahlspektrums

In den vorangegangenen Kapiteln sind QBO-induzierte Modulationen in verschiedensten modellierten Aerosolparametern vorgestellt worden. Rückschlüsse auf den von der QBO maßgeblich kontrollierten meridionalen Transport von Partikeln in der vulkanisch unbelasteten Aerosolschicht konnten aus den modellierten Aerosolkonzentrationen abgeleitet werden und weisen auch in Detailfragen eine grundlegende Übereinstimmung gegenüber entsprechenden Beobachtungen (Satelliten, Lidar) auf. In Kapitel 6.2.5 konnte darüber hinaus eine gewisse gegenüber der QBO-Modulation in der Aerosolgesamtkonzentration nicht-lineare Modulation des Partikelanzahlspektrums durch die QBO festgestellt werden.

Die QBO-Modulationen der Transportwege von atmosphärischen Spurenstoffen gehen im Fall von Aerosolpartikeln auf Sulfatbasis untrennbar mit Modulationen der thermodynamischen Zustandsgrößen und der mikrophysikalischen Prozessgrößen einher. Dieses Zusammenspiel verschiedenster Parameter, die abgesehen von der Partikeladvektion letztlich Quell- und Senkentermen der allgemeinen aerosoldynamischen Zustandsgleichung (Gl. 3.1 und 3.2) zuzuordnen sind, führt in bestimmten Regionen der stratosphärischen Aerosolschicht zu einem zyklischen Gleichgewicht zwischen den beteiligten Parametern. Der Zusammenhang unter den Parametern selbst ist dabei hochgradig nicht-linear.

Partikelspektren im Allgemeinen (Masse, Größe, Anzahl) werden geformt von den physikalischen und mikrophysikalischen Prozessen, wie sie in den Kapiteln 3 und 5 ausführlich behandelt worden sind. Da in

den Kapiteln bereits gezeigt werden konnte, dass diese Prozesse fast ausnahmslos von der QBO moduliert werden können, zudem in den Kapiteln 6.2.3 und 6.2.4 gezeigt werden konnte, dass die modeweise integrierten Partikelanzahlkonzentrationen einer deutlichen QBO-Modulation unterliegen, lassen sich signifikante Effekte im QBO-assimilierten Experiment auch in den Spektren der Partikelanzahlkonzentrationen erwarten.

Bislang liegen keine *Peer-Review*-Untersuchungen über QBO-Modulationen der charakteristischen Ausbildung von Spektren stratosphärischer Aerosole vor, weder Studien empirisch-experimenteller Art noch Modellstudien. Aufgrund nicht vorhandener Vergleichsdaten soll sich daher zunächst eine Analyse der QBO-induzierten Modulationen von Partikelanzahlspektren auf die bereits in Kapitel 5.2.5 ausführlich diskutierten Verhältnisse in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre an der Station Laramie, Wyoming, beschränken. Diese Analyse konzentriert sich auf den von der QBO-induzierten Gesamteffekt an jahresgemittelten Partikelanzahlspektren für 2006 in Experiment *QBO* bzw. im elften Jahr des Analysezeitraums in Experiment *CTRL*. Eine weitere Separation der in Experiment *QBO* modellierten Partikelspektren u.a. nach QBO-Phasen soll zunächst vernachlässigt werden.

Wie aus Abbildung 6.43 hervorgeht, beeinflusst die QBO die Form der Anzahlspektren im wesentlichen im Zentralbereich der Aerosolschicht oberhalb von 100 hPa und vor allem die Konzentrationen von Partikeln im *Nucleation Mode* und *Aitken Mode*. Im nordhemisphärischen Winter und Frühjahr lassen sich im QBO-assimilierten Experiment deutlicher ausgeprägte mehr-modale Strukturen erkennen als im Kontrolllauf, die weitestgehend auf QBO-Modulationen der mikrophysikalischen Prozesse Nukleation und Kondensation zurückzuführen sind. Ob das bereits in vorangegangenen Kapiteln u.a. für äquatoriale Verhältnisse diskutierte zyklische Gleichgewicht im Gas-Partikel-Massentransfer eine wesentliche Rolle in der Ausbildung der Partikelspektren in den mittleren Breiten und in Höhen unterhalb von 10 hPa eine Rolle spielt, kann zur Zeit nicht beantwortet werden, da sich QBO-induzierte Verdunstungsanomalien zumindest in saisonalen klimatologischen Mitteln (Abbildung 6.27) nicht in korrespondierenden Höhenbereichen nachweisen ließen. Bereits in vorangegangenen Kapiteln konnte jedoch gezeigt werden, dass sich ausgeprägte Minima in den Anzahlverteilungen im Bereich ultra-feiner Partikel genau dann einstellen, wenn die Kondensationsflüsse generell reduziert werden und die zeitliche Entwicklung des Kondensationsprozesses dahingehend moduliert wird, dass im Langzeitmittel dieser Prozess eine Dämpfung erfährt (Abbildungen 6.19 und 6.27). Im klimatologischen Mittel unterliegen die Laramie-Daten des Experiments *QBO* zwar höheren Kondensations-Transferkonzentrationen (Abbildung 6.27) als im nicht-QBO-assimilierten Experiment, die QBO-Modulationen der mikrophysikalischen Prozesse in der extratropischen Aerosolschicht können jedoch, wie hier gezeigt, im Jahresdurchschnitt geringere Kondensationsflüsse bewirken: Aus Abbildung 6.43 wird ersichtlich, dass die Laramie-Stationsdaten im QBO-assimilierten Experiment neben reduzierten Kondensationsflüssen auch reduzierte Konzentrationen von Partikelnuclei aufweisen. Daraus kann geschlossen werden, dass die Modellierung stratosphärischer Aerosole in den Extratropen in Experiment *QBO* im hier analysierten Jahr 2006 (das in 50 und 30 hPa überwiegend unter dem Einfluss der am Äquator westlichen QBO-Phase stand) gegenüber dem herkömmlichen Modell der globalen stratosphärischen Aerosolmodellierung einen reduzierten in die Partikelphase gerichteten Massentransfer aufweist.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die QBO deutliche Effekte in extratropischen Partikelanzahlspektren induziert. Diese Effekte hängen weitestgehend mit der Modulation mikrophysikalischer Prozesse zusammen. Größtenteils liegen die QBO-Modulationen der Spektren unterhalb des Detektionsbereichs von Partikeldetektoren, sodass der experimentelle Nachweis von QBO-Modulationen in extratropischen Aerosolen fast ausschließlich auf QBO-Modulationen der Transportwege in dieser sogenannten *Surf Zone* (McIntyre und Palmer, 1984) zurückzuführen sein dürfte.

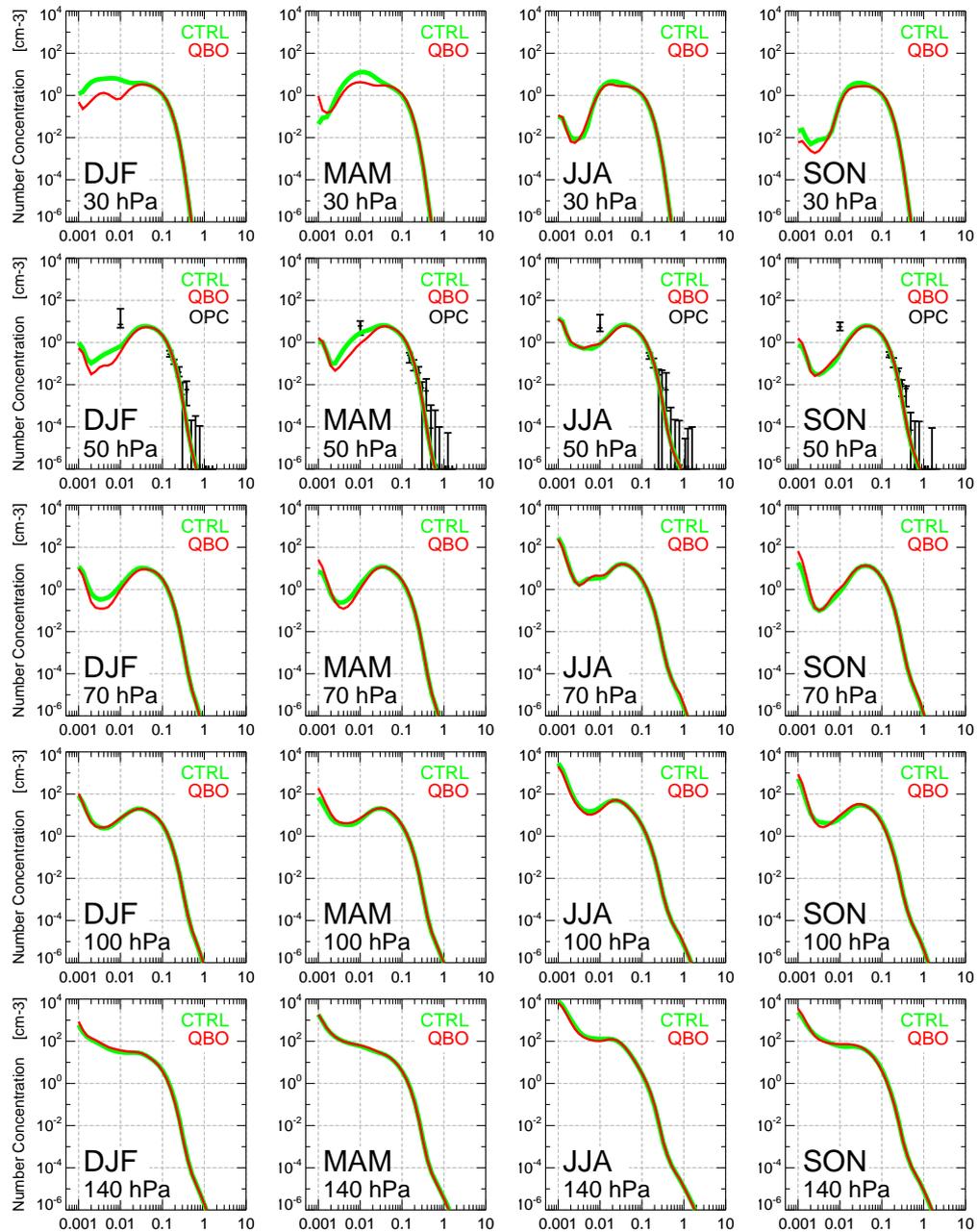


Abbildung 6.43: QBO-Modulation der Partikelanzahlspektren in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre (Laramie, WY, 41°N , 105°W) in direkter Gegenüberstellung zum Kontrolllauf (CTRL) auf Basis saisonaler Mittel des Jahres 2006. Die in 50 hPa exemplarisch einbezogenen OPC-Messungen von Deshler et al. (2003a) basieren auf dem saisonal gemittelten klimatologischen Median aller Messungen in den Jahren 1998 bis 2006, korrespondierend zu entsprechenden OPC-Daten in Abbildung 5.18.

Kapitel 7

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit ist die Weiterentwicklung des sektionalen Aerosolmodells SAM2 vorgestellt worden. SAM2 berücksichtigt wie sein Vorgängermodell SAM ausschließlich Sulfataerosole des binären Typs $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ und ist aufgrund seiner für tiefe Temperaturen adaptierten (mikro-)physikalischen Parametrisierungen prädestiniert für Studien an stratosphärischen Aerosolen.

Gegenüber dem Vorgängermodell ist SAM2 in vielen Bereichen der Aerosolmikrophysik überarbeitet und teilweise erweitert worden. Die Suite von Parametrisierungen des binären homogenen Partikelbildungsprozesses nach Vehkamäki et al. (2002) ersetzt die in SAM explizit erfolgte Berechnung von Nukleationsraten und kritischen Clustergrößen durch eine hochperformante und in vielen Arbeiten analysierte Nukleationsparametrisierung, die auch unter troposphärischen Bedingungen ihre Leistungsfähigkeit bewiesen hat. Die Algorithmen der Gas-Partikel-Partitionierung wurden teilweise modifiziert und mit einem in dieser Arbeit erstmals vorgestellten Filteralgorithmus gekoppelt. Dieser dämpft das Auftreten und die Ausbreitung von Oszillationen in der Partikelanzahlverteilung und der prognostischen Aerosolmassenverteilung unter strikter Einhaltung der Partikelgesamtmasse auch unter extrem steilen Gradienten, wie sie in der oberen Troposphäre sowie der unteren und mittleren Stratosphäre nach Partikelbildungsprozessen und relativ geringen Wachstumsraten auftreten können. Steile Gradienten in zu evaluierenden Spektren sind für numerische Verfahren eine Herausforderung, insbesondere Advektionsschemen höherer Ordnung, wie das in SAM/SAM2 angewendete Verfahren zur Lösung des Massentransfers zwischen Gas- und Partikelphase, neigen hier zu numerischer Dispersion. Diese breitet sich als Oszillation der Lösung zur Integrationszeit in den Partikelspektren aus und beeinträchtigt nachhaltig die Qualität der Modellierung, u.U. wird dadurch die Lösung nachfolgender Prozesse im *Operator Splitting* sogar unmöglich. Der Filteralgorithmus setzt hier an und eliminiert negative Konzentrationen durch Einführung eines nicht-iterativen arithmetisch einfachen Transferterms, der eine leichte Erhöhung der numerischen Diffusion in der unmittelbaren Umgebung der Störungen induziert, diese aber keine nennenswerten Auswirkungen auf die Modellierung der größen aufgelösten Partikelspektren hat.

Zur Validierung des Modells wurde SAM2 in ein Mittelatmosphärenzirkulationsmodell der neusten Generation (MAECHAM5) eingebunden. Die physikalischen Parametrisierungen der Partikelquell- und Senkenprozesse wurden durch Migration entsprechender Module des troposphärischen Aerosolmodells HAM/M7 aktualisiert. Die Reimplementierung von SAM2 erfolgte modularisiert nach Richtlinien der Submodellintegration von (MA)ECHAM5 und erlaubt somit eine vergleichsweise einfache Modifikation von Teilkomponenten. MAECHAM5-SAM2 ist um ein Schema der Schwefelchemie der Atmosphäre erweitert worden, welches auf einer modifizierten Version des CTM CHEM basiert (Steil et al., 2003). Derzeit werden die Schwefelzyklen der Troposphäre und Stratosphäre separat betrachtet, was einen leichten

Overhead im Rechenzeitbedarf, in der IO-Leistung und in der Anforderung von virtuellem Speicher mit sich bringt. Diese Trennung ist derzeit notwendig, um den Referenzzustand von ECHAM5-HAM bezüglich der Modellierung troposphärischen Sulfats weitestgehend zu erhalten. Die Qualität der Modellierung von troposphärischen Sulfataerosolen konnte jedoch nicht eingehend untersucht werden, da die Validierung von MAECHAM5-SAM2 in der Troposphäre nicht den Gegenstand dieser Arbeit darstellt.

Eine neu entwickelte Schnittstelle der ECHAM5-Tracerinitialisierung erlaubt eine einfache und flexible Einbindung von dreidimensionalen Datensätzen auf NetCDF-Basis, um die *Spin-Up*-Zeit des Modells in der Mittelatmosphärenkonfiguration auf ein Minimum zu verkürzen. In dieser Arbeit sind Aerosolmassenmischungsverhältnisse initialisiert worden, welche aus SAGE-II-Klimatologien physikalischer Aerosolparameter repräsentativ für den Hintergrundzustand der stratosphärischen Aerosolschicht abgeleitet werden konnten.

In einer klimatologischen Studie sind die von MAECHAM5-SAM2 modellierten Aerosolkonzentrationen und weitere spezifische Kenngrößen des Partikelspektrums analysiert und sowohl verschiedenen vergleichbaren Modelldaten als auch Satellitenbeobachtungen und In-Situ-Messungen gegenübergestellt worden. Die sehr gute Übereinstimmung der globalen Verteilung, der Konversionsraten, der Budgets und Lebenszeiten der Schwefelkomponenten von MAECHAM5-SAM2 und ECHAM5-HAM sind ein klarer Indikator für die Leistungsfähigkeit des Sulfataerosolmodells SAM2 unter troposphärischen Bedingungen. Die modellierten Konzentrationen der Sulfataerosolvorläufergase profitieren von der Implementierung des Schwefelchemiezyklus der Stratosphäre basierend auf CHEM, entsprechende Daten befinden sich in Übereinstimmung mit den wenigen verfügbaren Messungen dieser Komponenten in der Stratosphäre und ebenso in guter Übereinstimmung mit anderen vergleichbaren Modellen. Demgegenüber scheinen die troposphärischen Konzentrationen von SO₂ höher auszufallen, als es Beobachtungen zeigen. Genaue Analysen hierzu stehen aber derzeit noch aus. Die Konversionsraten der chemischen Oxidationspfade liegen im Bereich anderer Modelle, ebenso die globalen Massen der modellierten Schwefelkomponenten. Über die Rolle, die OCS in der Bilanz der stratosphärischen Schwefelkomponenten spielt, können nur bedingt Aussagen getroffen werden, da diese Komponente derzeit nicht prognostisch behandelt werden kann. Wie SPARC (2006) hervorhebt, stellen neben den Unsicherheiten in der globalen Modellierung von OCS nach wie vor die spärlich verfügbaren Messungen der Aerosolvorläufergase SO₂ und H₂SO₄(g) in der Stratosphäre die wesentlichsten Unsicherheiten in der Bilanzierung des Kreislaufs von Partikeln in der UT/LS-Region dar. Die hier vorgestellte Arbeit schließt sich dem in vollem Umfang an.

Die für Aerosolpartikel der Stratosphäre bedeutende Senke der gravitationsbedingten Sedimentation fällt in MAECHAM5-SAM2 wesentlich höher aus als in ECHAM5-HAM. Die Ursachen scheinen hier in der wesentlich vereinfachten Berücksichtigung dieses Prozesses in ECHAM5-HAM zu liegen.

