

Berücksichtigung des Einflusses von anthropogenem Aerosol auf warme Wolken in COSMO-ART

Diplomarbeit im Fach Meteorologie

vorgelegt von

Max Jonas Bangert

September 2008

INSTITUT FÜR METEOROLOGIE UND KLIMAFORSCHUNG
UNIVERSITÄT KARLSRUHE(TH) / FORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Berücksichtigung des Einflusses von anthropogenem Aerosol auf warme Wolken in COSMO-ART

Diplomarbeit vorgelegt von Max Jonas Bangert

Referent: Prof. Dr. Christoph Kottmeier

Korreferent: Prof. Dr. Thomas Leisner

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Beschreibung der Aerosolaktivierung	9
2.1	Thermodynamisches Gleichgewicht	9
2.1.1	Gleichgewicht über einer ebenen Wasseroberfläche	10
2.1.2	Gleichgewicht über der Oberfläche eines reinen Wassertropfens	11
2.1.3	Gleichgewicht über einer Lösung	12
2.2	Köhlergleichung	13
2.2.1	Aktivierung von Aerosolpartikeln	15
2.3	Berechnung der maximalen Übersättigung	18
2.4	Parametrisierungen	21
3	Das Modellsystem COSMO-ART	27
3.1	Aerosolbehandlung	28
3.1.1	Mathematische Beschreibung des Aerosols	29
3.2	Wolkenschema	31
4	Kopplung von Aerosol und Wolken in COSMO-ART	35
4.1	Aerosolaktivierung	35
4.1.1	Berechnung der maximalen Übersättigung	38
4.1.2	Vertikalgeschwindigkeit	39
4.1.3	Erweiterung der Aerosolbilanzgleichung	40
4.2	Bilanzgleichung der Wolkentropfenanzahldichte	42
5	Simulationen	45
5.1	Verteilung des Aerosols und der Wolkenkondensationskerne	49
5.2	Scavenging von Aerosol durch Aktivierung	55
5.3	Simulation der Wolkentropfenanzahldichten	56
5.4	Einfluss des Aerosols auf Wolkeneigenschaften und Niederschlag	62
5.5	Vergleich zur Standardversion von COSMO-ART	69
6	Zusammenfassung	75

A Literaturverzeichnis	77
B Symbolverzeichnis	83
Danksagung	87

1. Einleitung

Die Atmosphäre der Erde ist ein komplexes System aus einer Vielzahl von Gasen und darin suspendierten festen und flüssigen Partikeln. Mit der fortschreitenden Industrialisierung hat der Mensch zunehmend durch Emissionen in dieses sensitive System eingegriffen und greift heute noch ein. Im Laufe der Zeit wurde man sich zunehmend der resultierenden Probleme bewusst und die Beeinflussung der Atmosphäre durch den Menschen rückte in das öffentliche, wissenschaftliche aber auch wirtschaftliche und politische Interesse. Die bekanntesten Beispiele für die unmittelbare Beeinflussung der Atmosphäre durch anthropogene Emissionen sind der photochemische Smog in Kalifornien, der saure Regen infolge von Schwefelemissionen und das durch die Emission von FCKW's entstandene Ozonloch. Neben diesen direkt spürbaren Auswirkungen der veränderten chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre treten durch die anthropogenen Emissionen jedoch auch Sensitivitäten im Verhalten des Systems selbst auf. Die Quantifizierung des anthropogenen Einflusses auf das Klima der Erde ist hierbei ein wissenschaftlicher Schwerpunkt (IPCC, 2007). Neben solch langfristigen Änderungen finden Bäumer und Vogel (2007) Hinweise auf eine unmittelbare Beeinflussung der Wochengänge verschiedener meteorologischer Variablen, wie zum Beispiel Temperatur und Niederschlag, infolge des Wochenzyklus der anthropogenen Emissionen.

Die suspendierten flüssigen und festen Partikel in der Atmosphäre werden als Aerosol bezeichnet. Durch die anthropogenen Emissionen werden die chemische Zusammensetzung und die räumliche Verteilung des Aerosols massiv beeinflusst. Die Quantifizierung der Auswirkungen des Aerosols auf Klima und Wettergeschehen von der globalen bis zur lokalen Skala sind Gegenstand der aktuellen Forschung.