Die direkte Gegenüberstellung der Aerosolklimatologien von MAECHAM5-SAM2 und SAGE II zeigen zufriedenstellende bis gute Übereinstimmungen, sie offenbaren aber auch vor allem die Unsicherheiten bezüglich der Interpretation der Datensätze. Zusammenfassend kann gesagt werden, je höher das Moment einer zu vergleichenden Partikelverteilung, desto geringer fallen die Unterschiede vor allem qualitativer Art aus. Als äußerst sensitiver Parameter in der Validierung sowohl gegenüber Satellitenbeobachtungen, als auch gegenüber In-Situ-Messungen erweist sich der effektive Radius, da dieser als flächengewichtete Größe stark abhängig ist vom berücksichtigten Partikelspektrum, welches der Erstellung dieser Größe zu Grunde liegt. Gegenüberstellungen der hier modellierten Aerosolmassendichte gegenüber dem Vorgängermodell ECHAM4-SAM (Timmreck, 2001), dem zweidimensionalen Modell AER (u.a. Weisenstein et al., 2007) sowie den aus SAGE-II-Klimatologien abgeleiteten Aerosolmassendichten weisen quantitativ gute Übereinstimmungen in der extratropischen Stratosphäre auf. Die Partikelanzahlverteilungen werden gegenüber der ausgedehnten Messkampagne der *University of Wyoming* von der oberen Troposphäre bis in die oberen Zentralbereiche der stratosphärischen Aerosolschicht in teilweise hervorragender

Übereinstimmung wiedergegeben. In den Konzentrationen von Partikeln im *Accumulation Mode* zeigen sich Defizite im Modell, welche sich sofort in der Wiedergabe des effektiven Radius bemerkbar machen. Unterschiede in den CN-Konzentrationen sind möglicherweise auf eine Unterschätzung der Partikelwachstumsraten im Modell zurückzuführen. Da ultra-feine Partikel derzeit zumindest nicht von der hier herangezogenen Instrumentierung in der Stratosphäre detektiert werden können, ist es im Moment nicht möglich, endgültige Aussagen diesbezüglich zu treffen.

Die Abbildung von Nukleationsraten in Modellen ist ebenfalls mit großen Unsicherheiten verbunden, vergleichbare Modelldaten zeigen hier jedoch gute Übereinstimmungen mit dem hier modellierten Prozess. Der hohen Sensitivität der Partikelformation gegenüber den modellierten Umgebungsparametern und H_2SO_4 -Gasphasenkonzentrationen wird in etwa eine gleich bedeutende Rolle zugemessen wie der Wahl der Parametrisierung selbst. Da sich die Vehkamäki-Parametrisierung der binären homogenen Nukleation derzeit als eine Art Quasi-Standard in der dreidimensionalen Aerosolmodellierung unter Bedingungen der freien Troposphäre und der Stratosphäre durchgesetzt hat, ist es möglich geworden, Ergebnisse verschiedener troposphärischer und stratosphärischer Aerosolmodelle bezüglich der Wiedergabe dieses Prozesses zu vergleichen.

Gegenüber dem Vorgängermodell ECHAM-SAM werden deutliche Verbesserungen vor allem hinsichtlich der Partikelformation und der Wiedergabe der Gasphasenkonzentrationen erzielt. Jene Eigenschaften, die bereits das Vorgängermodell auszeichneten, werden auch von MAECHAM5-SAM2 reproduziert. Die Einbeziehung der stratosphärischen Zirkulation unter besonderer Berücksichtigung der quasi-zweijährigen Schwingung in die Modellierung der stratosphärischen Aerosolschicht stellt jedoch einen weiteren bedeutenden Schritt in Richtung der Erstellung eines größen aufgelösten gesamtatmosphärischen Aerosol-Zirkulationsmodells mit interaktiver Chemiekopplung dar. Das von Giorgetta und Bengtsson (1999) entwickelte Verfahren der Assimilation der quasi-zweijährigen Schwingung reproduziert nicht nur entsprechende QBO-Signale in den Windvektoren der stratosphärischen Zirkulation und damit einhergehend entsprechende Anomalien im stratosphärischen Temperaturgradienten des vertikal relativ niedrig aufgelösten Zirkulationsmodells. Es bietet zugleich die Möglichkeit, die Dynamik der stratosphärischen Aerosolschicht unter dem Einfluss der QBO anhand von vergleichsweise rechenzeitintensiven, weil größen aufgelösten Modellen der Aerosolmikrophysik zu untersuchen.

In dieser Arbeit konnte die quasi-zweijährige Schwingung in Aerosolkonzentrationen der vulkanisch nicht direkt belasteten Stratosphäre nachgewiesen werden. Schon vor über einer Dekade ist in verschiedenen Arbeiten (u.a. Trepte und Hitchman, 1992) die QBO-Beeinflussung von Aerosolextinktionen in der tropischen Stratosphäre nachgewiesen worden, jedoch standen die diesen Analysen zugrunde liegenden Satellitendaten unter einem deutlichen Einfluss von vulkanischen Störungen in der Zeit vor der Eruption des Mt. Pinatubo 1991. Wie in anderen gasförmigen Spurenstoffen der Stratosphäre, z.B. Ozon, beeinflusst die Zirkulation der QBO, welche der Residualzirkulation überlagert ist, maßgeblich die Dynamik der modellierten stratosphärischen Aerosolschicht. Dies erfolgt hauptsächlich durch Modulationen des advektiven Partikeltransports, aber auch durch eine direkte Beeinflussung der mikrophysikalischen Prozesse, die den charakteristischen Ausbildungen von Partikelverteilungen in der Stratosphäre zugrunde liegen.

Die QBO moduliert die Gleichgewichtsbedingung von H_2SO_4 zwischen Partikel- und Gasphase, und in Folge dessen lassen sich direkte QBO-Signale im Partikelformationsprozess, im Partikelwachstum und nicht zuletzt in der Verdunstung der Partikel nachweisen. Derartige Modulationen in den mikrophysikalischen Prozessen konnten bislang nur aus theoretischen Zusammenhängen abgeleitet werden (u.a. Trepte und Hitchman, 1992), ein direkter Nachweis erfolgte bislang weder anhand von Beobachtungen noch anhand von Modellanalysen. Das quasi-statische Gleichgewicht zwischen Verdunstung, Wachstum und Sedimentation, welches sich im traditionellen Modellansatz ohne Reproduktion der QBO einstellt,

wird durch Berücksichtigung dieses bedeutenden Phänomens der stratosphärischen Variabilität zumindest in der tropischen Stratosphäre in ein zyklisches Gleichgewicht transformiert und bestimmt in Überlagerung der SMC-Modulationen des TSR nachhaltig die maximale Ausdehnung der Aerosolschicht in der mittleren Stratosphäre zwischen 10 und ~ 3 hPa.

Charakteristische QBO-Signale konnten in allen derzeit diagnostisch behandelten Aerosolmodellparametern in deren äquatorialen Verteilungen nachgewiesen werden. Viele dieser Signale spielen eine signifikante Rolle in der Ausbildung der sich zyklisch verändernden vertikalen und meridionalen Verteilung der Partikel im tropischen stratosphärischen Reservoir. Während die Komposition von Sulfataerosol ausschließlich direkt oberhalb der Tropopause von QBO-Modulationen beeinflusst wird, die im Zusammenhang mit dem *Tape Recorder* der stratosphärischen Feuchte stehen, spielen QBO-Modulationen des H_2SO_4 -Gleichgewichts zwischen Gas- und Partikelphase nur oberhalb von 30 hPa eine Rolle. QBO-Modulationen der Partikelgröße weisen einen stark nicht-linearen Zusammenhang mit den in Frage kommenden verursachenden Prozessen auf. Diese Nicht-Linearitäten offenbaren sich vor allem durch die scheinbar irregulären, teilweise nicht an QBO-Scherphasen und Aerosolkonzentrationsgradienten gebundene Phaseninversionen in den Anomalien des effektiven Radius.

Sowohl die vertikale als auch die meridionale Verteilung von Aerosolen in der tropischen Stratosphäre stehen in einem unmittelbaren Zusammenhang mit der Sekundärzirkulation der QBO. Analogien in der zeitlichen Entwicklung der modellierten Aerosolkonzentrationsanomalien zur weithin studierten Ozon-QBO (u.a. Hasebe, 1994; Butchart et al., 2003) lassen darauf schließen, dass hauptsächlich QBO-Anomalien in der vertikalen Advektion die vertikale Verteilung von Aerosolen in der tropischen Stratosphäre prägen. In Übereinstimmung mit Beobachtungen (Trepte und Hitchman, 1992; Choi et al., 1998) wird die maximale vertikale Ausdehnung des TSR und damit einhergehend die höchste meridionale Konvergenz der tropischen stratosphärischen Aerosolkonzentration in westlichen QBO-Phasen erzielt, die maximale Divergenz, also die höchste Aerosolkonzentration in der subtropischen Stratosphäre in östlichen QBO-Phasen. Charakteristische Doppelstrukturen, wie sie u.a. aus Methankonzentrationen und Aerosolextinktionen bekannt sind und die direkt mit der Sekundärzirkulation der QBO in Verbindung stehen, werden im Modell reproduziert, wenn am Äquator absteigende westliche Winde die östlichen QBO-Phasen überlagern. In der Literatur wird die Ausbildung dieser Strukturen oft direkt den Transitionsphasen der QBO zugeschrieben, im Modell können charakteristische Doppelstrukturen jedoch nicht in dominierenden Transitionsphasen nachgewiesen werden.

Der überwiegende Teil der stratosphärischen Aerosolmasse residiert im TSR, Lage und Ausdehnung des TSR können in Übereinstimmung mit Beobachtungen aus anderen Spurenstoffen der Stratosphäre wiedergegeben werden. In Übereinstimmung mit Beobachtungen variiert der Zentralbereich der TSR-Aerosolkonzentrationen je nach QBO-Phase um einige Kilometer in seiner Höhe, aufgrund der relativ geringen vertikalen Auflösung des Modells fällt der Effekt jedoch geringer aus als es Beobachtungen zeigen. Die vertikale Auflösung bedingt zudem, dass das TSR im Modell ca. 4 bis 5 km höher angesiedelt zu sein scheint als es z.B. die Aerosolklimatologie von Hitchman et al. (1994) zeigt.

Die in verschiedenen Arbeiten (u.a. Choi et al., 1998) nachgewiesenen Transportregime, welche die aus der tropischen Konvergenzzone in die Stratosphäre beförderten Aerosole in die mittleren bis hohen Breiten verteilen, können vom Modell reproduziert werden. Die vertikale Auflösung gibt das unterhalb des zentralen TSR angesiedelte Transportregime in höheren Regionen wieder als aus Beobachtungen bekannt. Zudem zeigt sich eine starke Beeinflussung dieses Transportwegs in der Nordhemisphäre durch extratropische Aerosole, die ihren Ursprung in den (vom Modell wahrscheinlich überschätzten) Konvektionszellen der Tibetischen Hochebene haben. Diese Partikel können im beginnenden nordhemisphärischen Winter das TSR erreichen und scheinen eine maßgebliche Rolle in der Aufrechterhaltung eines stabilen Zustands der modellierten stratosphärischen Aerosolschicht zu spielen. Da dieses Phänomen im wesentlichen ein

Modellphänomen zu sein scheint und zumindest in der im Modell wiedergegebenen Stärke andere die stratosphärische Aerosolschicht stabilisierende Prozesse überlagert, ist es schwierig einzuschätzen, ob die hier modellierten mikrophysikalischen Prozesse in Verbindung mit dem extratropischen Tropopausenaustausch und dem tropischen, von der QBO maßgeblich modulierten Vertikaltransport die stratosphärische Aerosolschicht auch unter Hintergrundbedingungen stabilisieren können. Diese Arbeit zeigt unter Berücksichtigung der QBO in der Zirkulation der Stratosphäre zwar eine Veränderung des stabilen, sich selbst erhaltenden Gleichgewichts der stratosphärischen Aerosolschicht. Diese erhöhte Variabilität offenbart aber keinen negativen Trend in den stratosphärischen Aerosolkonzentrationen und bestätigt so andere Arbeiten diesbezüglich (u.a. Deshler et al., 2006; SPARC, 2006).

Sieht man vom monsunbedingten Eintrag von Vorläufergasen bzw. Aerosolpartikeln ab, sind die wesentlichen Quellen stratosphärischer Sulfataerosole des binären Typs $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ die obere tropische und extratropische Troposphäre, aber auch die untere Stratosphäre der mittleren Breiten. Die am Ende des polaren Winters bzw. zu Beginn des polaren Frühjahrs in großen Höhen auftretenden Partikelbildungs-raten tragen nur unwesentlich zur gesamtstratosphärischen Aerosolmasse bei. Im geringen Maße spielen sie eine Rolle in der Schwefelbilanz der von Verdunstung geprägten Regionen oberhalb der zentralen Bereiche der Aerosolschicht.

Es könnte weiterhin nachgewiesen werden, dass die Einbeziehung der QBO in die Modellierung der stratosphärischen Aerosolschicht die Partikelanzahlverteilungen in den Extratropen maßgeblich beeinflusst. Da diese Modulationen vornehmlich im ultra-feinen Partikelbereich erfolgen, kann geschlussfolgert werden, dass entsprechende QBO-Modulationen von optischen Sensoren der Partikeldetektion kaum detektierbar sein dürften.

Die hier vorliegende Arbeit zeigt erstmals Modulationen in den gasförmigen Sulfataerosolvorläuferkomponenten SO_2 und H_2SO_4 . In Übereinstimmung mit analytischen Arbeiten (u.a. Seol und Yamazaki, 1998) und Analysen von Konzentrationen anderer gasförmiger Spurenstoffe der Stratosphäre, die auf Satellitenbeobachtungen basieren (O'Sullivan und Chen, 1996), konnte ein erhöhter Vertikaltransport von SO_2 aus der oberen tropischen Troposphäre in östlichen QBO-Phasen nachgewiesen werden. QBO-induzierte Anomalien in der äquatorialen Verteilung von H_2SO_4 unterhalb von 14 hPa sind eine direkte Folge der QBO-modulierten Advektion von SO_2 , die wegen der photochemisch geringen Verweildauer von H_2SO_4 über den chemischen Transformationsweg direkt H_2SO_4 -Anomalien hervorrufen. Obwohl die Konzentrationen von Dimethylsulfid in der Stratosphäre eine untergeordnete Rolle spielen, konnte ein *Tape-Recorder*-Signal in der stratosphärischen DMS-Konzentration nachgewiesen werden. DMS wird derzeit nicht in der stratosphärischen Schwefelchemie berücksichtigt, sodass sich der hier gefundene *Tape Recorder* in DMS in zukünftigen Modellversionen möglicherweise relativiert.

Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen, dass nur durch die Einbeziehung der quasi-zweijährigen Schwingung in die Modellierung der stratosphärischen Aerosolschicht die charakteristischen Zyklen der vertikalen und meridionalen Verteilungen von tropischen stratosphärischen Sulfataerosolen wiedergegeben werden können. QBO-Modulationen beeinflussen alle Momente einer stratosphärischen Aerosolverteilung zumindest am Äquator, ebenso die Konzentrationen der Sulfataerosolvorläufergase sowie deren Transport durch die tropische Tropopause. Nicht-lineare Zusammenhänge in den wechselseitigen Beeinflussungen der QBO-modulierten Aerosolkenngößen erfordern weitere quantitative und vor allem statistische Analysen, die auch das vom Modell aufgelöste Spektrum planetarer Wellen einbeziehen sollten, um den advektiven Transport und extratropische Mischungsvorgänge quantifizieren zu können. Dies ist notwendig, um zukünftigen Applikationen wie der Modellierung von Klimafolgen vulkanischer Extremereignisse, der Modellierung der Ozonchemie oder möglichen geingenieurtechnischen Herausforderungen gewachsen zu sein. Die hier vorgestellten Ergebnisse der modellierten Dynamik der stratosphärischen Aerosolschicht unter Einbeziehung der quasi-zweijährigen Schwingung offenbaren vor allem die Vielschichtigkeit der

QBO-induzierten Modulationen in stratosphärischen Aerosolen anhand von überwiegend qualitativen Analysen der prognostischen und der sich daraus ableitenden diagnostischen Aerosolkenngrößen. Die hier vorgestellten Ergebnisse zeigen darüber hinaus das Potential der größen aufgelösten Modellierung stratosphärischer Aerosole auf Grundlage einer möglichst vollständigen und realitätsnahen Beschreibung der stratosphärischen Variabilität für künftige Anwendungen auf Basis von interaktiv gekoppelten Chemie-Klimamodellen bzw. Erdsystemmodellen.

Kapitel 8

Ausblick

Die für stratosphärische Spurenstoffe relativ hohen Konzentrationen von Sulfataerosolen und deren größtenteils lange Verweildauer machen diese zu einem idealen Tracer des Studiums von Mischungsprozessen der Stratosphäre. Wie bereits ausgangs der Zusammenfassung angesprochen, erfordern die hier vorgestellten ersten Einblicke in die QBO-Beeinflussung von stratosphärischen Aerosolen weitere systematische Analysen, wie sie bereits für andere gasförmige Spurenstoffe der Stratosphäre in den letzten Jahren durchgeführt worden sind (u.a. Schoeberl et al., 2008). Es wird erwartet, dass die Einbeziehung statistischer Methoden in die Analyse dieser und weiterer Experimente zu einem besseren Verständnis der Mechanismen beitragen wird, die der globalen Verteilung von Aerosolen in der Stratosphäre zugrunde liegen. Die sich im Vergleich zu anderen QBO-modulierten Aerosolparametern größtenteils irregulär entwickelnden Anomalien im effektiven Radius der stratosphärischen Aerosolpopulationen könnten z.B. anhand von Korrelationsanalysen auf ihren Ursprung hin untersucht werden. Da in der Regel die Berechnung des Strahlungsantriebs von Aerosolen in der Atmosphäre Kenntnisse des effektiven Radius entsprechender Partikeldistributionen voraussetzt, ist die Interpretation der Modellierung dieser bedeutenden Kenngröße der Aerosoldynamik von entscheidender Bedeutung für künftige Applikationen des hier vorgestellten Modellsystems.

Die Koppelung des Aerosolmoduls SAM2 an das Strahlungsschema von MAECHAM5 gilt als nächster Meilenstein in der Entwicklung des hier vorgestellten Modellsystems. Die im Zuge der Eruption des Mt. Pinatubo beobachteten Klimafolgen können derzeit von MAECHAM5-SAM2 ohne Strahlungskopplung nicht sinnvoll modelliert werden.

Ein, wie in dieser Arbeit beschriebener, signifikanter Eintrag troposphärischer Schwefelkomponenten durch die extratropische Tropopause maskiert sowohl die Identifikation als auch quantitative Analyse derjenigen Prozesse, denen die Erhaltung der stratosphärischen Aerosolschicht auch unter ausbleibenden vulkanischen Extremereignissen zugeschrieben werden. Daher sind weiterführende Untersuchungen der bis in das TSR reichenden monsunbedingten Beeinflussung der stratosphärischen Aerosolschicht von besonderer Bedeutung. Dieses Phänomen ist derzeit nicht wie in der vom Modell beschriebenen Weise aus Beobachtungen stratosphärischer Aerosole bekannt, Modellstudien anderer UT/LS-Spurenstoffe zeigen dagegen ähnliche Effekte (u.a. Bannister et al., 2004; Gettelman et al., 2004).