Aerosol bezeichnet im strengen Sinne ein Trägerfluid mit darin suspendierten Partikeln. Mit dem Begriff Aerosol werden jedoch zumeist die suspendierten Partikel bezeichnet. Das atmosphärische Aerosol ist hinsichtlich seiner physikalischen und chemischen Eigenschaften räumlich und zeitlich sehr variabel. Die Anzahldichten der Partikel können Werte von wenigen zehn bis mehrere tausend pro cm^3 erreichen.

Hinsichtlich seiner Entstehung lassen sich die atmosphärischen Aerosolpartikel in primäre und sekundäre Partikel unterteilen. Primäre Partikel werden direkt in die Umgebung emittiert. Ein Beispiel hierfür ist Ruß aus Kraftfahrzeugemissionen aber auch Partikel natürlichen Ursprungs, wie zum Beispiel Mineralstaub und Seesalz. Sekundäre Partikel entstehen durch Nukleation aus der Gasphase. Sie bestehen zu großen Teilen aus Sulfat, Ammonium und Nitrat, können aber eine Vielzahl anorganischer und organischer Substanzen enthalten. Aufgrund der unterschiedlichen Entstehungsprozesse unterscheidet sich, neben der chemischen Zusammensetzung, die Größe der Partikel sehr stark. Junge (1952) teilt die Par-

tikel nach ihrem Radius in Aitkenpartikel ($< 0,1 \mu m$), große Partikel ($0,1 - 1 \mu m$) und Riesenpartikel $1 \mu m$ ein.

Die Aerosolpartikel werden durch eine Vielzahl von Prozessen, wie zum Beispiel Kondensation, Evaporation und Koagulation, in ihren chemischen und physikalischen Eigenschaften modifiziert. Die trockene Deposition an der Erdoberfläche und die Sedimentation, in Folge der Schwerkraft der Erde, sind wichtige Verlustprozesse. Im Größenbereich zwischen $0,1$ und $2,5 \mu m$ sind die trockene Deposition und die Sedimentation nicht effektiv. Hierdurch verlängert sich die Aufenthaltszeit dieser Partikel in der Atmosphäre und es kommt zu einer Akkumulation von Aerosolmasse in diesem Bereich. Nach Whitby (1978) wird der Bereich von Partikeln mit Radien zwischen $0,1 - 1 \mu m$ auch als Akkumulationsbereich bezeichnet. Der dominierende Verlustprozess im Akkumulationsbereich ist die nasse Deposition, welche das Auswaschen von Aerosol unter Mitwirkung von Wolken und Niederschlag bezeichnet. Die Wechselwirkung des Aerosols mit Wolkenprozessen stellt somit eine wichtige Senke für das troposphärische Aerosol dar.

Als Teil des Systems Atmosphäre hat das Aerosol einen Einfluss auf eine Vielzahl atmosphärischer Prozesse. Durch die Extinktion von Strahlung an den Aerosolpartikeln wird das Strahlungsfeld in der Atmosphäre modifiziert. Dies hat Einfluss auf die Temperaturverteilung der Atmosphäre, die photolytische Umwandlung von Spurenstoffen und die sich daraus ergebenden Rückkopplungen. Im Bereich der Klimaforschung wird die unmittelbare Modifikation des Strahlungshaushalts der Erde durch Extinktion an Aerosolpartikeln als „direkter Aerosoleffekt“ bezeichnet. Zurzeit wird von einer globalen Modifikation der Nettostrahlung am Oberrand der Troposphäre von $-0.5 \pm 0.4 \text{ Wm}^{-2}$ infolge des direkten Aerosoleffekts ausgegangen (IPCC, 2007).

Neben dem direkten Aerosoleffekt werden Modifikationen der optischen Eigenschaften und der räumlichen und zeitlichen Verteilung der Bewölkung durch Aerosolpartikel und die daraus resultierende Modifikation des Strahlungshaushalts in der Klimaforschung als indirekter Aerosoleffekt bezeichnet (Lohmann und Feichter, 2005). Bei der Quantifizierung dieses Effekts sind jedoch noch sehr große Unsicherheiten vorhanden (IPCC, 2007). Dies ist auf die äußerst komplexe und nur zum Teil verstandene Wechselwirkung zwischen Aerosolpartikeln und Wolken zurückzuführen. Zudem handelt es sich um räumlich und zeitlich sehr begrenzte und variable Prozesse, welche mit Klimamodellen nicht explizit aufgelöst werden können.