Obwohl das hier vorgestellte Modellsystem für Untersuchungen unter stratosphärischen Bedingungen konzipiert worden ist, bleibt eine Validierung der modellierten Sulfatkomponenten in der Troposphäre unerlässlich. Zum einen um auch in künftigen Applikationen die Schliessung der globalen und gesamtatmosphärischen Schwefelmassenbilanz sicher zu stellen, zum anderen um die in der Troposphäre

äußerst effektiven Senkenmechanismen von Sulfataerosolen und deren Vorläufergasen quantifizieren zu können. Modellerte Flüsse und Konzentrationen einzelner Schwefelkomponenten der Troposphäre lassen sich in vielfältiger Form mit Beobachtungen und Simulationen vergleichen, da die Basis veröffentlichter Daten in der Troposphäre ungleich höher ist wie die der Stratosphäre. Erste Einblicke diesbezüglich wurden in dieser Arbeit gegeben. Diese legen nahe, dass MAECHAM5–SAM2 auch in der Troposphäre die globale Verteilung von Sulfataerosolen sinnvoll beschreiben kann.

Im Folgenden sollen einige weitere Punkte genannt werden, die bereits berücksichtigte Modellkomponenten kompletieren und von deren Einbeziehung verbesserte Modelleigenschaften erwartet werden: Eine erhöhte vertikale Auflösung des Modells, beispielsweise auf Basis der L90–Version von MAECHAM5, wird wesentlich dazu beitragen, dass sich die vertikale Ausdehnung der stratosphärischen Aerosolschicht den aus Beobachtungen bekannten Daten weiter annähert. Damit einhergehend wird sich die qualitative Abbildung der Transportregime stratosphärischer Aerosole deutlich verbessern.

OCS muss künftig prognostisch behandelt werden, dies setzt allerdings die Verfügbarkeit von geeigneten Emissionsszenarien des Sulfataerosolvorläufergases voraus. Zur Zeit nicht berücksichtigt werden Reaktionen der Nachtchemie der Stratosphäre, ebenso wie einige Reaktionen der stratosphärischen Schwefelchemie unter Tageslicht (DMS). Die Photolyserate von H_2SO_4 erfordert eine Revision, da deren Größenordnung derzeit nur grob abgeschätzt wird und qualitativ auf der Photolyserate von SO_3 basiert. Generell scheint aber die Chemie–Komponente des Modellsystems vorerst zukünftigen Applikationen gewachsen zu sein, dies gilt derzeit natürlich nicht für Fragestellungen zur Ozonchemie. SAM2 kann aber auch in zukünftigen interaktiven Chemie–Zirkulationsmodellen eine leistungsfähige Basis zur Beschreibung heterogener Reaktionen an und in Aerosolpartikeln darstellen, die Erweiterung der SAM2–Parametrisierungen hinsichtlich der Einbeziehung weiterer Aerosolkomponenten wie HNO_3 muss allerdings überprüft werden. Das *Setup* des Modells ist flexibel hinsichtlich des berücksichtigten Partikelgrößenbereichs, der implementierten Quell- und Senkenprozesse und zum Teil auch in der Wahl der prognostischen Hauptaerosolkomponente. Derzeit berücksichtigt die Definition des Modells, wie auch die des Vorgängermodells keine anderen intern gemischten Komponenten als das binäre System Schwefelsäure–Wasser.

Obwohl die Anwendungsmöglichkeiten des hier vorgestellten Aerosol–Zirkulationsmodells konfigurationsbedingt derzeit eingeschränkt sind, zeigen die hier vorgestellten Studien das Potential der größen aufgelösten Aerosolmodellierung in der Stratosphäre auf. Wegen der teilweise hohen Variabilität in der räumlichen Ausbreitung von stratosphärischen Aerosolen sowie in den mikrophysikalischen Prozessgrößen kann die Modellierung der stratosphärischen Aerosolschicht nur auf Basis eines die Brewer–Dobson–Zirkulation vollständig beschreibenden Zirkulationsmodells erfolgen, das zudem in der Lage sein sollte, die quasi–zweijährige Schwingung in der äquatorialen Stratosphäre aufzulösen. Die hier vorliegende Arbeit ist ein weiterer und nicht unbedeutender Schritt in der Entwicklung eines umfassenden Chemie–Klimamodells der mittleren bis oberen Atmosphäre, das sowohl Partikelinteraktionen mit der Chemie der Stratosphäre und der Troposphäre berücksichtigt und darüber hinaus in der Lage ist, Interaktionen von Aerosolpartikeln und klimarelevanten Prozessen der Atmosphäre mit hinreichender Genauigkeit wiedergeben zu können.

Anhang A

Oxidanten-Felder des troposphärischen Schwefelkreislaufs

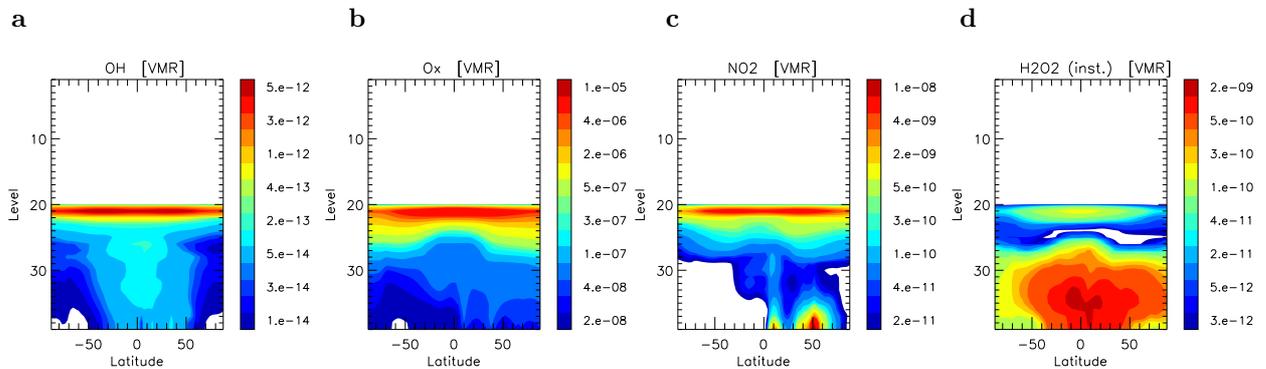


Abbildung A.1: Meridionale Verteilungen der Volumenmischungsverhältnisse der Oxidanten-Felder des troposphärischen Schwefelkreislaufs anhand zonaler Jahresmittel: (a) Hydroxyl-Radikal (OH), (b) photochemisch aktive Sauerstoffverbindungen (O_x), (c) Stickstoffdioxid (NO_2) sowie (d) Wasserstoffperoxid (H_2O_2). Alle Felder basieren auf einer Integration des CTM MOZART2 (Horowitz et al., 2003). Der Datensatz ist äquivalent zu dem von ECHAM5-HAM (Stier et al., 2005) und daher in der Höhe auf 10 hPa begrenzt, die Darstellung erfolgt in σ -Hybrid-Koordinaten der L39-Version von MAECHAM5-SAM2.

Oxidanten-Felder der stratosphärischen Schwefelchemie

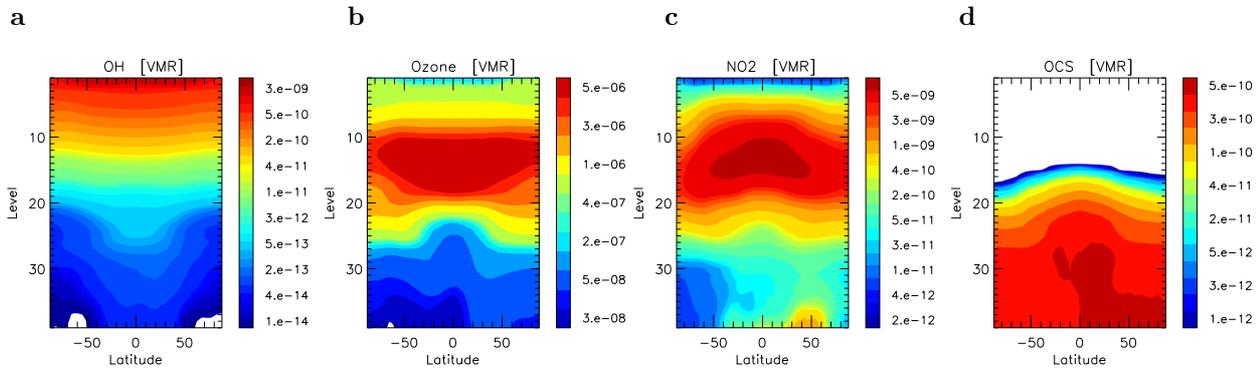


Abbildung A.2: wie A.1, aber hier anhand der Volumenmischungsverhältnisse der Oxidanten-Felder: (a) Hydroxyl-Radikal (OH), (b) Ozon (O₃), (c) Stickstoffdioxid (NO₂) sowie (d) Carbonylsulfid (OCS). (a) bis (c) basieren auf einer mehrmonatigen Integration des interaktiv gekoppelten Chemie-Zirkulationsmodells MESSy in Version 0.9 (Jöckel et al., 2005; Sander et al., 2005), (d) basiert auf einer Simulation des interaktiv gekoppelten Chemie-Zirkulationsmodells MAECHAM4-CHEM-SAM (Claudia Timmreck, persönliche Kommunikation).

Photolyseraten der stratosphärischen Schwefelchemie

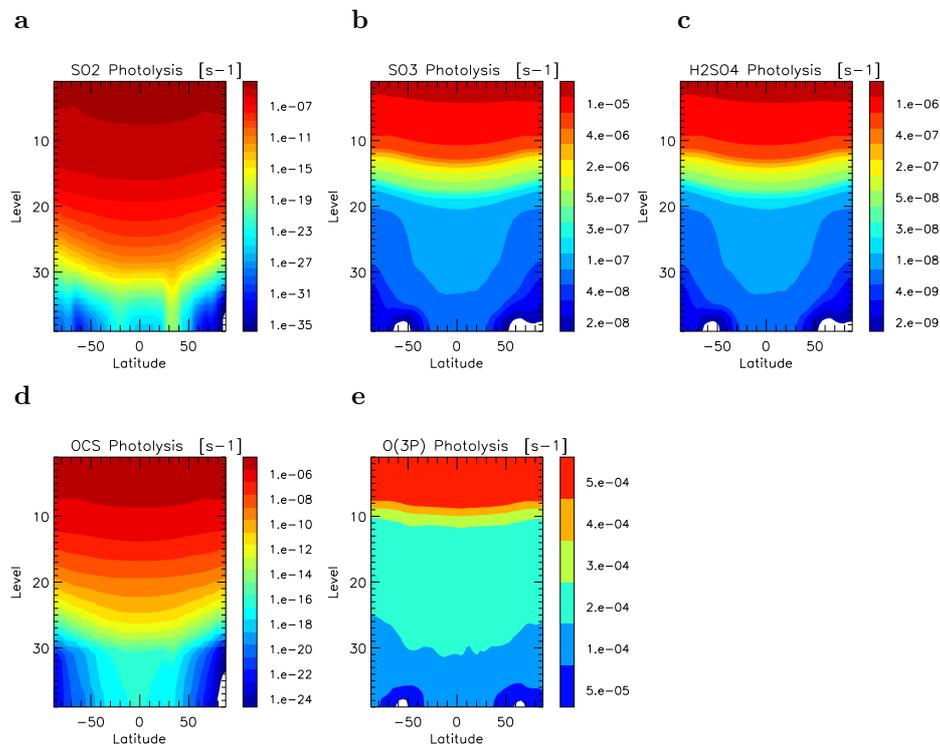


Abbildung A.3: wie A.2, aber anhand der vorgeschriebenen Photolyseraten (in s⁻¹) von: (a) Schwefeldioxid (J_{SO_2}), (b) Schwefeltrioxid (J_{SO_3}), (c) gasförmiger Schwefelsäure ($J_{\text{H}_2\text{SO}_4}$), (d) Carbonylsulfid (J_{OCS}) und (e) Ozon (J_{O_3}). Alle Felder bis auf (c) basieren auf einer mehrmonatigen Integration von MESSy 0.9 (Jöckel et al., 2005; Sander et al., 2005). (c) basiert auf der in Kapitel 4.3.2 beschriebenen Photolyserate von J_{SO_3} in (b).

Anhang B

Kontrolllauf (*CTRL*): Klimatologie von GCM-Parametern

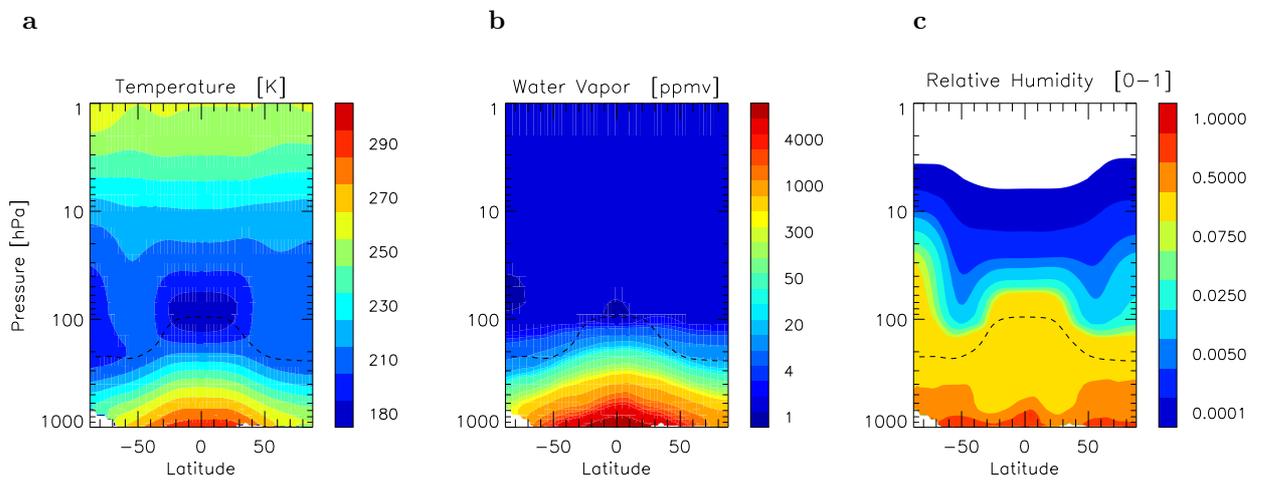


Abbildung B.1: Klimatologische zonale Mittel im elfjährigen Analysezeitraum des Experiments *CTRL*: (a) Temperatur, (b) Volumenmischungsverhältnis von Wasserdampf und (c) relative Feuchte.

Anhang C

Gleichgewichtszustand in Aerosolparametern

Höhe hPa	Prozentuale Abweichung integrierter Aerosolspektren [%]												
	Massenmischungsverhältnis				Partikelanzahl				Oberflächendichte				
	Gesamt		Accum.		Gesamt		Accum.		Gesamt	Accum.			
14	6.13	[−0.97]	6.25	[−1.41]	18.87	[6.40]	5.20	[2.37]	6.32	[0.88]	6.31	[−0.13]	Jahresmittel
	3.41	[1.55]	3.45	[1.60]	15.93	[−3.12]	1.73	[0.81]	3.40	[1.10]	2.98	[1.38]	12-1999/12-2006
18	3.20	[−1.11]	3.47	[−1.58]	5.94	[6.48]	1.45	[2.44]	2.57	[0.92]	3.11	[−0.23]	Jahresmittel
	3.28	[−0.49]	3.48	[−0.45]	9.98	[−5.67]	0.99	[−0.97]	2.60	[−0.83]	2.81	[−0.57]	12-1999/12-2006
25	4.52	[−1.41]	5.23	[−1.94]	6.26	[7.13]	0.79	[2.38]	2.09	[0.81]	3.81	[−0.44]	Jahresmittel
	3.31	[−1.23]	3.67	[−1.20]	1.42	[−4.84]	0.29	[−0.72]	2.03	[−1.17]	2.79	[−1.00]	12-1999/12-2006
30	6.31	[−1.53]	7.44	[−2.07]	6.26	[8.80]	1.47	[2.25]	2.51	[0.72]	5.20	[−0.50]	Jahresmittel
	3.62	[−0.76]	3.99	[−0.70]	1.34	[−4.40]	0.83	[0.30]	2.31	[−0.50]	3.10	[−0.28]	12-1999/12-2006

Tabelle C.1: Prozentuale Abweichungen in Parametern des Aerosolmodells während der Integration des Modells: Aerosolmassenmischungsverhältnis, Partikelanzahlkonzentration und Partikeloberflächendichte, jeweils integriert über das gesamte modellierte Partikelspektrum ($1 \text{ nm} \leq R \leq 2.6 \text{ }\mu\text{m}$) bzw. dem *Accumulation Mode* ($50 \text{ nm} \leq R \leq 0.5 \text{ }\mu\text{m}$). Die obere Reihe im jeweiligen Druckniveau stellt die globalen Jahresmittel von 1996 und 2006 gegenüber, die untere Reihe jeweils die globalen Dezembermittel von 1999 und 2006, wenn in Experiment *QBO* die zonalen Winde in 30 hPa östlich ausgerichtet sind. In eckigen Klammern die jeweils korrespondierenden Werte des nicht-*QBO*-assimilierten Modells (*CTRL*).

Anhang D

Struktur des OPC–Datensatzes der *University of Wyoming*

Saison	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2005	2006
JF				Feb 10 (9)[11-32]				Feb 13 (13)[10-28]
MAM	Apr 23 (13)[12-28] Mai 05 (13)[13-31]	Mar 18 (11)[12-32] Apr 20 (11)[12-31]	Apr 12 (11)[12-32] Mai 24 (9)[13-30]		Mai 23 (13)[15-33]		Mai 20 (13)[16-34]	Mai 06 (13)[11-31]
JJA	Aug 05 (13)[17-31]	Jun 23 (11)[12-33] Jul 21 (13)[15-23]	Jul 13 (9)[15-30] Aug 31 (10)[18-33]	Jul 25 (9)[16-30]		Jul 28 (12)[15-33]	Jul 07 (13)[14-34]	
SON		Sep 16 (11)[11-33]					Okt 17 (13)[11-33]	
D		Dez 10 (11)[10-30]						

Tabelle D.1: Verfügbare OPC–Messungen von Deshler et al. (2003a) zwischen 1998 und 2006. In runden Klammern die Anzahl der jeweils gemessenen Kanäle, inklusive der CN–Messung. In eckigen Klammern der jeweils untersuchte Höhenbereich in [km].