Aerosolpartikel dienen in der Atmosphäre als Kondensationskerne für die Bildung von Wolkentropfen und bestimmen somit die Anzahl von Tropfen bei der Entstehung einer Wolke. Jedoch können nicht alle Aerosolpartikel zur Größe eines Wolkentropfens, mit typischen Durchmessern von mehreren $10 \mu m$, anwachsen. Kann ein Aerosolpartikel aufgrund seiner Eigenschaften und der in der Atmosphäre auftretenden Übersättigung als Wolkenkondensationskern dienen, wird es als aktiviert, und der zugehörige Prozess als Aktivierung des Partikels, bezeichnet. Bei einem fixen Flüssigwassergehalt einer Wolke wird der mittlere Radius der Wolkentropfen durch die Anzahl der verfügbaren Kondensationskerne bestimmt. Hierdurch werden die optischen Eigenschaften einer Wolke modifiziert. Dieser Effekt wird als erster

indirekter Effekt, als Wolkenalbedo-Effekt oder auch als „Twomey-Effekt“ (Twomey, 1959) bezeichnet. Der Einfluss dieses Effekts ist bei der Entstehung von Streifen mit erhöhter Albedo in dünnen, marinen Stratuswolken entlang von Schiffsrouten unmittelbar nachweisbar (Ferek et al., 1998).

Durch den Einfluss auf die Größenverteilung der Wolkentropfen modifizieren die Aerosolpartikel auch die mikrophysikalischen Vorgänge in einer Wolke. Insbesondere die Bildung von Regentropfen durch die Koagulation von Wolkentropfen ist stark von der Größenverteilung der Wolkentropfen abhängig. Da die unterschiedlich großen Tropfen in einer Wolke verschiedene Fallgeschwindigkeiten besitzen, können die größeren und schnelleren Tropfen die kleineren Tropfen beim Fallen einfangen und als Folge dessen zur Größe eines Regentropfens anwachsen. Die Effizienz dieses Prozesses hängt stark von der Größe der beteiligten Tropfen ab. Im Allgemeinen ist die Koagulation der Wolkentropfen für große Tropfen effektiver als für kleine Tropfen (Rogers und Yau, 1989). Je kleiner und leichter die Tropfen sind, desto kleiner ist ihr Querschnitt und somit das Volumen durch das sie fallen und desto eher werden sie im Strömungsfeld, welches die Tropfen umgibt, um die größeren Tropfen herumgeführt. Zusätzlich spielt die Form der Größenverteilung der Tropfen eine große Rolle. Je breiter die Größenverteilung desto unterschiedlicher sind die Fallgeschwindigkeiten der Tropfen und desto eher kommt es zur Koagulation der Tropfen.

Sind viele Kondensationskerne vorhanden, entstehen mehr und als Folge dessen kleinere Wolkentropfen, im Vergleich zu einem Fall in dem wenige Kondensationskerne vorhanden sind. Dies kann zu einer Verzögerung der Niederschlagsbildung bis hin zur Unterdrückung des Niederschlags führen (Rosenfeld, 2000; Givati und Rosenfeld, 2004), da kleinere Tropfen eine längere Zeit benötigen um durch Koagulation zur Größe eines Regentropfens anzuwachsen (Squires, 1958). Als Folge dessen ändert sich der Flüssigwassergehalt und die Lebensdauer der Wolken kann verlängert werden (Albrecht, 1989). Dies hat wiederum Auswirkungen auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre und wird als zweiter indirekter Aerosoleffekt, als „Wolkenlebensdauerereffekt“ oder auch als „Albrecht-Effekt“ bezeichnet.

Der erste und zweite indirekte Effekt beziehen sich nur auf Wechselwirkungen mit sogenannten warmen Wolken, welche kein Eis enthalten. In Mischwolken, welche aus Flüssigwasser und Eis bestehen, oder in reinen Eiswolken treten zusätzliche Wechselwirkungen mit Aerosolpartikeln auf. Manche Aerosolpartikel, wie z.B. Mineralstaub, dienen als Nukleationskern für Eispartikel und modifizieren somit die mikrophysikalischen Prozesse in einer Wolke (Lohmann und Feichter, 2005). Partikel, welche als Nukleationskern für Wolkentropfen und für Eispartikel dienen können, wie zum Beispiel Mischpartikel aus Seesalz und Mineralstaub, können nach Levin et al. (2005) zu unterschiedlichen Auswirkungen auf die Eigenschaften einer Wolke und auf die Niederschlagsbildung führen. Insbesondere in konvektiven Wolken sind die Wechselwirkungen mit dem Aerosol sehr komplex. Seifert und Beheng (2006b) zeigten für verschiedene konvektive Wolkensysteme, dass sich für eine Erhöhung der Anzahl von Wolkenkondensationskernen jeweils unterschiedliche Rückkopplungen auf den Niederschlag ergeben können.