Anhang E

Äquatoriale Variabilität ausgewählter Parameter des Kontrolllaufs

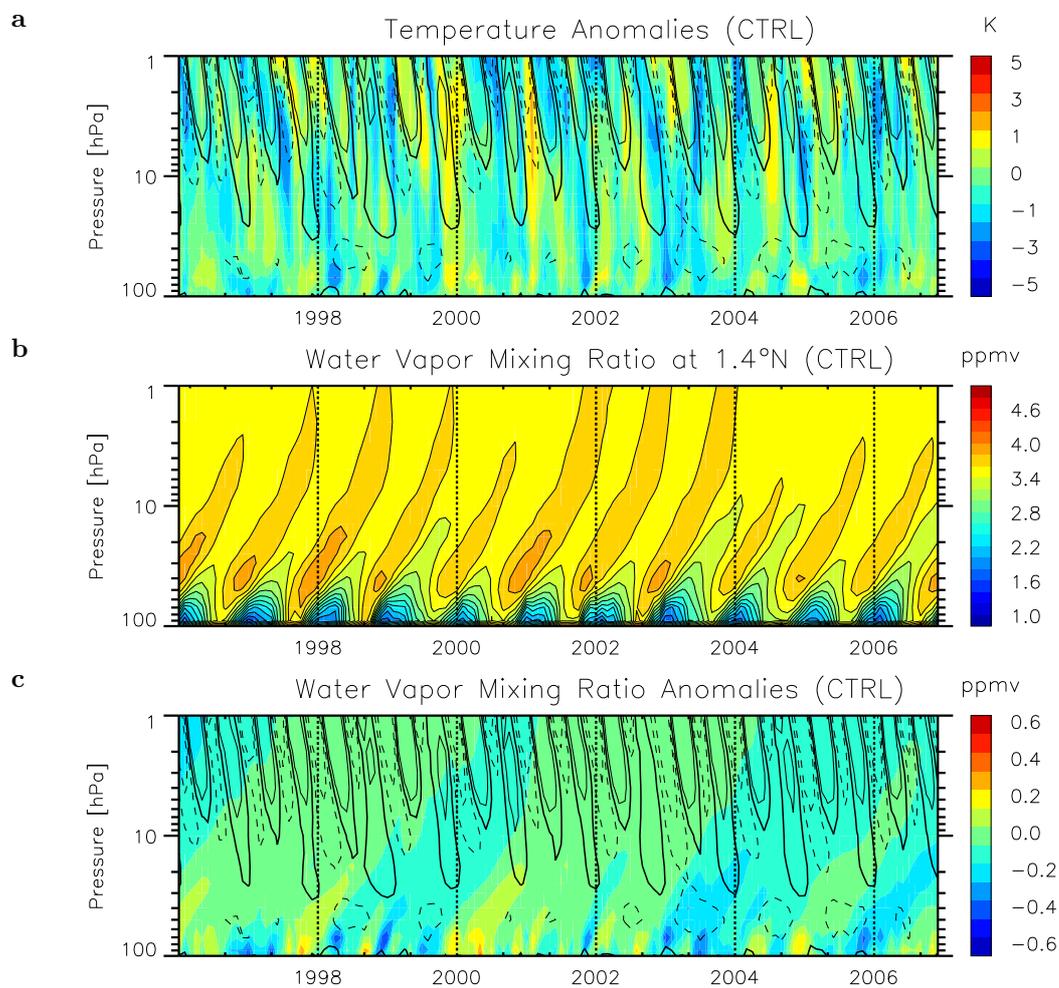


Abbildung E.1: Experiment *CTRL*: Die zeitlichen Entwicklungen der modellierten (a) Temperaturanomalien, (b) des Volumenmischungsverhältnisses des stratosphärischen Wasserdampfs und (c) der entsprechenden Wasserdampfanomalien bei 1.4°N anhand zonaler monatlicher Mittel. Die Konturlinien in (a) und (c) kennzeichnen den modellierten zonalen Wind, die dicke schwarze Kontur repräsentiert Regionen der Windtransition, östliche zonale Winde werden strich-punktiert.

Gegenüberstellung ausgewählter klimatologischer Mittel beider Experimente

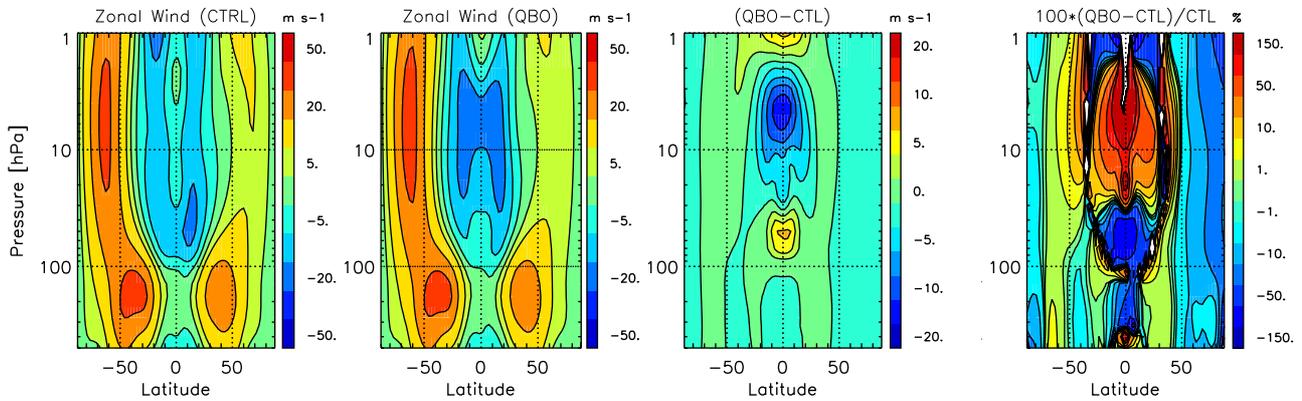


Abbildung E.2: Klimatologische zonale Mittel des 11 Jahre umfassenden Analysezeitraums von 1996 bis 2006 im modellierten zonalen Wind: (a) im Kontrolllauf (*CTRL*), (b) im QBO-assimilierten Experiment (*QBO*), (c) Differenz und (d) relativer Unterschied beider Simulationen.

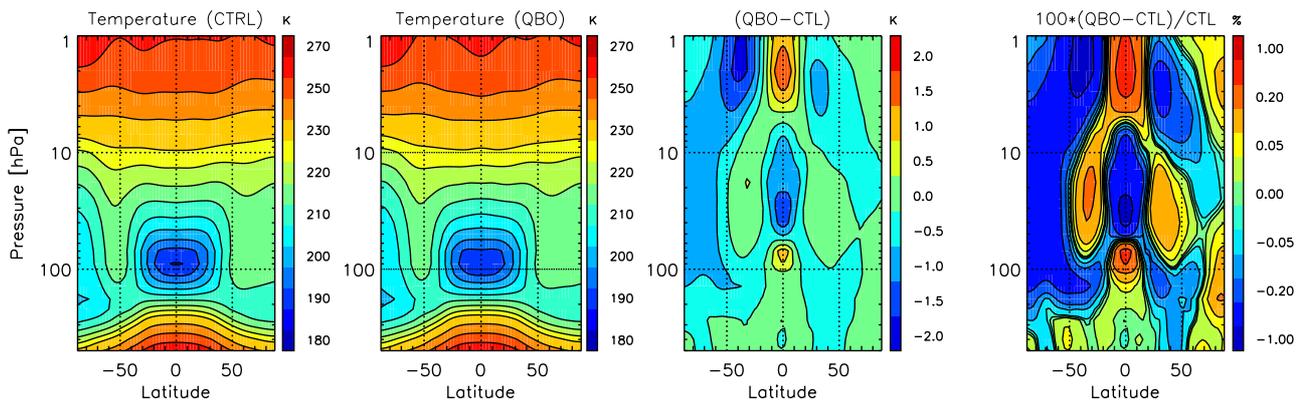


Abbildung E.3: wie E.2, aber hier für die modellierte Temperaturverteilung.

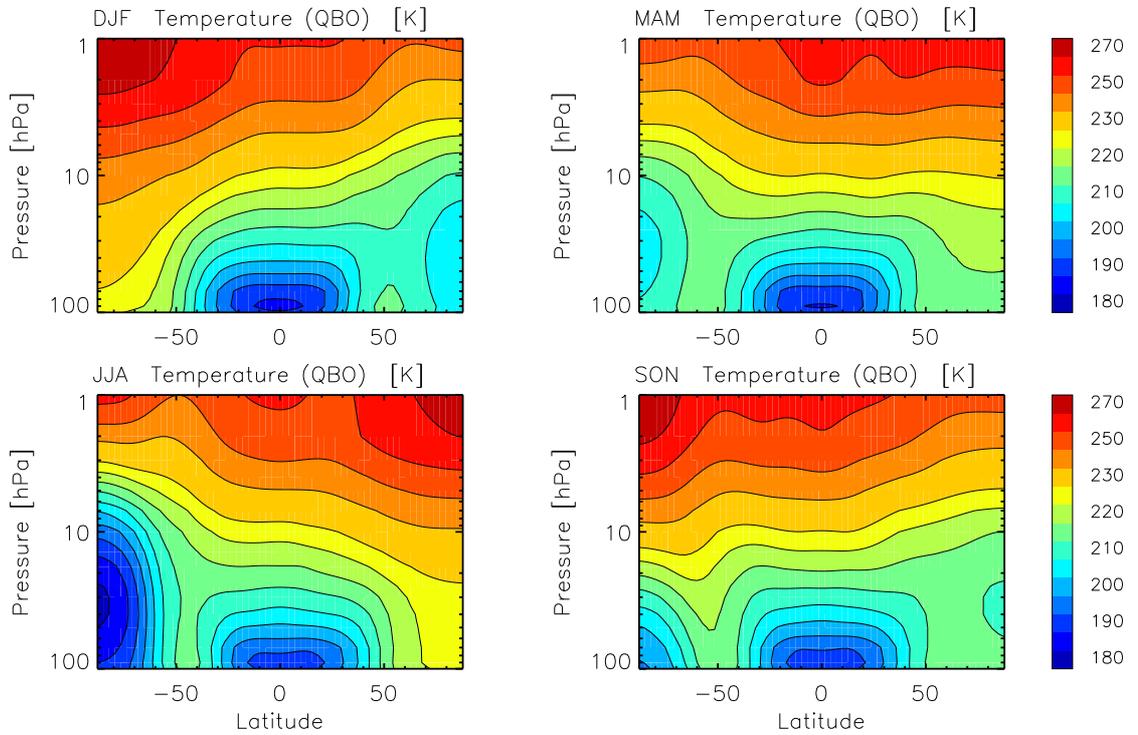
Saisonalität der Temperatur in Experiment *QBO*

Abbildung E.4: Saisonale zonale Mittel der elfjährigen Klimatologie von 1996 bis 2006 der in Experiment *QBO* modellierten stratosphärischen Temperaturverteilung.

Anhang F

Die SO_2 -Konzentration unter dem Einfluss der westlichen QBO-Scherphase

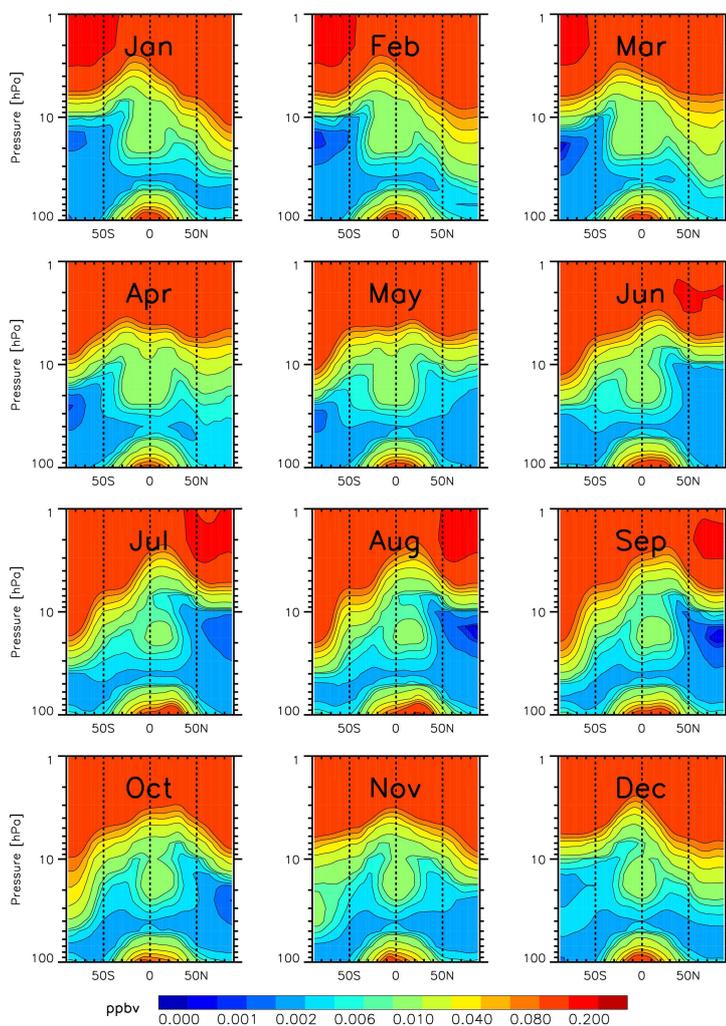


Abbildung F.1: Zeitliche Entwicklung der zonalen Monatsmittel des in Experiment *QBO* modellierten SO_2 unter dem Einfluss einer bei 30 hPa auftretenden westlichen QBO-Scherphase im November 2001.

Literaturverzeichnis

- Adams, P. J. und Seinfeld, J. H.: Predicting global aerosol size distributions in general circulation models, *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JD001010, 2002.
- Albrecht, B. A.: Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness, *Science*, 245, 1227–1230, 1989.
- Andreae, M. und Crutzen, P.: Atmospheric aerosols: Biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, 276, 1052–1056, 1997.
- Andreae, O. M., Jones, C. D., und Cox, P. M.: Strong present-day aerosol cooling implies a hot future, *Nature*, 435, 1187–1190, 2005.
- Andres, R. J. und Kasgnoc, A. D.: A time-averaged inventory of subaerial volcanic sulfur emissions, *J. Geophys. Res.*, 103, 25 251–25 261, 1998.
- Andrews, D. G., Holton, J. R., und Leovy, C. B.: *Middle Atmosphere Dynamics*, Academic Press, San Diego, CA, 1987.
- Ansmann, A., Wandinger, U., und Weitkamp, C.: One-year observations of Mount-Pinatubo aerosol with an advanced Raman lidar over Germany at 53.5°N, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 711–714, 1993.
- Appenzeller, C., Holton, J. R., und Rosenlof, K. H.: Seasonal variation of mass transport across the tropopause, *J. Geophys. Res.*, 101, 15 071–15 078, 1996.
- Arnold, F. und Fabian, R.: First measurements of gas phase sulphuric acid in the stratosphere, *Nature*, 283, 55–57, 1980.
- Arnold, F., Petzoldt, K., und Reimer, E.: On the formation and sedimentation of stratospheric nitric acid aerosols: Implications for polar ozone destruction, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 677–680, 1992.
- Arnold, F. a.: Upper stratosphere negative ion composition measurements and inferred trace gas abundances, *Planet. Space sci.*, 32, 169–177, 1984.
- Ayers, G. P., Gillett, R. W., und Gras, J. L.: On the vapor pressure of sulfuric acid, *Geophys. Res. Lett.*, 7, 433–436, 1980.
- Baldwin, M. P., Gray, L. J., Dunkerton, T. J., Hamilton, K., Haynes, P. H., Randel, W. J., Holton, J. R., Alexander, M. J., Hirota, I., Horinouchi, T., Jones, D. B. A., Kinniersley, J. S., Marquardt, C., Sato, K., und Takahashi, M.: The quasi-biennial oscillation, *Rev. Geophys.*, 39, 179–229, 2001.
- Balkanski, Y., Schulz, M., Claquin, T., Moulin, C., und Ginoux, P.: Global emissions of mineral aerosol: Formulation and validation using satellite imagery. *Emissions of atmospheric trace compounds*, Granier C., Artaxo P., Reeves C.E. (Eds), Kluwer, 2004.
- Ball, S. M., Hanson, D. R., und Eisele, F. L.: Laboratory studies of particle nucleation: Initial results for H₂SO₄, H₂O, and NH₄ vapor, *J. Geophys. Res.*, 104, 23 709–23 718, 1999.

- Bannister, R. N., O'Neil, A., Gregory, A. R., und Nissen, K. M.: The role of the south-east Asian monsoon and other seasonal features in creating the 'tape-recorder' signal in the Unified Model, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 130, 1531–1554, 2004.
- Barnes, J. E. und Hofmann, D. J.: Lidar measurements of stratospheric aerosol over Mauna Loa observatory, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 1923–1926, 1997.
- Barnes, J. E. und Hofmann, D. J.: Variability in the stratospheric background aerosol over Mauna Loa observatory, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 2895–2898, 2001.
- Barth, M. C., Rasch, P. J., Kiehl, J. T., Benkovitz, C. M., und Schwartz, S. E.: Sulfur chemistry in the National Center for Atmospheric Research Community Climate Model: Description, evaluation, features, and sensitivity to aqueous chemistry, *J. Geophys. Res.*, 105, 1387–1415, 2000.
- Bauman, J. J., Russell, P. B., Geller, M. A., und Hamill, P.: A stratospheric aerosol climatology from SAGE II and CLAES measurements: 1. Methodology, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002992, 2003a.
- Bauman, J. J., Russell, P. B., Geller, M. A., und Hamill, P.: A stratospheric aerosol climatology from SAGE II and CLAES measurements: 2. Results and comparisons, 1984–1999, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002993, 2003b.
- Baumgardner, D., Kok, G., und Raga, G.: Warming of the Arctic lower stratosphere by light absorbing particles, *Geophys. Res. Lett.*, 31, doi:10.1029/2003GL018883, 2004.
- Bekki, S.: On the possible role of aircraft-generated soot in the middle latitude ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, 102, 10 751–10 758, 1997.
- Bekki, S., Pyle, J. A., Zhong, W., Haigh, R. T. J. D., und Pyle, D. M.: The role of microphysical and chemical processes in prolonging the climate forcing of the Toba eruption, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2669–2672, 1996.
- Bergin, M. H., Greenwald, R., Xu, J., Berta, Y., und Chameides, W. L.: Influence of aerosol dry deposition on photosynthetically active radiation available to plants: A case study in the Yangtze delta region of China, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 3605–3608, 2001.
- Berndt, T., Böge, O., Stratmann, F., Heintzenberg, J., und Kulmala, M.: Rapid formation of sulfuric acid particles at near-atmosphere conditions, *Science*, 307, 698–700, 2005.
- Birmili, W., Plass-Dülmer, A. W. C., und Berresheim, H.: Evolution of newly formed aerosol particles in the continental boundary layer: A case study including OH and H₂SO₄ measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 2205–2208, 2000.
- Blake, D. und Kato, K.: Latitudinal distribution of black carbon soot in the upper troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 100, 7195–7202, 1995.
- Bluth, G. J. S., Doiron, S. D., Schnetzler, C. C., Krueger, A. J., und Walte, L. S.: Global tracking of the SO₂ clouds from the June, 1991 Mount Pinatubo eruptions, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 151–154, 1992.
- Borrmann, S., Dye, J. E., Baumgardner, D., Wilson, J. C., Jonsson, H. H., Brock, C. A., Loewenstein, M., Podolske, J. R., Ferry, G. V., und Barr, K. S.: In-situ measurements of changes in stratospheric aerosol and the N₂O–aerosol relationship inside and outside of the polar vortex, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 2559–2562, 1993.
- Brasseur, G. P. und Granier, C.: Future changes in stratospheric ozone and the role of heterogeneous chemistry, *Nature*, 348, 626–628, 1990.
- Brock, C. A., Hamill, P., Wilson, J. C., Jonsson, H. H., und Chan, K. R.: Particle formation in the upper tropical troposphere: A source of nuclei for the stratospheric aerosol, *Science*, 270, 1650–1653, 1995.
- Butchart, N., Scaife, A. A., Austin, J., Hare, S. H. E., und Knigh, J. R.: Quasi-biennial oscillation in ozone in a coupled chemistry–climate model, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD003004, 2003.

- Cadle, R. D. und Grams, G. W.: Stratospheric aerosol and their optical properties, *Rev. Geophys. Space Physics*, 13, 475–501, 1975.
- Carn, S. A., Krotkov, N. A., Yang, K., Hoff, R. M., Prata, A. J., Krueger, A. J., Loughlin, S. C., und Levelt, P. F.: Extended observations of volcanic SO₂ and sulfate aerosol in the stratosphere, *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 7, 2857–2871, 2007.
- Carslaw, K., Luo, B. P., Clegg, S., Peter, T., Brimblecombe, P., und Crutzen, P.: Stratospheric aerosol growth and HNO₃ gas phase depletion from coupled HNO₃ and water uptake by liquid particles, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2479–2482, 1994.
- Carslaw, K., Peter, T., und Clegg, S.: Modelling the composition of liquid stratospheric particles, *Rev. Geophys.*, 35, 125–154, 1997.
- Charlton, A. J., Polvani, L. M., Perlwitz, J., Sassi, F., Manzini, E., Shibata, K., Pawson, S., Nielsen, J. E., und Rind, D.: A new look at stratospheric sudden warmings. Part II: Evaluation of numerical model simulations, *J. Climate*, 20, 470–488, 2007.
- Chin, M. und Davis, D. D.: A reanalysis of carbonyl sulfide as a source of stratospheric background sulfur aerosols, *J. Geophys. Res.*, 100, 8993–9005, 1995.
- Chin, M., Jacob, D., Gardner, G., Foreman-Fowler, M., Spiro, P., und Savoie, D.: A global three-dimensional model of tropospheric sulfate, *J. Geophys. Res.*, 101, 18 667–18 690, 1996.
- Chlond, A.: Locally modified version of Bott's advection scheme, *Mon. Wea. Rev.*, 122, 111–125, 1994.
- Choi, W., Grant, W. B., Park, J. H., Lee, K., Lee, H., und Russell III, J. M.: Role of the quasi-biennial oscillation in the transport of aerosols from the tropical stratospheric reservoir to midlatitudes, *J. Geophys. Res.*, 103, 6033–6042, 1998.
- Choi, W., Lee, H., Grant, W. B., Park, J. H., Holton, J. R., Lee, K.-M., und Naujokat, B.: On the secondary meridional circulation associated with the quasi-biennial oscillation, *Tellus B* 54, 4, 395–406, 2002.
- Clarke, A. D., Davis, D., Kapustin, V. N., Eisele, F., Chen, G., Paluch, I., Lenschow, D., Bandy, A. R., Thornton, D., Moore, K., Mauldin, L., Tanner, D., Litchy, M., Carroll, M. A., Collings, J., und Albercook, G.: Particle nucleation in the tropical boundary layer and its coupling to marine sulfur sources, *Science*, 282, 89–91, 1998a.
- Clarke, A. D., Varner, J. L., Eisele, F., Mauldin, R. L., Tanner, D., und Litchy, M.: Particle production in the remote marine atmosphere: Cloud outflow and subsidence during ACE 1, *J. Geophys. Res.*, 103, 16 397–16 410, 1998b.
- Clarke, A. D., Kapustin, V., Eisele, F. L., Weber, R. J., und McMurry, P. H.: Particle production near marine clouds: Sulfuric acid and predictions from classical binary nucleation, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 2425–2428, 1999.
- Cofala, J., Amann, M., und Mechler, R.: Scenarios of world anthropogenic emissions of air pollutants and methane up to 2030, *Tech. Rep.*, International Institute for Applied Analysis (IIASA), Laxenburg, Austria, http://www.iiasa.ac.at/rains/global_emiss/globalemmiss.html, 2005.
- Coffman, D. J. und Hegg, D. A.: A preliminary study of the effect of ammonia on particle nucleation in the marine boundary layer, *J. Geophys. Res.*, 100, 7147–7160, 1995.
- Covert, D. S., Kapustin, V. N., Bates, T. S., und Quinn, P. K.: New particle formation in the marine boundary layer, *J. Geophys. Res.*, 97, 20 581–20 589, 1992.
- Crutzen, P. J.: The possible importance of OCS for the sulfate layer of the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 3, 73–76, 1976.
- Cunningham, E.: On the Velocity of Steady Fall of Spherical Particles through Fluid Medium, *Proc. R. Soc.*, 83, 357–365, 1910.

- Dal Maso, M., Kulmala, M., Lehtinen, K. E. J., Mäkelä, J. M., Aalto, P., und O'Dowd, C. D.: Condensation and coagulation sinks and formation of nucleation mode particles in coastal and boreal forest boundary layers, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001DJ001053, 2002.
- de Reus, M., Ström, J., Hoor, P., und J. Lelieveld and, C. S.: Particle production in the lowermost stratosphere by convective lifting of the tropopause, *J. Geophys. Res.*, 104, 23 935–23 940, 1999.
- Dentener, F., Kinne, S., Bond, T., Boucher, O., Cofala, J., Generoso, S., Ginoux, P., Gong, S., Hoelzemann, J., Ito, A., Marelli, L., Penner, J., Putaud, J.-P., Textor, C., Schulz, M., Werf, G., und Wilson, J.: Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 - prescribed data-sets for AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 4321–4344, 2006.
- Dentener, F. J. und Crutzen, P. J.: A three-dimensional model of the global ammonia cycle, *J. Atmos. Chem.*, 19, 331–369, 1994.
- Deshler, T., Hofmann, D. J., Johnson, B. J., und Rozie, W. R.: Balloonborne measurements of the Pinatubo aerosol size distribution and volatility at Laramie, Wyoming during the summer of 1991, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 199–202, 1992.
- Deshler, T., Johnson, B. J., und Rozie, W. R.: Balloonborne measurements of the pinatubo aerosol during 1991 and 1992 at 41°N: Vertical profiles, size distribution and volatility, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 1435–1438, 1993.
- Deshler, T., Hervig, M. E., Hofmann, D. J., Rosen, J. M., und Liley, J. B.: Thirty years of in situ stratospheric aerosol size distribution measurements from Laramie, Wyoming (41° N), using balloon-borne instruments, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002514, 2003a.
- Deshler, T., Larsen, N., Weissner, C., Schreiner, J., Mauersberger, K., Cairo, F., Adriani, A., Donfrancesco, G. D., Ovarlez, J., Ovarlez, H., Blum, U., Fricke, K., und Dörnbrack, A.: Large nitric acid particles at the top of an Arctic stratospheric cloud, *J. Geophys. Res.*, 108, 10.1029/2003JD003 479, 2003b.
- Deshler, T., Anderson-Sprecher, R., Jäger, H., Barnes, J., Hofmann, D. J., Clemesha, B., Simonich, D., Osborn, M., Grainger, R. G., und Godin-Beekmann, S.: Trends in the nonvolcanic component of stratospheric aerosol over the period 1971–2004, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2005JD006089, 2006.
- Doyle, G. J.: Self-nucleation in the sulfuric-acid-water-system, *J. Chem. Phys.*, pp. 795–799, 1961.
- Easter, R. C., Ghan, S. J., Zhang, Y., Saylor, R. D., Chapman, E. G., Laulainen, N. S., Abdul-Razzak, H., Leung, L. R., Bian, X., und Zaveri, R. A.: MIRAGE: Model description and evaluation of aerosols and trace gases, *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2004JD004571, 2004.
- Eichkorn, S., Wilhelm, S., Aufmhoff, H., Wohlfrom, K. H., und Arnold, F.: Cosmic ray-induced aerosol-formation: First observational evidence from aircraft-based ion mass spectrometer measurements in the upper troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 29, doi:10.1029/2002GL01504, 2002.
- Eyring, V., Butchart, N., Waugh, D., Akiyoshi, H., Austin, J., Bekki, S., Bodeker, G., Boville, B., Brühl, C., Chipperfield, M., Cordero, E., Dameris, M., Deushi, M., Fioletov, V., Frith, S., Garcia, R., Gettelmann, A., Giorgetta, M., Grewe, V., Jourdain, L., Kinnison, D., Macini, E., Manzini, E., Marchand, M., March, D., Nagashima, T., Newman, P., Nielsen, J., Pawson, S., Pitari, G., Plummer, D., Rozanov, E., Schraner, M., Shepherd, T., Shibata, K., Stolarski, R., Struthers, H., Tian, W., und Yoshiki, M.: Assessment of temperature, trace species, and ozone in chemistry-climate model simulations of the recent past, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2006JD007327, 2006.
- Fahey, D. W., Kelly, K. K., Kawa, S. R., Tuck, A. F., Loewenstein, M., Chan, K. R., und Heidt, L. E.: Observations of denitrification and dehydration in the winter polar stratosphere, *Nature*, 344, 321–324, 1990.
- Fahey, D. W., Kawa, S. R., Woodbridge, E. L., Tin, P., Wilson, J. C., Jonsson, H. H., Dye, J. E., Baumgardner, D., Borrmann, S., Toohey, D. W., Avallone, L. M., Proffitt, M. H., Margitan, J., Loewenstein, M., Podolske, J. R., Salawitch, R. J., Wofsy, S. C., Ko, M. K. W., Anderson, D. E., Schoeber, M. R., und Chan, K. R.: In situ

- measurements constraining the role of sulphate aerosols in mid-latitude ozone depletion, *Nature*, 363, 509–514, 1993.
- Feichter, J., Kjellstrom, E., Rohde, H., Dentener, F., Lelieveld, J., und Roelofs, G. J.: Simulation of the tropospheric sulfur cycle in a global climate model, *Atmos. Environ.*, 30, 1693–1707, 1996.
- Ferry, G. V., Pueschel, R. F., Strawa, A. W., Kondo, Y., Howard, S. D., Verma, S., Mahoney, M. J., Bui, T. P., Hannan, J. R., und Fuelberg, H. E.: Effects of aircraft on aerosol abundance in the upper troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 2399–2402, 1999.
- Fiedler, V., Dal Maso, M., Boy, M., Aufmhoff, H., Hoffmann, J., Schuck, T., Birmili, W., Hanke, M., Uecker, J., Arnold, F., und Kulmala, M.: The contribution of sulphuric acid to atmospheric particle formation and growth: A comparison between boundary layers in Northern and Central Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1773–1785, 2005.
- Fitzgerald, J. W.: Marine aerosols: A review, *Atmos. Environ.*, 25A, 533–545, 1991.
- Fitzgerald, J. W., Hoppel, A., und Gelbard, F.: A one-dimensional sectional model to simulate multicomponent aerosol dynamics in the marine boundary layer. 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, 103, 16 085–16 102, 1998a.
- Fitzgerald, J. W., Marti, J. J., Hoppel, A., Frick, G. M., und Gelbard, F.: A one-dimensional sectional model to simulate multicomponent aerosol dynamics in the marine boundary layer. 2. Model application, *J. Geophys. Res.*, 103, 16 103–16 117, 1998b.
- Fouquart, Y. und Bonnel, B.: Computations of solar heating of the earth's atmosphere: A new parameterisation, *Beitr. Phys. Atmos.*, 53, 35–62, 1980.
- Friedlander, S. K.: Smoke, dust and haze. Fundamentals of aerosol behavior., John Wiley & Sons, New York, 1977.
- Fromm, M., Bevilacqua, R., Servranckx, R., Rosen, J., Thayer, J. P., Herman, J., und Larko, D.: Pyrocumulonimbus injection of smoke to the stratosphere: Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3–4 August 1998, *J. Geophys. Res.*, 110, doi:10.1029/2004JD005350, 2005.
- Fu, R., Hu, Y., und et al., J. W.: Short circuit of water vapor and polluted air to the global stratosphere by convective transport over the Tibetan Plateau, *Proc. Nat. Acad. Sci.*, 103, 5664–5669, 2006.
- Fuchs, N. A.: The mechanics of aerosols, Pergamon Press, Oxford, 1964.
- Fuchs, N. A. und Sutugin, A. G.: High-dispersed aerosol, Topics in Current Aerosol Research (Part 2), G. M. Hidy and J. R. Brock (Eds.), Pergamon, New York, 1971.
- Ganzeveld, L., Lelieveld, J., und Roelofs, G.-J.: Dry deposition parameterization of sulfur oxides in a chemistry and general circulation model, *J. Geophys. Res.*, 103, 5679–5694, 1998.
- Gelbard, F.: Modelling multicomponent aerosol particle growth by vapor condensation, *Aerosol Sci. Tech.*, 12, 399–412, 1990.
- Gelbard, F., Tambour, Y., und Seinfeld, J. H.: Sectional representations for simulating aerosol dynamics, *J. Colloid Interface Sci.*, 76, 541–556, 1980.
- Gelbard, F., Fitzgerald, J. W., und Hoppel, A.: A one-dimensional sectional model to simulate multicomponent aerosol dynamics in the marine boundary layer. 3. Numerical methods and comparison with exact solutions, *J. Geophys. Res.*, 103, 16 119–16 132, 1998.
- Gerding, M., Baumgarten, G., Blum, U., Thayer, J. P., Fricke, K.-H., Neuber, R., und Fiedler, J.: Observation of an unusual mid-stratospheric aerosol layer in the Arctic: Possible sources and implications for polar vortex dynamics, *Annales Geophys.*, 21, 1057–1069, 2003.

- Gottelman, A., Kinnison, D. E., Dunkerton, T. J., und Brasseur, G. P.: Impact of monsoon circulations on the upper troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2004JD004878, 2004.
- Ghan, S. J. und Schwartz, S. E.: Aerosol properties and processes: A path from field and laboratory measurements to global climate models, *Bull. Am. Meteor. Soc.*, 88(7), 1059–1083, doi:10.1175/BAMS-88-7-1059, 2007.
- Ghan, S. J., Easter, R. C., Chapman, E. G., Abdul-Razzak, H., Zhang, Y., Leung, L. R., Laulainen, N. S., Saylor, R. D., und Zaveri, R. A.: A physically based estimate of radiative forcing by anthropogenic sulfate aerosol, *J. Geophys. Res.*, 106, 5279–5293, 2001a.
- Ghan, S. J., Easter, R. C., Hudson, J., und Breon, F.-M.: Evaluation of aerosol indirect radiative forcing in MIRAGE, *J. Geophys. Res.*, 106, 5317–5334, 2001b.
- Giauque, W. F., Hornung, E. W., Kunzler, J. E., und Rubin, T. R.: The thermodynamic properties of aqueous sulfuric acid solutions and hydrates from 15 to 300 K, *J. Am. Chem. Soc.*, 82, 62–70, 1960.
- Giorgetta, M. A. und Bengtsson, L.: Potential role of the quasi-biennial oscillation in the stratosphere-troposphere exchange as found in water vapor in general circulation model experiments, *J. Geophys. Res.*, 104, 6003–6019, 1999.
- Giorgetta, M. A., Manzini, E., und Roeckner, E.: Forcing of the quasi-biennial oscillation from a broad spectrum of atmospheric waves, *Geophys. Res. Lett.*, 29, doi:10.1029/2001GL014756, 2002.
- Giorgetta, M. A., Manzini, E., Roeckner, E., Esch, M., und Bengtsson, L.: Climatology and forcing of the quasi-biennial oscillation in the MAECHAM5 model, *J. Climate*, 19, 3882–3901, 2006.
- Glaze, L. S., Baloga, S. M., und Wilson, L.: Transport of atmospheric water vapor by volcanic eruptions, *J. Geophys. Res.*, 102, 6099–6108, 1997.
- Gmitro, J. I. und Vermeulen, T.: Vapor-liquid equilibria for aqueous sulfuric acid, *AIChE J.*, 10, 740–746, 1964.
- Goff, J. A.: Saturation pressure of water on the new Kelvin temperature scale, *Transactions of the American society of heating and ventilating engineers*, 347–354, presented at the semi-annual meeting of the American society of heating and ventilating engineers, Murray Bay, Que. Canada, 1957.
- Gong, S., Barrie, L. A., Blanchet, J.-P., von Salzen, K., Lohmann, U., Lesins, G., Spacek, L., Zhang, L., Girard, E., Lin, H., Leaitch, R., Leighton, H., Chylek, P., und Huang, P.: Canadian Aerosol Module: A size-segregated simulation of atmospheric aerosol processes for climate and air quality models 1. Model development, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2001JD002002, 2003.
- Gong, S. L. und Barrie, L. A.: Simulating the impact of sea salt on global nss sulphate aerosols, *J. Geophys. Res.*, 108, 10.1029/2002JD003 181, 2003.
- Graf, H.-F.: The complex interaction of aerosols and clouds, *Science*, 303, 1309–1311, 2004.
- Graf, H.-F., Feichter, J., und Langmann, B.: Volcanic sulfur emissions: Estimates of source strength and its contribution to the global sulfate distribution, *J. Geophys. Res.*, 102, 727–738, 1997.
- Graf, H.-F., Langmann, B., und Feichter, J.: The contribution of Earth degassing to the atmospheric sulfur budget, *Chemical Geology*, 147, 131–145, 1998.
- Grant, W., Browell, E. V., Long, C. S., und Stowe, I. I.: Use of volcanic aerosols to study the tropical stratospheric reservoir, *J. Geophys. Res.*, 101, 3973–3988, 1996.
- Gras, J. L. und Michael, C. G.: Measurements of the stratospheric aerosol particle size distribution, *J. Applied Meteorol.*, 18, 855–860, 1979.
- Gray, L. J.: A model study of the influence of the quasi-biennial oscillation on trace gas distributions in the middle and upper stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 105, 4539–4551, 2000.