Das atmosphärische Aerosol wird jedoch selbst stark von der Bewölkung modifiziert. Neben der Bildung von Wolkentropfen durch Kondensation auf Aerosolpartikeln und dem Auswaschen infolge von

Niederschlag, modifiziert die Koagulation von Aerosolpartikeln mit Wolkentropfen die Aerosolverteilung. Innerhalb einer Wolke werden die in den Tropfen enthaltenen Partikel durch Koagulation der Tropfen vermischt und bilden als Folge dessen bei einer anschließenden Evaporation der Tropfen größere Partikel mit veränderter Zusammensetzung (Flossmann et al., 1985). Zur Prozessierung von Aerosolpartikeln innerhalb einer Wolke spielen auch chemische Prozesse eine wichtige Rolle. Gase dissoziieren in den Wolkentropfen und reagieren mit den eingeschlossenen Aerosolpartikeln, wodurch bei der Evaporation der Tropfen Partikel mit veränderter Größe und chemischer Zusammensetzung freigesetzt werden (Seinfeld und Pandis, 2006).

In der Nähe von Wolken wurden hohe Anzahlen von Partikeln beobachtet (Radke und Hobbs, 1990). Dies ist unter Umständen auf eine vermehrte Nukleation von Aerosolpartikeln aus der Gasphase zurückzuführen, da aufgrund der hohen relativen Feuchte und der erhöhten Photodissoziation (Madronich, 1987) in der Nähe von Wolken ideale Bedingungen zur Nukleation von Schwefelsäuretröpfchen herrschen (Hobbs, 1993).

Eine Wolke ist zudem ein System, das mit starken dynamischen Strukturen verbunden ist. Das Aerosol wird hierdurch insbesondere in der Vertikalen stark umverteilt. Flossmann (1998) zeigte, dass bei einer mittelgroßen, konvektiven Wolke 70% des Aerosols aus der Grenzschicht in die freie Troposphäre transportiert werden können. Oberhalb der Wolke kann es dabei zu einer Akkumulation von Partikeln kommen, was neben der Nukleation ein weiterer Grund für eine erhöhte Aerosolanzahldichte in der Nähe von Wolken darstellt.

Wolken und Aerosol bilden ein komplexes, gekoppeltes System. Die Wechselwirkung zwischen Aerosol und Wolken ist zudem ein multiskaliges Problem. Zur Untersuchung dieser Wechselwirkungen müssen, beginnend vom Verhalten einzelner Partikel und Tropfen, über mikrophysikalische Prozesse bis zur Verteilung des Aerosols und der Wolken auf der Makroskala, eine Vielzahl von Einflussfaktoren berücksichtigt werden. Ein wichtiges Werkzeug zur Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Aerosol und Wolken sind numerische Modelle.

In der Klimamodellierung liegt der Schwerpunkt auf der Abschätzung des Einflusses des Aerosols auf den globalen, jährlich gemittelten Strahlungshaushalt. Hierfür müssen aufgrund des hohen Rechenaufwands zeitlich und räumlich grobe Auflösungen in den Modellen verwendet werden. Die hohe Variabilität des atmosphärischen Aerosols und der Bewölkung, sowie deren dynamische und mikrophysikalischen Strukturen, können somit nicht explizit erfasst werden. Dies erschwert eine Abschätzung des indirekten Aerosoleffekts in globalen Modellen (Penner et al., 2006) und führt zu großen Unsicherheiten (IPCC, 2007) in der Quantifizierung des Effekts. Zur Berücksichtigung des Aerosols wurde in ersten Studien die Masse von Sulfat repräsentativ für das gesamte Aerosol verwendet (Boucher und Lohmann, 1995; Jones et al., 1994). In modernen globalen Modellen wird zunehmend auch die Anzahl der Partikel und mehrere Partikelklassen berücksichtigt (Penner et al., 2006; Lohmann und Feichter, 2005). Die Wolkentropfenanzahl wird zum Teil empirisch anhand der Aerosolmasse abgeleitet (Boucher und Lohmann, 1995; Jones

et al., 1994) oder, unter Verwendung von physikalisch basierten Parametrisierungen der Aerosolaktivierung, als prognostische Größe berechnet (Ghan und Abdul-Razzak, 1997).