- Gray, L. J. und Chipperfield, M. P.: On the interannual variability of trace gases in the middle atmosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 933–936, 1990.
- Gray, L. J. und Pyle, J. A.: A two-dimensional model of the quasi-biennial oscillation in ozone, *J. Atmos. Sci.*, 46, 203–220, 1989.
- Gray, L. J. und Russell III, J. M.: Interannual variability of trace gases in the subtropical winter stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, 56, 977–993, 1999.
- Greenspan, L.: Humidity fixed points of binary saturated aqueous solutions., *Journal of Research of the National Bureau of Standards A. Physics and Chemistry*, 81, 89–96, 1977.
- Grooß, J.-U.: Modelling of stratospheric chemistry based on HALOE/UARS satellite data, Dissertation, Johannes Gutenberg Universität Mainz, 1996.
- Grooß, J.-U., Brühl, C., und Peter, T.: Impact of aircraft emissions on tropospheric and stratospheric ozone. Part I: Chemistry and 2-D model results, *Atmos. Environ.*, 32, 3173–3184, 1998.
- Guo, S., G. B., Rose, W., Watson, I., und Prata, A.: Re-evaluation of SO₂ release of the June 15, 1991 Pinatubo eruption using ultraviolet and infrared satellite sensors, *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 5, doi:10.1029/2003GC000654, 2004.
- Halmer, M. M., Schmincke, H.-U., und Graf, H.-F.: The annual volcanic gas input into the atmosphere, in particular into the stratosphere: A global data set for the past 100 years, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 115, 511–528, 2002.
- Hamill, P., Kiang, C. S., und Cadle, R. D.: The nucleation of H₂SO₄ – H₂O solution particles in the stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, 34, 150–162, 1977a.
- Hamill, P., Toon, O. B., und Kiang, C. S.: Microphysical processes affecting stratospheric aerosol particles, *J. Atmos. Sci.*, 34, 1104–1119, 1977b.
- Hamill, P., Tabazadeh, A., Kinne, S., Toon, O. B., und Turco, R. P.: On the growth of ternary system HNO₃/H₂SO₄/H₂O aerosol particles in the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 753–756, 1996.
- Hamill, P., Jensen, E. J., Russel, P. B., und Bauman, J. J.: The life cycle of stratospheric aerosol particles, *Bull. Am. Meteor. Soc.*, 78, 1395–1410, 1997.
- Hansen, J. E. und Travis, L. D.: Light scattering in planetary atmospheres, *Space Sci. rev.*, 16, 527–610, 1974.
- Hanson, D. R. und Ravishankara, A. R.: Reactive uptake of ClONO₂ onto sulfuric acid due to reaction with HCl and H₂O, *J. Phys. Chem.*, 98, 5728–5735, 1994.
- Hanson, D. R., Ravishankara, A. R., und Solomon, S.: Heterogeneous reactions in sulfuric acid aerosols: A framework for model calculations, *J. Geophys. Res.*, 99, 3615–3630, 1994.
- Hasebe, F.: Quasi-biennial oscillations of ozone and diabatic circulation in the equatorial stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, 51, 1994.
- Hayes, D. M., Ferry, G. V., Oberbeck, V. R., und Farlow, N. H.: Reactivity of stratospheric aerosols in laboratory environments, Paper presented at AGU Spring Mtg., Toronto, Canada, May 22-27, 1980.
- Haynes, P.: Stratospheric dynamics, *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 37, 263–293, 2005.
- Heist, R. H. und Reiss, H.: Hydrates in supersaturated binary sulfuric acid–water vapor, *J. Chem. Phys.*, 61, 561–585, 1974.
- Hervig, M. E. und Deshler, T.: Evaluation of aerosol measurements from SAGE II, HALOE, and balloonborne optical particle counters, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD000703, 2002.

- Herzog, M., Weisenstein, D. K., und Penner, J. E.: A dynamic aerosol module for global chemical transport models: Model description, *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2003JD004405, 2004.
- Hines, C. O.: Doppler-spread parameterization of gravity wave momentum deposition in the middle atmosphere, 2, Broad and quasi-monochromatic spectra, and implementation, *J. Atmos. Terr. Phys.*, 59, 387–400, 1997.
- Hitchman, M. H., McKay, M., und Trepte, C. R.: A climatology of stratospheric aerosol, *J. Geophys. Res.*, 99, 20 689–20 700, 1994.
- Hofmann, D. J.: Increase in the stratospheric background sulfuric acid aerosol mass in the past 10 years, *Science*, 248, 996–1000, 1990.
- Hofmann, D. J.: Aircraft sulphur emissions, *Nature*, 349, 659–659, 1991.
- Hofmann, D. J. und Rosen, J. M.: On the background stratospheric aerosol layer, *J. Atmos. Sci.*, 38, 168–181, 1981.
- Hofmann, D. J. und Rosen, J. M.: Stratospheric sulfuric acid fraction and mass estimate for the 1982 volcanic eruption of El Chichón, *Geophys. Res. Lett.*, 10, 313–316, 1983.
- Hofmann, D. J. und Solomon, S.: Ozone destruction through heterogeneous chemistry following the eruption of El Chichon, *J. Geophys. Res.*, 94, 5029–5041, 1989.
- Hofmann, D. J., Rosen, J. M., Pepin, T. J., und Pinnick, R. G.: Stratospheric aerosol measurements I: Time variations at northern midlatitudes, *J. Atmosph. Sci.*, 32, 1446–1456, 1975.
- Hofmann, D. J., Kiernan, J. M. R. J. M., und Laby, J.: Stratospheric aerosol measurements IV: Global time variations of the aerosol burden and source considerations, *J. Atmos. Sci.*, 33, 1782–1788, 1976.
- Hofmann, D. J., Rosen, J. M., Reiter, R., , und Jäger, H.: Lidar- and balloon-borne particle counter comparisons following recent volcanic eruptions, *J. Geophys. Res.*, 88, 3777–3782, 1983.
- Holton, J. R. und Tan, H.-C.: The influence of the equatorial quasi-biennial oscillation on the global circulation at 50 mb, *J. Atmos. Sci.*, 37, 2200–2208, 1980.
- Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglass, A. R., Rood, R. R., und Pfister, L.: Stratospheric-tropospheric exchange, *Rev. Geophys.*, 33, 403–439, 1995.
- Horowitz, L. W., Walters, S., Mauzerall, D. L., Emmons, L. K., Rasch, P. J., Granier, C., Tie, X. X., Lamarque, J. F., Schultz, M. G., Orlando, G. S., und Brasseur, G. P.: A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, Version 2, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002853, 2003.
- IPCC: Emissions scenarios, Special Report of the IPCC third assessment, Working Group III, 2000a.
- IPCC: Aviation and the Global Atmosphere, Special Report of the IPCC third assessment, Edited by J. E. Penner, D. H. Lister, D. J. Griggs, D. J. Dokken and M. McFarland, first released for the 6th Conference of the Parties to the United Nations Framework Convention on Climate Change, The Hague, Netherlands, 13–24 November, 2000b.
- IPCC: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.), Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 996 pp., 2007.
- Jacobson, M. Z.: Development and application of a new air pollution modelling system - Part II. Aerosol module structure and design, *Atmos. Environ.*, 31, 131–144, 1997a.

- Jacobson, M. Z.: Development and application of a new air pollution modelling system - Part III. Aerosol-phase simulations, *Atmos. Environ.*, 31, 587–606, 1997b.
- Jacobson, M. Z.: Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols, *Nature*, 409, 695–697, 2001.
- Jacobson, M. Z.: Fundamentals of atmospheric modeling, Cambridge University Press, Cambridge, 2 edn., 68 pp., 2005.
- Jacobson, M. Z. und Turco, R. P.: Simulating condensational growth, evaporation, and coagulation of aerosols using a combined moving and stationary size grid, *Aerosol Sci Technol.*, 22, 73–92, 1995.
- Jacobson, M. Z., Turco, R. P., Jensen, E. J., und Toon, O. B.: Modeling coagulation among particles of different composition and size, *Atmos. Environ.*, 28, 1327–1338, 1994.
- Jaeger-Voirol, A. und Mirabel, P.: Nucleation rate in a binary mixture of sulfuric acid and water vapor, *J. Chem. Phys.*, 92, 32 518–35 210, 1988.
- Jaeger-Voirol, A., Mirabel, P., und Reiss, H.: Hydrates in supersaturated binary sulfuric acid–water vapor: A reexamination, *J. Chem. Phys.*, 87, 4849–4852, 1987.
- Jöckel, P., Sander, R., Kerkweg, A., Tost, H., und Lelieveld, J.: Technical Note: The Modular Earth Submodel System (MESSy) - a new approach towards Earth System Modeling, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 433–444, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/5/433/2005/>, 2005.
- Junge, C. E., Chagnon, C. W., und Manson, J. E.: Stratospheric aerosols, *J. Meteorol.*, 18, 81–108, 1961.
- Kanakidou, M., Seinfeld, J. H., Pandis, S. N., Barnes, I., Dentener, F. J., Facchini, M. C., Van Dingenen, R., Ervens, B., Nenes, A., Nielsen, C. J., Swietlicki, E., Putaud, J. P., Balkanski, Y., Fuzzi, S., Horth, J., Moortgat, G. K., Winterhalter, R., Myhre, C. E. L., Tsigaridis, K., Vignati, E., Stephanou, E. G., und Wilson, J.: Organic aerosol and global climate modelling: A review, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1053–1123, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/5/1053/2005/>, 2005.
- Kärcher, B. und Lohmann, U.: A Parameterization of cirrus cloud formation: Homogeneous freezing including effects of aerosol size, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD001429, 2002.
- Kärcher, B., Hendricks, J., und Lohmann, U.: Physically based parameterization of cirrus cloud formation for use in global atmospheric models, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2005JD006219, 2006.
- Kasten, F.: Falling speed of aerosol particles., *J. Appl. Meteorol.*, 7, 944–947, 1968.
- Kent, G., Wang, P.-H., McCormick, M., und Skeens, K.: Multiyear Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II measurements of upper tropospheric aerosol characteristics, *J. Geophys. Res.*, 100, 13 875–13 899, 1995.
- Kent, G. S. und McCormick, M. P.: SAGE and SAM-II measurements of global stratospheric aerosol optical depth and mass loading, *J. Geophys. Res.*, 84, 5303–5314, 1984.
- Kerminen, V.-M. und Kulmala, M.: Analytical formulae connecting the real and the apparent nucleation rate and the nuclei number concentration for atmospheric nucleation events, *J. Aerosol Sci.*, 33, 609–622, 2002.
- Kerminen, V.-M., Pirjola, L., und Kulmala, M.: How significantly does coagulation limit atmospheric particle production, *J. Geophys. Res.*, 106, 24 119–24 125, 2001.
- Kerminen, V.-M., Anttila, T., Lehtinen, K. E. J., und Kulmala, M.: Parametrization for atmospheric new-particle formation: application to a system involving sulfuric acid and condensable water-soluble organic vapors, *Aerosol Sci. Tech.*, 38, 1001–1008, 2004a.
- Kerminen, V.-M., Lehtinen, K. E. J., Anttila, T., und Kulmala, M.: Dynamics of atmospheric nucleation mode particles: A timescale analysis, *Tellus*, 56, 135–146, 2004b.

- Kettle, A. und Andreae, M.: Flux of the dimethylsulfide from the oceans: A comparison of updated data sets and flux models, *J. Geophys. Res.*, 105, 26 793–26 808, 2000.
- Kinnersley, J. S.: Seasonal Asymmetry of the Low- and Middle-Latitude QBO Circulation Anomaly, *J. Atmos. Sci.*, 56, 1140–1153, 1999.
- Kirchner, I., Stenchikov, G. L., Graf, H.-F., Robock, A., und Antuña, J. C.: Climate model simulation of winter warming and summer cooling following the 1991 Mount Pinatubo volcanic eruption, *J. Geophys. Res.*, 104, 19 039–19 056, 1999.
- Kley, D., Stone, E., Henderson, W., Drummond, J., Harrop, W., Schmeltekopf, A., Thompson, T., und Winkler, R.: In situ measurements of the mixing ratio of water vapor in the stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, 36, 2513–2524, 1979.
- Kloster, S.: DMS cycle in the ocean–atmosphere system and its response to anthropogenic perturbations, *Berichte zur Erdsystemforschung* No. 19, Max–Planck–Institut für Meteorologie Hamburg, 2006.
- Kloster, S., Feichter, J., Maier-Reimer, E., Six, K. D., Stier, P., und Wetzol, P.: DMS cycle in the marine ocean–atmosphere system - A global model study, *Biogeosciences*, pp. 29–51, 2006.
- Köhler, H.: The nucleus in the growth of hygroscopic droplets, *Trans. Faraday Soc.*, 32, 1152–1161, 1936.
- Kojima, T., Buseck, P. R., Wilson, J. C., Reeves, J. M., und Mahoney, M. J.: Aerosol particles from tropical convective systems: Cloud tops and cirrus anvils, *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2003JD004504, 2004.
- Kokkola, H., Korhonen, H., Lehtinen, K. E. J., Makkonen, R., Asmi, A., Järvenoja, S., Anttila, T., Partanen, A.-I., Kulmala, M., Järvinen, H., Laaksonen, A., und Kerminen, V.-M.: SALSA - a Sectional Aerosol module for Large Scale Applications, *Atmos. Chem. Phys. Discussions*, 7, 17 705–17 739, URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/7/17705/2007/>, 2007.
- Korhonen, H., Lehtinen, K. E. J., Pirjola, L., Napari, I., und Vehkamäki, H.: Simulation of atmospheric nucleation mode: A comparison of nucleation models and size distribution representations, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD003305, 2003a.
- Korhonen, H., Napari, I., Timmreck, C., Vehkamäki, H., Pirjola, L., Lehtinen, K. E. J., Lauri, A., und Kulmala, M.: Heterogeneous nucleation as a potential sulphate coating mechanism of atmospheric mineral dust particles and implications of coated dust on new particle formation, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2003JD003553, 2003b.
- Korhonen, H., Lehtinen, K. E. J., und Kulmala, M.: Multicomponent aerosol dynamics model UHMA: model development and validation, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 757–771, 2004.
- Korhonen, P., Kulmala, M., Laaksonen, A., Viisanen, Y., McGraw, R., und Seinfeld, J.: Ternary nucleation of H₂SO₄, NH₃, and H₂O in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 104, 26 349–26 353, 1999.
- Kritz, M. A.: Formation mechanism of stratospheric aerosol, Yale University, New Haven, Conn., 1975.
- Krueger, A. J., Walter, L. S., Bhartia, P. K., Schnetzler, C. C., Krotkov, N. A., Sprod, I., und Bluth, G. J. S.: Volcanic sulfur dioxide measurements from the total ozone mapping spectrometer instrument, *J. Geophys. Res.*, 100, 14 057–14 076, 1995.
- Kulmala, M. und Laaksonen, A.: Binary nucleation of water/sulfuric acid system: Comparison of classical theories with different H₂SO₄ saturation vapor pressures, *J. Chem. Phys.*, 93, 696–701, 1990.
- Kulmala, M., Laaksonen, A., und Gershick, S. L.: The self-consistency correction to homogeneous nucleation, *J. Aerosol Sci.*, 23, 309–312, 1992.
- Kulmala, M., Laaksonen, A., und Pirjola, L.: Parameterizations for sulfuric acid/water nucleation rates, *J. Geophys. Res.*, 103, 8301–8307, 1998.

- Kulmala, M., Pirjola, L., und Mäkelä, J. M.: Stable sulphate clusters as a source of new atmospheric particles, *Nature*, 404, 66–69, 2000.
- Kulmala, M., Dal Maso, M., Mäkelä, J. M., Pirjola, L., Väkevä, M., Aalto, P., Miikkulainen, P., Hämeri, K., und O'Dowd, C.: On the formation, growth and composition of nucleation mode particles, *Tellus*, 53, 479–490, 2001.
- Kulmala, M., Kerminen, V.-M., Anttila, T., Laaksonen, A., und O'Dowd, C.: Organic aerosol formation via sulphate cluster activation, *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2003JD003961, 2004a.
- Kulmala, M., Laakso, L., Lehtinen, K. E. J., Riipinen, I., Dal Maso, M., Anttila, T., Kerminen, V.-M., Hörrak, U., Vana, M., und Tammet, H.: Initial steps of aerosol growth, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 2553–2560, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/4/2553/2004/>, 2004b.
- Kulmala, M., Vehkamäki, H., Petäjä, T., Dal Maso, M., Lauri, A., Kerminen, V.-M., Birmili, W., und McMurry, P. H.: Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: A review of observations, *J. Aerosol Sci.*, 35, 143–176, 2004c.
- Laaksonen, A. und Kulmala, M.: Homogeneous heteromolecular nucleation of sulfuric acid and water vapors in stratospheric conditions: A theoretical study of the effect of hydrate interaction, *J. Aerosol Sci.*, 22, 779–787, 1991.
- Laaksonen, A. und Oxtoby, D. W.: Gas–liquid nucleation of nonideal binary mixtures. I. A density functional study, *J. Chem. Phys.*, 102, 5803–5810, doi:10.1063/1.469312, 1995.
- Labitzke, K. und McCormick, M. P.: Stratospheric temperature increases due to Pinatubo aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 19, doi:10.1029/91GL02940, 1992.
- Lacis, A., Hansen, J., und Sato, M.: Climate forcing by stratospheric aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 1607–1610, 1992.
- Lacis, A. A. und Mishchenko, M. I.: Climate forcing, climate sensitivity, and climate response: A radiative modelling perspective on atmospheric aerosols, *Aerosol Forcing of Climate* [Charlson, R. J. and J. Heintzenberg (eds.)], J. Wiley, Chichester, pp. 11–42, 1995.
- Langmann, B., Varghese, S., Marmer, E., Vignati, E., Wilson, J., Stier, P., und O'Dowd, C.: Aerosol distribution over Europe: A model evaluation study with detailed aerosol microphysics, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 17 893–17 926, URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/7/17893/2007/>, 2007.
- Lauer, A., Hendricks, J., Ackermann, I., Schell, B., Hass, H., und Metzger, S.: Simulating aerosol microphysics with the ECHAM/MADE GCM - Part I: Model description and comparison with observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 3251–3276, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/5/3251/2005/>, 2005.
- Lazrus, A. L. und Gandrud, B. W.: Stratospheric aerosol, *J. Geophys. Res.*, 79, 3424–3431, 1974.
- Lee, S.-H., Reeves, J. M., Wilson, J. C., Hunton, D. E., Viggiano, A. A., Miller, T. M., Ballenthin, J. O., und Lait, L. R.: Particle formation by ion nucleation in the upper troposphere and lower stratosphere, *Science*, 301, 1886–1889, 2003.
- Lehtinen, K. E. J., Korhonen, H., Dal Maso, M., und Kulmala, M.: On the concept of condensation sink diameter, *Boreal Envi. Res.*, pp. 405–411, 2003.
- Lelieveld, J., Brühl, C., Jöckel, P., Steil, B., Crutzen, P. J., Fischer, H., Giorgetta, M. A., Hoor, P., Lawrence, M. G., Sausen, R., und Tost, H.: Stratospheric dryness: model simulations and satellite observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1313–1332, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/7/1313/2007/>, 2007.
- Li, J. und Boer, G. J.: The continuity equation for the stratospheric aerosol and its characteristic curves, *J. Atmos. Sci.*, 57, 442–451, 2000.