Im Gegensatz zu den globalen Modellen werden hochaufgelöste, numerische Modelle zur Simulation der Wechselwirkung von Aerosol mit einzelnen Wolken oder Wolkensystemen verwendet. Der Schwerpunkt liegt hier auf der Gewinnung neuer Erkenntnisse über die beteiligten dynamischen, mikrophysikalischen und thermodynamischen Prozesse. Hierbei werden oft zweidimensionale (z.B. Khain et al. (2004)) oder axensymmetrische (z.B. Zhiqiang et al. (2006)) Simulationen verwendet. Mit aufwändigen dreidimensionalen Modellen können die Strukturen innerhalb einer Wolke im Detail erfasst werden (Noppel et al., 2008). Aufgrund der erforderlichen hohen räumlichen Auflösung ist die Größe der Simulationsgebiete jedoch eingeschränkt. Da es sich oft um idealisierte Studien oder sehr kleine Simulationsgebiete mit Schwerpunkt auf den Prozessen innerhalb der Wolke handelt, wird die Anzahl der Wolkenkondensationskerne als konstante Eingabegröße vorgegeben. Einige Modelle sind auch auf die Modifikation des Aerosols innerhalb einer Wolke ausgelegt, müssen jedoch auch auf vorgegebene Verteilungen zurückgreifen (Flossmann, 1998). In Folge der hohen Auflösung und der verwendeten detaillierten Behandlung der Mikrophysik kann die mikrophysikalische Struktur einer Wolke detailliert beschrieben werden und wichtige Einflussgrößen, wie die Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit und die Übersättigung innerhalb einer Wolke, im Gegensatz zu globalen oder mesoskaligen Modellen besser erfasst werden.

Die globale Modellierung sowie die Modellierung einzelner Wolken haben viel zum Verständnis der beteiligten Prozesse und der Auswirkungen der Wechselwirkungen zwischen Aerosol und Wolken beigetragen. Das System Aerosol-Wolken hängt jedoch stark vom Einfluss mesoskaliger Faktoren, wie zum Beispiel der räumlichen Verteilung des Aerosols und der Wolken, der Orografie und der synoptischen Situation, ab. Eine Simulation der Wechselwirkung von Aerosolpartikeln und Wolken auf der Mesoskala ist daher naheliegend. Erste Studien mit Schwerpunkt auf der Prozessierung des Aerosols wurden von Ivanova und Leighton (2008) mit einem mesoskaligen Modell durchgeführt. Hierbei wurde eine horizontal homogene Verteilung des Aerosols, welche aus Messungen abgeleitet wurde, verwendet. Khain et al. (2008) zeigten den Einfluss zweier vorgegebener Aerosolgrößenverteilungen auf den Niederschlag unter Verwendung einer detaillierten Behandlung der Wolkenmikrophysik (Seifert und Beheng, 2006a).

In Simulationen mit Schwerpunkt auf der regionalen bis kontinentalen Skala stellt die genaue Erfassung der Variabilität des atmosphärischen Aerosols und seiner Eigenschaften eine besondere Herausforderung dar, da eine Vielzahl von Faktoren, wie zum Beispiel anthropogene und natürliche Emissionen, Wechselwirkungen mit der Gasphase und aerosoldynamische Effekte berücksichtigt werden müssen. Die Anzahl und Zusammensetzung der Aerosolpartikel und somit die Anzahl der verfügbaren Wolkenkondensationskerne können innerhalb weniger Kilometer und innerhalb weniger Stunden um mehrere 100 % variieren (Radke und Hobbs, 1990). Als Folge dessen sind Sensitivitäten in den Eigenschaften der Wolken und dem Niederschlag, aufgrund der Variabilität der verfügbaren Wolkenkondensationskerne, zu erwarten.

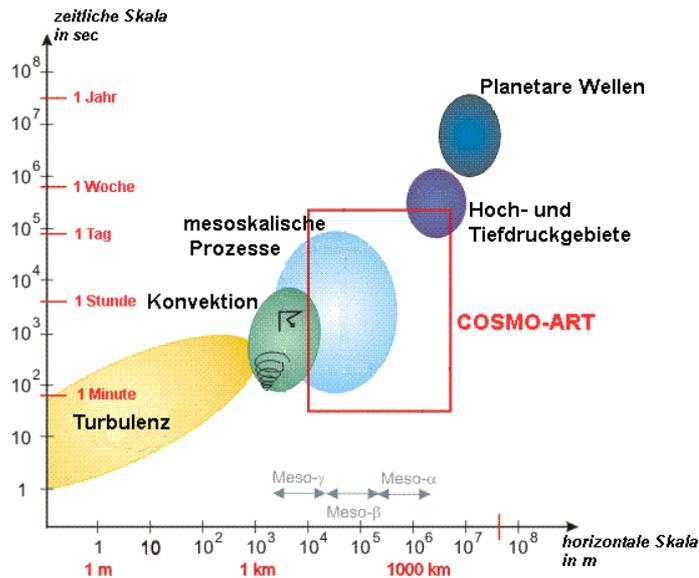


Abb. 1.1.: Darstellung der von COSMO-ART aufgelösten Skalenbereiche und Beispiele für die physikalischen Prozesse der jeweiligen Skalen (nach www.dwd.de (2008)).

Das am Institut für Meteorologie und Klimaforschung der Karlsruher Universität und des Forschungszentrums Karlsruhe entwickelte Modellsystem COSMO-ART (**C**onsortium for **S**mall scale **M**odelling - **A**erosols and **R**eactive **T**race **G**ases) ermöglicht eine detaillierte Berechnung der Eigenschaften und der Verteilung des atmosphärischen Aerosols auf einer regionalen bis kontinentalen Skala. In Abbildung 1.1 sind die von COSMO-ART betrachteten Skalen dargestellt. Das Modellsystem basiert auf einer vollständigen Kopplung des mesoskaligen Wettervorhersagemodells COSMO des deutschen Wetterdiensts mit dem Aerosolmodul MADEsoot (Riemer, 2002) und einer umfangreichen Behandlung der Gasphasenchemie. Mit COSMO-ART kann sowohl die Verteilung und Struktur der Bewölkung, als auch die Verteilung und Eigenschaft des Aerosols gemeinsam in konsistenter Weise unter Berücksichtigung von anthropogenen Emissionen, orografischen Effekten und sonstigen mesoskaligen Prozessen simuliert werden.

In der aktuellen Version von COSMO-ART ist bisher keine unmittelbare Wechselwirkung zwischen Aerosol und Wolken enthalten. Zurückliegende Studien beschäftigten sich daher vornehmlich mit dem direkten Strahlungseffekt des Aerosols und dessen Auswirkungen auf das regionale Klima und Wettergeschehen.

Ziel dieser Arbeit ist es, das Aerosol und die Wolken in COSMO-ART durch eine explizite Berechnung der Wolkentropfenanzahl zu koppeln und anschließend erste Simulationen zum Einfluss des Aerosols auf die Eigenschaften der Wolken und des Niederschlags mit COSMO-ART durchzuführen.

Zu diesem Zweck wird das Modellsystem zunächst um die Aktivierung der Aerosolpartikel erweitert, um die Berechnung der dreidimensionalen Verteilung der verfügbaren Wolkenskondensationskerne in Abhängigkeit von den anthropogenen und natürlichen Emissionen zu ermöglichen. In einem weiteren Schritt wird die Wolkentropfenanzahldichte als neue prognostische Größe in COSMO-ART eingeführt.

Hierbei wird die Aktivierung der Aerosolpartikel explizit berücksichtigt und das bestehende Wolkenschema des COSMO-Modells entsprechend ergänzt, um den Einfluss des Aerosols auf die Autokonversion, welche die Bildung von Regentropfen durch Koagulation von Wolkentropfen beschreibt, berücksichtigen zu können.

Die Erweiterungen des Modellsystems sollen zudem eine Infrastruktur für die Implementierung weiterer Wechselwirkungen zwischen Aerosol und Wolken, wie zum Beispiel die Modifikation der optischen Eigenschaften der Wolken oder die Prozessierung des Aerosols innerhalb von Wolken, schaffen. Diese Arbeit ist somit der erste Schritt zu einer vollständigen Behandlung der Wechselwirkung zwischen Aerosol und Wolken in COSMO-ART.