- Lin, S. J. und Rood, R. B.: Multidimensional flux form semi-Lagrangian transport, *Mon. Wea. Rev.*, 124, 2046–2068, 1996.
- Liu, X. und Penner, J. E.: Effect of Mount Pinatubo $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ aerosol on ice nucleation in the upper troposphere using a global chemistry and transport model, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD000455, 2002.
- Liu, X., E., P. J., und M., H.: Global modeling of aerosol dynamics: Model description, evaluation, and interactions between sulfate and nonsulfate aerosols, *J. Geophys. Res.*, 110, 10.1029/2004JD005674, 2005.
- Lohmann, U. und Roeckner, E.: Design and performance of a new cloud microphysics scheme developed for the ECHAM4 general circulation model, *Clim. Dyn.*, 12, 557–572, 1996.
- Lohmann, U., Stier, P., Hoose, C., Ferrachat, S., Kloster, S., Roeckner, E., und Zhang, J.: Cloud microphysics and aerosol indirect effects in the global climate model ECHAM5-HAM, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3425–3446, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/7/3425/2007/>, 2007.
- Lovejoy, E. R., Curtius, J., und Froyd, K. D.: Atmospheric ion-induced nucleation of sulfuric acid and water, *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2003JD004460, 2004.
- Lucas, D. D. und Prinn, R. G.: Tropospheric distributions of sulfuric acid–water vapor aerosol nucleation rates from dimethylsulfide oxidation, *Geophys. Res. Lett.*, 30, doi:10.1029/2003GL018370, 2003.
- Luderer, G., Trentmann, J., Winterrath, T., Textor, C., Herzog, M., Graf, H.-F., und Andreae, M. O.: Modeling of biomass smoke injection into the lower stratosphere by a large forest fire (Part II): Sensitivity studies, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5261–5277, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/6/5261/2006/>, 2006.
- Lurmann, F. W., Wexler, A., Pandis, S. N., Mussarra, S., Kumar, N., und Seinfeld, J. H.: Modeling urban and regional aerosols - II Application to California's south coast air basin, *Atmos. Environ.*, 31, 2695–2715, 1997.
- Lynch, D. K., Sassen, K., Starr, D. O., und Stevens, G.: *Cirrus*, Oxford Univ. Press, New York, 2002.
- Ma, X. und von Salzen, K.: Dynamics of the sulphate aerosol size distribution on a global scale, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2005JD006620, 2006.
- Manzini, E., Giorgetta, M. A., Esch, M., Kornblueh, L., und Roeckner, E.: The influence of sea surface temperatures on the northern winter stratosphere: Ensemble simulations with the MAECHAM5 model, *J. Climate*, 19, 3863–3881, 2006.
- Marti, J., Jefferson, A., Cai, X. P., Richert, C., McMurry, P., und Eisele, F.: H_2SO_4 vapor pressure of sulfuric acid and ammonium sulfate solutions, *J. Geophys. Res.*, 102, 3725–3735, 1997.
- Maxwell, J. C.: in *Encyclopedia Britannica*, 82, 2, 1877.
- Maynard, A. D. und Maynard, R. L.: A derived association between ambient aerosol surface area and excess mortality using historic time series data, *Atmos. Environ.*, 36, 5561–5567, 2002.
- McCormick, M. P. und Veiga, R. E.: SAGE II measurements of early Pinatubo aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 155–158, 1992.
- McCormick, M. P., Thomason, L. W., und Trepte, C. R.: Atmospheric effects of the Mt. Pinatubo eruption, *Nature*, 373, 399–404, 1995.
- McDonald, J. E.: Saturation vapor pressures over supercooled water, *J. Geophys. Res.*, 70, 1553–1554, 1965.
- McIntyre, M. E. und Palmer, T. N.: The "surf zone" in the stratosphere, *J. Atmos. Terr. Phys.*, 46, 825–849, 1984.
- Meixner, F. X.: The vertical sulfur dioxide distribution at the tropopause level, *J. Atmos. Chem.*, 2, 175–189, 1984.
- Meng, Z. und Seinfeld, J. H.: Time scales to achieve atmospheric gas–aerosol equilibrium for volatile species, *Atmos. Environ.*, 30, 2889–2900, 1996.

- Mlawer, E. J., Taubman, S. J., Brown, P. D., Iacono, M. J., und Clough, S. A.: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave, *J. Geophys. Res.*, 102, 16 663–16 682, 1997.
- Möhler, O. und Arnold, F.: Gaseous sulfuric acid and sulfur dioxide measurements in the arctic troposphere and lower stratosphere: Implications for hydroxyl radical abundances, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 1763–1766, 1992.
- Mote, P. W., Rosenlof, K. H., McIntyre, M. E., Carr, E. S., Gille, J. C., Holton, J. R., Kinnersley, J. S., Pumphrey, H. C., Russell III, J. M., und Waters, J. W.: An atmospheric tape recorder: The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor, *J. Geophys. Res.*, 101, 3989–4006, 1996.
- Napari, I., Noppel, M., Vehkamäki, H., und Kulmala, M.: An improved model for ternary nucleation of sulfuric-acid-ammonia water, *J. Chem. Phys.*, 116, 4221–4227, 2002.
- Naujokat, B.: An update of the observed quasi-biennial oscillation of the stratospheric winds over the tropics, *J. Atmos. Sci.*, 43, 1873–1877, 1986.
- Neu, J. L., Sparling, L. C., und Plumb, R. A.: Variability of the subtropical "edges" in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002706, 2003.
- Nezvorov, A., Zuev, V., Burlakov, V., und El'nikov, A.: Climatology of Background Stratospheric Aerosol Over Siberian Regions According to LIDAR Measurement Data, Proceedings of the 22nd International Laser Radar Conference (ILRC 2004), 12–16 July 2004, Matera, Italy. Edited by G. Pappalardo and A. Amodeo, European Space Agency SP-561 Paris, 601 pp., Bibliographic Code: 2004ESASP.561..601N, 2004.
- Nightingale, P., Malin, G., Law, C., Watson, A., Liss, P., Liddicoat, M., Boutin, J., und Upstill-Goddard, R.: In situ evaluation of air-sea gas exchange parameterizations using novel conservative and volatile tracers, *Global Biogeochem. Cycles*, 14, 373–387, 2000.
- Nilsson, E. D., Rannik, U., Kulmala, M., Buzorius, G., und O'Dowd, C. D.: Effects of continental boundary layer evolution, convection, turbulence and entrainment, on aerosol formation, *Tellus*, 53B, 441–461, 2001.
- Noppel, M., Vehkamäki, H., und Kulmala, M.: An improved model for hydrate formation in sulfuric-acid water nucleation, *J. Chem. Phys.*, 116, 218–228, 2002.
- Nordeng, T. E.: Extended versions of the convective parameterization scheme at ECMWF and their impact on the mean and transient activity of the model in the tropics, Techn. Memorandum 206, ECMWF, Reading, UK, 1994.
- O'Dowd, C. D., Yoon, Y. J., Junkermann, W., Aalto, P., Kulmala, M., Lihavainen, H., und Viisanen, Y.: Airborne measurements of nucleation mode particles I: Coastal nucleation and growth rates, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1491–1501, 2007.
- Oman, L., Robock, A., Stenchikov, G. L., Thordarson, T., Koch, D., Shindell, D. T., und Gao, C.: Modeling the distribution of the volcanic aerosol cloud from the 1783–1784 Laki eruption, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2005JD006899, 2006.
- O'Sullivan, D. und Chen, P.: Modeling the quasi biennial oscillation's influence on isentropic tracer transport in the subtropics, *J. Geophys. Res.*, 101, 6811–6821, 1996.
- PARTS: Particles in the upper troposphere and lower stratosphere and their role in the climate system (PARTS): Detailed report, related to overall project duration, URL <http://parts.dkrz.de>, European Commission, European Research Framework 5, Edited by H-F. Graf, 2004.
- Pham, M., Muller, J.-F., Brasseur, G., Granier, C., und Megie, G.: A three-dimensional study of the tropospheric sulfur cycle, *J. Geophys. Res.*, 100, 26 061–26 092, 1995.
- Phillips, W. F.: Drag on a small sphere moving through a gas, *Phys. Fluids*, 18, 1089–1093, 1975.

- Pinnick, R. G., Rosen, J. M., und Hofmann, D. J.: Stratospheric aerosol measurements, 3, Optical model calculations, *J. Atmos. Sci.*, 33, 304, 1976.
- Pinto, J. P., Turco, R. P., und Toon, O. B.: Self-limiting physical and chemical effects in volcanic eruption clouds, *J. Geophys. Res.*, 94, 11 165–11 174, 1989.
- Pirjola, L. und Kulmala, M.: Modelling the formation of $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ particles in rural, urban and marine conditions, *Atmos. Res.*, 46, 321–347, 1998.
- Pirjola, L. und Kulmala, M.: Development of particle size and composition distribution with aerosol dynamics model AEROFOR2, *J. Aerosol Sci.*, 31, 936–937, 2000.
- Pirjola, L., Laaksonen, A., Aalto, P., und Kulmala, M.: Sulphate aerosol formation in the Arctic boundary layer, *J. Geophys. Res.*, 103, 8309–8322, 1998.
- Pitari, G., Mancini, E., Rizi, V., und Shindell, D. T.: Impact of future climate and emission changes on stratospheric aerosols and ozone, *J. Atmos. Sci.*, 59, 414–440, 2002.
- Plumb, R. A. und Bell, R. C.: A model of quasibiennial oscillation on an equatorial beta-plane, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 108, 335–352, 1982.
- Plumb, R. A., Waugh, D. W., Atkinson, R. J., Newman, P. A., Lait, L. R., Schoeberl, M. R., Browell, E. V., Simmons, A. J., und Loewenstein, M.: Intrusions into the lower stratospheric Arctic vortex during the winter of 1991–1992, *J. Geophys. Res.*, 99, 1089–1105, 1994.
- Polvani, L. M., Waugh, D., und Plumb, R. A.: On the subtropical edge of the stratospheric surf zone, *J. Atmos. Sci.*, 52, 1288–1309, 1995.
- Prata, A. J., Carn, S. A., Stohl, A., und Kerkmann, J.: Long range transport and fate of a stratospheric volcanic cloud from Soufrière Hills volcano, Montserrat, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5093–5103, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/7/5093/2007/>, 2007.
- Prather, M. J.: Catastrophic loss of stratospheric ozone in dense volcanic clouds, *J. Geophys. Res.*, 97, 10 187–10 191, 1992.
- Pruppacher, H. R. und Klett, J. D.: *Micropysics of clouds and precipitation*, D. Reidel, Dordrecht, 1979.
- Pueschel, R. F., Boering, K. A., Verma, S., Howard, S. D., Ferry, G. V., Goodman, J., Allen, D. A., und Hamill, P.: Soot aerosol in the lower stratosphere: pole-to-pole variability and contribution by aircraft, *J. Geophys. Res.*, 102, 13 113–13 118, 1997.
- Pyle, D. M., Battie, P. D., und Bluth, G. J. S.: Sulphur emissions to the stratosphere from explosive volcanic eruptions, *Bulletin of Volcanology*, 57, 663–671, 1996.
- Raes, F., Dingenen, R. V., Vignati, E., Wilson, J., Putaud, J. P., Seinfeld, J., und Adams, P.: Formation and cycling of aerosols in the global troposphere, *Atmos. Environ.*, 34(25), 4215–4240, 2000.
- Ramanathan, V., P. J. C., Kiehl, J. T., und Rosenfeld, D.: Aerosols, climate and the hydrological cycle, *Science*, 294, 2119–2124, 2001.
- Randall, C., Bevilacqua, R., Lumpe, J., und Hoppel, K.: Validation of POAM III aerosols: Comparison to SAGE II and HALOE, *J. Geophys. Res.*, 106, 27 525–27 536, 2001.
- Randel, W. J., Gille, J. C., Roche, A. E., Kumer, J. B., Mergenthaler, J. L., Waters, J. W., Fishbein, E. F., und Lahoz, W. A.: Stratospheric transport from the tropics to middle latitudes by planetary-wave mixing, *Nature*, 365, 533–535, 1993.
- Randel, W. J., Wu, F., Russell III, J. M., Roche, A., und Waters, J. W.: Seasonal cycles and QBO variations in stratospheric CH_4 and H_2O observed in UARS HALOE data, *J. Atmos. Sci.*, 55, 163–185, 1998.

- Randel, W. J., Wu, F., Swinbank, R., Nash, J., und O'Neill, A.: Global QBO circulation derived from UKMO stratospheric analyses, *J. Atmos. Sci.*, 56, 457–474, 1999.
- Randel, W. J., Wu, F., Oltmans, S. J., Rosenlof, K., und Nedoluha, G. E.: Interannual changes of stratospheric water vapor and correlations with tropical tropopause temperatures, *J. Atmos. Sci.*, 61, 2133–2148, 2004.
- Randel, W. J., Wu, F., Vömel, H., Nedoluha, G. E., und Forster, P.: Decreases in stratospheric water vapor after 2001: Links to changes in the tropical tropopause and the Brewer–Dobson circulation, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2005JD006744, 2006.
- Ravishankara, A. R.: Heterogeneous and multiphase chemistry in the troposphere, *Science*, 276, 1058–1065, 1997.
- Reiner, T. und Arnold, F.: Laboratory flow reactor measurements of the reaction $\text{SO}_3 + \text{H}_2\text{O} + \text{M} \rightarrow \text{H}_2\text{SO}_4 + \text{M}$: Implications for gaseous H_2SO_4 and aerosol formation in the plumes of jet aircraft, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 2659–2662, 1993.
- Reiss, H.: The kinetic of phase transitions in binary systems, *J. Chem. Phys.*, pp. 840–848, 1950.
- Reiter, E. R.: Stratospheric–tropospheric exchange processes, *Rev. Geophys. Space Phys.*, 13, 459–474, 1975.
- Rinsland, C. P., Gunson, M. R., Ko, M. K. W., Weisenstein, D. W., Zander, R., Abrams, M. C., Goldman, A., Sze, N. D., und Yue, G. K.: H_2SO_4 photolysis: A source of sulfur dioxide in the upper stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 1109–1112, 1995.
- Robock, A.: Volcanic eruptions and climate, *Rev. Geophys.*, 38, 191–219, 2000.
- Roeckner, E., Baueml, G., Bonaventura, L., Brokopf, R., Esch, M., Giorgetta, M., Hagemann, S., Kirchner, I., Kornblueh, L., Manzini, E., Rhodin, A., Schlese, U., Schulzweida, U., und Tompkins, A.: The atmospheric general circulation model ECHAM5 - Part I, MPI Report No. 349, 2003.
- Roeckner, E., Brokopf, R., Esch, M., Giorgetta, M., Hagemann, S., Kornblueh, L., Manzini, E., Schlese, U., und Schulzweida, U.: Sensitivity of simulated climate to horizontal and vertical resolution in the ECHAM5 atmosphere model, *J. Climate*, 19, 3771–3791, 2006.
- Rose, W. I., Bluth, G. J. S., und Watson, I. M.: Ice in volcanic clouds: When and where?, in prep., 2007.
- Rosen, J. M.: The vertical distribution of dust to 30 km, *J. Geophys. Res.*, 69, 4673–4676, 1964.
- Rosen, J. M.: The boiling point of stratospheric aerosols, *J. Applied Meteor.*, 10, 1044–1045, 1971.
- Rosen, J. M. und Hofmann, D. J.: Balloonborne measurements of condensation nuclei, *J. Appl. Meteorol.*, 16, 56–62, 1977.
- Rosen, J. M., Hofmann, D. J., und Laby, J.: Stratospheric aerosol measurements II: The worldwide distribution, *J. Atmosph. Sci.*, 32, 1457–1462, 1975.
- Rosenfeld, D., Fromm, M., Trentmann, J., Luderer, G., Andreae, M. O., und Servranckx, R.: The Chisholm firestorm: Observed microstructure, precipitation and lightning activity of a pyro-cumulonimbus, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 645–659, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/7/645/2007/>, 2007.
- Russel, P.B., J. M. L., Dutton, E. G., Pueschel, R. F., Reagan, J. A., Defoor, T. E., Box, M. A., Allen, D., Pilewskie, P., Herman, B. M., Kinne, S. A., und Hofmann, D. J.: Pinatubo and pre-Pinatubo optical–depth spectra: Mauna Loa measurements, comparisons, inferred particle size distributions, radiative effects, and relationship to Lidar data, *J. Geophys. Res.*, 98, 22 969–22 985, 1993.
- Russell, P. B., Livingston, J. M., Pueschel, R. F., Pollack, J. B., Brooks, S., Hamill, P., Hughes, J., Thomason, L., Stowe, L., Deshler, T., und Dutton, E.: Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol, derived from diverse measurements and analyses, *J. Geophys. Res.*, 101, 18 745–18 763, 1996.

- Sander, R., Kerkweg, A., Jöckel, P., und Lelieveld, J.: Technical Note: The new comprehensive atmospheric chemistry module MECCA, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 445–450, 2005.
- Sander, S. P., Friedl, R. R., Ravishankara, A. R., Golden, D. M., Kolb, C. E., Kurylo, M. J., Huie, R. E., Orkin, V. L., Molina, M. J., Moortgat, G. K., und Finlayson-Pitts, B. J.: *Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies*, National Aeronautics and Space Administration, Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, California, Evaluation Number 14, JPL Publication 02-25, 2003.
- Schlager, H. und Arnold, F.: Balloon-borne composition measurements of stratospheric negative ions and inferred sulfuric acid vapor abundances during the MAP/GLOBUS 1983 campaign, *Planet. Space Sci.*, 35, 693–701, 1987.
- Schoeberl, M. R., Duncan, B. N., Douglass, A. R., Waters, J., Livesey, N., Read, W., und Filipiak, M.: The carbon monoxide tape recorder, *Geophys. Res. Lett.*, 33, 10.1029/2006GL026178, 2006.
- Schoeberl, M. R., Douglass, A., Newman, P. A., Lait, L., Lary, D., Waters, J., Livesey, N., Froidevaux, L., Lambert, A., Read, W., Filipiak, M. J., und Pumphrey, H.: QBO and annual cycle variations in tropical lower stratosphere trace gases from HALOE and Aura MLS observations, *J. Geophys. Res.*, 113, doi:10.1029/2007JD008678, 2008.
- Schröder, F. und Ström, J.: Aircraft measurements of sub micrometer aerosol particles (> 7 nm) in the midlatitude free troposphere and tropopause, *Atmos. Res.*, 44, 333–356, 1997.
- Seigneur, C., Hudischewskyi, A. B., Seinfeld, J. H., Whitby, K. T., Whitby, E. R., Brock, J. R., und Barnes, H. M.: Simulation of aerosol dynamics: A comparative review of mathematical models, *Aerosol Sci Technol.*, 5, 205–222, 1986.
- Seinfeld, J. H.: *Atmospheric chemistry and physics of air pollution*, John Wiley, New York, 1986.
- Seinfeld, J. H. und Pandis, S. N.: *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change*, Wiley-Interscience, New York, 1998.
- Seol, D.-I. und Yamazaki, K.: QBO and Pinatubo signals in the mass flux at 100 hPa and stratospheric circulation, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 1641–1644, 1998.
- Sheridan, P. J., Brock, C. A., und Wilson, J. C.: Aerosol particles in the upper troposphere and lower stratosphere: Elemental composition and morphology of individual particles in northern mid-latitudes, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2587–2590, 1994.
- Shuckburgh, E., Norton, W., Iwi, A., und Haynes, P.: Influence of the quasi-biennial oscillation on isentropic transport and mixing in the tropics and subtropics, *J. Geophys. Res.*, 106, 14 327–14 337, 2001.
- Solomon, S., Portmann, R. W., Garcia, R. R., Thomason, L. W., Poole, L. R., und McCormick, M. P.: The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northern midlatitudes, *J. Geophys. Res.*, 101, 6713–6727, 1996.
- Spalding, D. B.: A novel finite-difference formulation for differential expressions involving both first and second derivatives, *Int. J. Num. Methods*, 4, 551, 1972.
- SPARC: *Stratospheric Processes and their Role in Climate (SPARC): Assessment of Stratospheric Aerosol Properties (ASAP)*, WCRP-124, WMO/TD No. 1295, SPARC Report No. 4, Edited by L. Thomason and T. Peter, 2006.
- Sparks, R. S. J., Bursik, M. I., Carey, S. N., Gilbert, J. S., Glaze, L. S., Siggurdsson, H., und Woods, A. W.: *Volcanic Plumes*, John Wiley and Sons, New York, 1997.
- Steele, H. M. und Hamill, P.: Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulfuric acid-water droplets in the stratosphere, *J. Aerosol Sci.*, 12, 517–528, 1981.

- Steil, B.: Modellierung der Chemie der globalen Strato- und Troposphäre mit einem drei-dimensionalen Zirkulationsmodell, Max-Planck-Institut für Meteorologie Hamburg, Examensarbeit 62, 1999.
- Steil, B., Brühl, C., Manzini, E., Crutzen, P. J., Lelieveld, J., Rasch, P. J., Roeckner, E., und Krueger, K.: A new interactive chemistry-climate model. 1. Present day climatology and interannual variability of the middle atmosphere using the model and 9 years of HALOE/UARS data., *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002971, 2003.
- Stenchikov, G. L., Kirchner, I., Robock, A., Graf, H.-F., Antuña, J. C., Grainger, R. G., Lambert, A., und Thomason, L.: Radiative forcing from the 1991 Mount Pinatubo volcanic eruption, *J. Geophys. Res.*, 103, 13 837–13 858, 1998.
- Stier, P., Feichter, J., Kinne, S., Kloster, S., Vignati, E., Wilson, J., Ganzeveld, L., Tegen, I., Werner, M., Balkanski, Y., Schulz, M., Boucher, O., Minikin, A., und Petzold, A.: The aerosol-climate model ECHAM5-HAM, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1125–1156, 2005.
- Stier, P., Feichter, J., Roeckner, E., Kloster, S., und Esch, M.: The evolution of the global aerosol system in a transient climate simulation from 1860 to 2100, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3059–3076, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/6/3059/2006/>, 2006.
- Stoddard, J. L., Jeffries, D. S., Lükewille, A., Clair, T. A., Dillon, P. J., Driscoll, C. T., Forsius, M., Johannessen, M., Kahl, J. S., Kellogg, J. H., Kemp, A., Mannio, J., Monteith, D. T., Murdoch, P. S., Patrick, S., Rebsdorf, A., Skjelkvåle, B. L., Stainton, M. P., Traaen, T., van Dam, H., Webster, K. E., Wieting, J., und Wilander, A.: Regional trends in aquatic recovery from acidification in North America and Europe, *Nature*, 401, 575–578, 1999.
- Stohl, A., Wernli, H., James, P., Bourqui, M., Forster, C., Liniger, M., Seibert, P., und Sprenger, M.: A new perspective of stratosphere-troposphere exchange, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 84, 1565–1573, 2003.
- Tabazadeh, A., Turco, R. P., Drdla, K., Jacobson, M. Z., und Toon, O. B.: A study of type I polar stratospheric cloud formation, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1619–1622, 1994a.
- Tabazadeh, A., Turco, R. P., und Jacobson, M. Z.: A model for studying the composition and chemical effects of stratospheric aerosols, *J. Geophys. Res.*, 98, 12 897–12 914, 1994b.
- Tabazadeh, A., Santee, M. L., Danilin, M. Y., Pumphrey, H. C., Newman, P. A., Hamill, P. J., und Mergenthaler, J. L.: Quantifying denitrification and its effect on ozone recovery, *Science*, 288, 1407–1411, 2000.
- Takigawa, M., Takahashi, M., und Akiyoshi, H.: Simulation of stratospheric sulfate aerosols using a Center for Climate System Research/National Institute for Environmental Studies atmospheric GCM with coupled chemistry 1. Nonvolcanic simulation, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD001007, 2002.
- Tanre, D., Geleyn, J.-F., und Slingo, J. M.: First results of the introduction of an advanced aerosol-radiation interaction in the ECMWF low resolution global model, in *Aerosols and Their Climatic Effects*, edited by H. Gerber and A. Deepak, Hampton, VA, 133–177, 1984.
- Textor, C., Graf, H.-F., Herzog, M., und Oberhuber, J. M.: Injection of gases into the stratosphere by explosive volcanic eruptions, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002987, 2003.
- Textor, C., Graf, H.-F., Timmreck, C., und Robock, A.: Emissions from volcanoes, Chapter 7 of *Emissions of Chemical Compounds and Aerosols in the Atmosphere*, eds. Claire Granier, Claire Reeves, and Paulo Artaxo, Kluwer, Dordrecht, 2004.
- Thomas, M. A.: Simulation of the climate impact of Mt. Pinatubo eruption using ECHAM5, Dissertation, Universität Hamburg, 2007.
- Thomason, L. W., Poole, L. R., und Deshler, T.: A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from Stratospheric Aerosol and Gas Experiments II measurements: 1984–1994, *J. Geophys. Res.*, 102, 8967–8976, 1997.

- Thomason, L. W., Burton, S. P., Luo, B.-P., und Peter, T.: SAGE II measurements of stratospheric aerosol properties at non-volcanic levels, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 983–995, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/8/983/2008/>, 2008.
- Tie, X. und Brasseur, G. P.: The response of stratospheric ozone to volcanic eruptions: Sensitivity to atmospheric chlorine loading, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 3035–303, 1995.
- Tiedtke, M.: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 1779–1800, 1989.
- Timmreck, C.: Simulationen zur Bildung und Entwicklung von stratosphärischem Aerosol unter besonderer Berücksichtigung der Pinatuboepisode, Max-Planck-Institut für Meteorologie Hamburg, Examensarbeit 46, 1997.
- Timmreck, C.: Three-dimensional simulation of stratospheric background aerosol: First results of a multiannual general circulation model simulation, *J. Geophys. Res.*, 106, 28 313–28 332, 2001.
- Timmreck, C. und Graf, H.-F.: A microphysical model to simulate the development of stratospheric aerosol in a GCM, *Meteorol. Zeitschr.*, 9, 263–282, 2000.
- Timmreck, C. und Graf, H.-F.: The initial dispersal and radiative forcing of a Northern Hemisphere mid-latitude super volcano: A model study, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 35–49, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/6/35/2006/>, 2006.
- Timmreck, C., Graf, H.-F., und Kirchner, I.: A one and half year interactive MA/ECHAM4 simulation of Mount Pinatubo Aerosol, *J. Geophys. Res.*, 104, 9337–9360, 1999.
- Tolbert, M. A.: Sulfate aerosols and polar stratospheric cloud formation, *Science*, 264, 527–528, 1994.
- Tompkins, A.: A prognostic parameterization for the subgrid-scale variability of water vapor and clouds in large-scale models and its use to diagnose cloud cover, *J. Atmos. Sci.*, 59, 1917–1942, 2002.
- Toon, O. B. und Farlow, N. H.: Particles above the tropopause: Measurements and models of stratospheric aerosols, meteoric debris, nacreous clouds, and noctilucent clouds, *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, 9, 19–58, 1981.
- Toon, O. B. und Pollack, J. B.: A global model of atmospheric aerosols for radiative transfer calculations, *J. Applied Meteorol.*, 15, 225–246, 1976.
- Toon, O. B., Turco, R. P., Hamill, P., Kiang, C. S., und Whitten, R. C.: A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere: II. Sensitivity studies and comparison with observations, *J. Atmos. Sci.*, 36, 718–736, 1979.
- Toon, O. B., Turco, R. P., Westphal, D., Malone, R., und Liu, M. S.: A multidimensional model for aerosols: Description of computational analogs, *J. Atmos. Sci.*, 45, 2123–2143, 1988.
- Toon, O. B., Turco, R. P., und Hamill, P.: Denitrification mechanisms in the polar stratospheres, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 445–448, 1990.
- Trentmann, J., Luderer, G., Winterrath, T., Fromm, M. D., Servranckx, R., Textor, C., Herzog, M., Graf, H.-F., und Andreae, M. O.: Modeling of biomass smoke injection into the lower stratosphere by a large forest fire (Part I): Reference simulation, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5247–5260, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/6/5247/2006/>, 2006.
- Trepte, C. R. und Hitchman, M. H.: Tropical stratospheric circulation deduced from satellite aerosol data, *Nature*, 355, 626–628, 1992.
- Trepte, C. R., Thomason, L. W., und Kent, G. S.: Banded structures in stratospheric aerosol distributions, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2397–2400, 1994.

- Tsang, T. H. und Brock, J. R.: Simulation of condensation aerosol growth by condensation and evaporation, *Aerosol Sci. Tech.*, 2, 311–320, 1983.
- Turco, R. P., Hamill, P., Toon, O. B., Whitten, R. C., und Kiang, C. S.: A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere: I. physical processes and mathematical analogs, *J. Atmos. Sci.*, 36, 699–717, 1979a.
- Turco, R. P., Hamill, P., Toon, O. B., Whitten, R. C., und Kiang, C. S.: The NASA–AMES Research Center Stratospheric Aerosol Model: I. physical processes and computational analogs, NASA TP 1362, iii-94, 1979b.
- Turco, R. P., Whitten, R. C., Toon, O. B., Pollack, J. B., und Hamill, P.: OCS, stratospheric aerosols, and climate, *Nature*, 283, 283–286, 1980.
- Turco, R. P., Whitten, R. C., und Toon, O. B.: Stratospheric aerosols: Observation and theory, *Rev. Geophys.*, 20, 233–279, 1982.
- Turco, R. P., Toon, O. B., Whitten, R. C., Hamill, P., und Keesee, R. G.: The 1980 eruptions of Mount St. Helens: Physical and chemical processes in the stratospheric clouds, *J. Geophys. Res.*, 88, 5299–5319, 1983.
- Twomey, S. A.: Pollution and the planetary albedo, *Atmos. Environ.*, 8, 1251–1256, 1974.
- Tzivion, S., Feingold, G., und Levin, Z.: The evolution of raindrop spectra. Part II: Collisional collection/breakup and evaporation in a rainshaft, *J. Atmos. Sci.*, 46, 3312–3327, 1989.
- van der Werf, G., Randerson, J. T., Collatz, G. J., und Giglio, L.: Carbon emissions from fires in tropical and subtropical ecosystems, *Global Change Biology*, 9, 547–562, 2003.
- Van Dingen, R. und Raes, F.: Determination of the condensation accommodation coefficient of sulfuric acid on water–sulfuric acid aerosol, *Aerosol Sci. Tech.*, 15, 93–106, 1991.
- Vehkamäki, H., Kulmala, M., Napari, I., Lehtinen, K. E. J., Timmreck, C., Noppel, M., und Laaksonen, A.: An improved parameterization for sulfuric acid water nucleation rates for tropospheric and stratospheric conditions, *J. Geophys. Res.*, 107, 4622–4632, 2002.
- Vignati, E., Wilson, J., und Stier, P.: M7: An efficient size resolved aerosol microphysics module for large-scale aerosol transport models, *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2003JD004485, 2004.
- Viisanen, Y., Kulmala, M., und Laaksonen, A.: Experiments on gas–liquid nucleation of sulfuric acid and water, *J Chem. Phys.*, pp. 920–926, 1997.
- von Salzen, K., Leighton, H. G., Ariya, P. A., Barrie, L. A., Gong, S. L., Blanchet, J.-P., Spacek, L., Lohmann, U., und Kleinman, L. I.: Sensitivity of sulphate aerosol size distributions and CCN concentrations over North America to SO_x emissions and H₂O₂ concentrations, *J. Geophys. Res.*, 105, 9741–9766, 2000.
- Waugh, D. W.: Seasonal variation of isentropic transport out of the tropical stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 101, 4007–4023, 1996.
- Waugh, D. W., Plumb, R. A., Newman, P. A., Schoeberl, M. R., Lait, L. R., Loewenstein, M., Podolske, J. R., Elkins, J. W., und Chan, K. R.: Fine-scale, poleward transport of tropical air during AASE 2, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2603–2606, 1994.
- Weber, R. J., McMurry, P. H., Mauldin, R. L., Tanner, D., Eisele, F. L., Clarke, A. D., und Kapustin, V.: New particle formation in the remote troposphere: A comparison of observations at various sites, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 307–310, 1999.
- Weisenstein, D. K., Yue, G. K., Ko, M. K. W., Sze, N.-D., Rodriguez, J. M., und Scott, C. J.: A two-dimensional model of sulfur species and aerosols, *J. Geophys. Res.*, 102, 13 019–13 035, 1997.
- Weisenstein, D. K., Penner, J. E., Herzog, M., und Liu, X.: Global 2-D intercomparison of sectional and modal aerosol modules, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2339–2355, 2007.

- Wexler, A. S. und Seinfeld, J. H.: The distribution of ammonium salts among a size and composition dispersed aerosol, *Atmos. Environ.*, 24, 1231–1246, 1990.
- Whitby, K. T.: The physical characteristics of sulfur aerosols, *Atmos. Environ.*, 12, 135–159, 1978.
- Wilemski, G.: Composition of the critical nucleus in multi-component vapor nucleation, *J. Chem. Phys.*, 80, 1370–1372, 1984.
- Wilson, C.: On the cloud method of making visible ions and the tracks of ionizing particles, *Nobel Lectures in Physics*, pp. 1922–1941, 1927.
- WMO: Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2006, World Meteorological Organization, Global Ozone Research and Monitoring Project, Report No. 50, Geneva, Switzerland, 2006.
- Wyslouzil, B. E., Seinfeld, J. H., Flagan, R. C., und Okuyama, K.: Binary nucleation in acid–water systems, II, Sulphuric acid–water and comparison with methanesulfonic acid–water, *J. Chem. Phys.*, 94, 6842–6850, 1991.
- Yu, F.: Binary $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ homogeneous nucleation based on kinetic quasi–unary nucleation model: Look–up tables, *J. Geophys. Res.*, 11, doi:10.1029/2005JD006358, 2006.
- Yu, F. und Turco, R. P.: Ultrafine aerosol formation via ion–mediated nucleation, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 883–886, 2000.
- Yue, G., Poole, L., Wang, P.-H., und Chiou, E.: Stratospheric aerosol acidity, density, and refractive index deduced from SAGE II and NMC temperature data, *J. Geophys. Res.*, 99, 3727–3738, 1994.
- Zhang, R., Wooldridge, P. J., Abbatt, J. P. D., und Molina, M. J.: Physical chemistry of the $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ binary system at low temperatures: Implications for the stratosphere, *J. Phys. Chem.*, 97, 7351–7358, 1993a.
- Zhang, R., Wooldridge, P. J., und Molina, M. J.: Vapor pressure measurements for the $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ and $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HCl}/\text{H}_2\text{O}$ systems: Incorporation of stratospheric acids into background sulfate aerosols, *J. Phys. Chem.*, 97, 8541–8548, 1993b.
- Zhang, Y., Seigneur, C., Seinfeld, J. H., Jacobson, M., und Binkowski, F. S.: Simulation of aerosol dynamics: A comparative review of algorithms used in air quality models, *Aerosol Sci. Technol.*, 31, 487–514, 1999.
- Zhang, Y., Easter, R. C., Ghan, S. J., und Abdul-Razzak, H.: Impact of aerosol size representation on modelling aerosol–cloud interactions, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD001549, 2002.
- Zhao, J. und Turco, R. P.: Nucleation simulation in the wake of a jet aircraft in stratospheric flight, *J. Atmos. Sci.*, 26, 779–795, 1995.
- Zuev, V., Burlakov, V., El'nikov, A., Ivanov, A., Chaikovskii, A., und Shcherbakov, V.: Processes of long–term relaxation of stratospheric aerosol layer in Northern Hemisphere midlatitudes after a powerful volcanic eruption, *Atmos. Environ.*, 35, 5059–5066, 2001.
- Zuev, V., Burlakov, V. D., Dolgii, S. I., El'nikov, A. V., und Nevzorov, A. V.: Quasi–biennial oscillations of variations of total content and vertical distribution of stratospheric ozone and aerosol according to observations at siberian lidar station (56.5°N , 85.0°E), *Proceedings of the 23rd International Laser Radar Conference (ILRC23)*, Nara, Japan, July 24–28, 2006.

Danksagungen

Nach achtundvierzig Vorabversionen des hier vorgestellten Modells und unzähligen Testversionen wird es Zeit, all denen meinen Dank auszusprechen, ohne deren Kompetenz, sachdienliche Hinweise und Beratung diese Arbeit niemals hätte Erfolg haben können:

Zu allererst danke ich Prof. Hartmut Graßl, Prof. Hans F. Graf, Claudia Timmreck und Marco Giorgetta für die Begutachtung, die Beratung und die kontinuierliche Unterstützung meiner Arbeit.

Marco Giorgetta darüber hinaus für die Bereitstellung des *Nudging*-Algorithmus und des TEM-Codes.

Christoph Brühl und Benedikt Steil vom MPI für Chemie in Mainz für die wertvollen Hinweise zu Fragen der Chemie der Stratosphäre.

Für die Beratung und Unterstützung in vielerlei Hinsicht danke ich (in loser Reihenfolge) Philip Stier, Silvia Kloster, Andreas Chlond, Sandra Kriebitzsch, Catherina Brünning, Angelika Heil, Manu Anna Thomas, Martin Keller, Heinz Jürgen Punge, Ulrike Niemeier, Cristina Peña Oritz, Sebastian Rast, Stefan Kinne, Daniela Jacob, Gareth Thomas, Declan O'Donnell, Bärbel Langmann und vielen anderen...

Besonderer Dank gilt meiner Familie und hier vor allem Julie und Cécile Brinckmann.