In dieser Arbeit wird zunächst die Aktivierung der Aerosolpartikel und deren Umsetzung in COSMO-ART, sowie die Erweiterung des Wolkenschemas erläutert. Anschließend wird anhand verschiedener Simulationen für ein Gebiet von $350 \text{ km} \times 550 \text{ km}$ die Verteilung und Variabilität der berechneten Wolkenkondensationskerne dargestellt und danach deren Einfluss auf die Eigenschaften der simulierten Wolken und auf den Niederschlag gezeigt.

2. Theoretische Beschreibung der Aerosolaktivierung

Wolkentropfen entstehen in der Atmosphäre durch Kondensation von Wasserdampf auf Aerosolpartikeln. Jedoch sind nicht alle Aerosolpartikel als Wolkenkondensationskern geeignet. Ob ein Aerosolpartikel für einen bestimmten Zustand der Atmosphäre als Wolkenkondensationskern geeignet ist, wird durch die chemische Zusammensetzung und die Größe des Partikels bestimmt. Wasserlösliche Aerosolpartikel, bestehend aus zum Beispiel anorganischen Salzen, bilden bereits bei relativen Feuchten RH unter 100 % wässrige Lösungströpfchen. Tritt in der Atmosphäre eine Übersättigung $s = RH/100 - 1$ auf, zum Beispiel durch adiabatische Abkühlung in einem aufsteigenden Luftpaket, so kann dieses Lösungströpfchen, in Abhängigkeit der Eigenschaften des gelösten Partikels und der Höhe der Übersättigung, von wenigen 100 nm Durchmesser auf die Größe eines Wolkentropfens von mehreren 10 μm im Durchmesser anwachsen. Das Aerosolpartikel wird dann als aktiviert bezeichnet.

Das Wachstum eines Tröpfchens lässt sich als Funktion der Differenz der Übersättigung s zur Übersättigung s_{eq} an der Tropfenoberfläche berechnen (siehe z.B. Seinfeld und Pandis (2006)):

$$\frac{dD}{dt} \propto s - s_{eq}. \quad [2.1]$$

D ist der Durchmesser des Lösungströpfchens. s_{eq} entspricht der Übersättigung im thermodynamischen Gleichgewicht zwischen dem Tröpfchen und seiner Umgebung. Ob ein Aerosolpartikel in der Form eines Lösungströpfchens zur Größe eines Wolkentropfens anwachsen kann, wird somit durch s_{eq} und s bestimmt.

Die Übersättigung im thermodynamischen Gleichgewicht s_{eq} ist eine Funktion der Eigenschaften des Aerosolpartikels. Die Übersättigung s lässt sich als Funktion der Abkühlungsrate und der Kondensationsrate in einem Luftpaket bestimmen. Im Folgenden werden die grundlegenden Gleichungen zur Bestimmung von s_{eq} und s und somit zur Bestimmung des Wachstums eines gelösten Aerosolpartikels zu einem Wolkentropfen dargelegt.

2.1. Thermodynamisches Gleichgewicht

Anhand eines abgeschlossenen Systems lassen sich Beziehungen für das thermodynamische Gleichgewicht ableiten.

Betrachtet man ein System bestehend aus zwei Phasen Wasserdampf (Index v) und Wasser (Index w), so gilt für reversible Zustandsänderungen nach dem ersten und zweiten Hauptsatz der Thermodynamik für jede Phase die Gibbs'sche Fundamentalgleichung (Pruppacher und Klett, 1997):

$$dU_w = T_w dS_w - p_w dV_w + \mu_w dn_w, \quad [2.2]$$

$$dU_v = T_v dS_v - p_v dV_v + \mu_v dn_v, \quad [2.3]$$

mit U = innere Energie, T = Temperatur, S = Entropie, p = Druck, V = Volumen, μ = chemisches Potential und n = Anzahl der Mole. Setzt man ein abgeschlossenes System voraus, gilt per definitionem $U = U_w + U_v = \text{konstant}$, $V = V_w + V_v = \text{konstant}$ und $n = n_w + n_v = \text{konstant}$. Nach dem zweiten Hauptsatz gilt für die Entropie eines abgeschlossenen Systems:

$$dS = dS_v + dS_w \geq 0. \quad [2.4]$$

Im thermodynamischen Gleichgewicht ist die Entropie eines abgeschlossenen Systems maximal. Für die Änderung der Entropien der beiden Phasen gilt dann:

$$dS_v + dS_w = 0. \quad [2.5]$$

Da ein abgeschlossenes System betrachtet wird, gilt für die totalen Differentiale der Zustandsvariablen $dV_w = -dV_v$, $dn_w = -dn_v$ und $dU_w + dU_v = 0$. Nach Addition von Gleichung 2.2 und 2.3 folgt für ein abgeschlossenes System im thermodynamischen Gleichgewicht:

$$(T_w - T_v)dS_w - (p_w - p_v)dV_w + (\mu_w - \mu_v)dn_w = 0. \quad [2.6]$$

Da die Änderungen der Zustandsvariablen unabhängig sind, müssen die Terme in den Klammern verschwinden und es folgt unmittelbar:

$$T_v = T_w, \quad \text{thermisches Gleichgewicht} \quad [2.7]$$

$$p_v = p_w, \quad \text{mechanisches Gleichgewicht} \quad [2.8]$$

$$\mu_v = \mu_w. \quad \text{chemisches Gleichgewicht} \quad [2.9]$$

Im thermodynamischen Gleichgewicht zwischen zwei Phasen sind T , p und μ im gesamten System konstant. Treten Gradienten in T , p oder μ auf, setzen Ausgleichsflüsse ein, um das Gleichgewicht wieder herzustellen.

2.1.1. Gleichgewicht über einer ebenen Wasseroberfläche

Das Gleichgewicht über einer ebenen Wasseroberfläche wird im Allgemeinen als Sättigungsgleichgewicht bezeichnet. Für eine ebene Wasseroberfläche mit $T_v = T_w = T$ und $p_v = p_w = p$ gilt im thermodynamischen Gleichgewicht zwischen Wasser und Wasserdampf:

$$\mu_w(p, T) = \mu_v(p, T), \quad [2.10]$$

und somit gilt auch $d\mu_w = d\mu_v$. Berechnet man die totalen Differentiale, so lässt sich eine Gleichung für den Druck im Sättigungsgleichgewicht als Funktion der Temperatur ableiten.

$$\frac{\partial\mu_w}{\partial p}dp + \frac{\partial\mu_w}{\partial T}dT = \frac{\partial\mu_v}{\partial p}dp + \frac{\partial\mu_v}{\partial T}dT, \quad [2.11]$$

$$v_w dp - s_w dT = v_v dp - s_v dT, \quad [2.12]$$

v_w , v_v sind Molvolumen und s_w , s_v molenspezifische Entropien. Stellt man die Gleichung um, folgt

$$\frac{dp_v}{dT} = \frac{s_v - s_w}{v_v - v_w}. \quad [2.13]$$

Dies ist die Clausius-Clapeyron-Gleichung. Sie beschreibt den Gleichgewichtswasserdampfdruck über einer ebenen Wasseroberfläche, welcher im Folgenden als Sättigungsdampfdruck e° bezeichnet wird, als Funktion der Temperatur. Mit

$$s_v - s_w = \frac{l_{wv}M_w}{T}, \quad [2.14]$$

$$v_v \gg v_w \quad [2.15]$$

und der idealen Gasgleichung

$$p_v v_v = RT, \quad [2.16]$$

wobei l_{wv} die massenspezifische Verdampfungswärme von Wasser zu Wasserdampf, M_w die Molmasse von Wasser und R die universelle Gaskonstante sind, lautet die Clausius-Clapeyron-Gleichung:

$$\frac{d \ln e^\circ}{dT} = \frac{l_{wv}}{R_w T^2}, \quad [2.17]$$

mit $R_w = R/M_w$ der Gaskonstante von Wasser. Nach der Integration von T_0 nach T und unter Vernachlässigung der Temperaturabhängigkeit von l_{wv} folgt für den Sättigungsdampfdruck:

$$e^\circ(T) \approx e^\circ(T_0) \exp\left(\frac{l_{wv}}{R_w} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}\right)\right). \quad [2.18]$$

2.1.2. Gleichgewicht über der Oberfläche eines reinen Wassertropfens

Betrachtet man nun einen Wassertropfen, muss zusätzlich zur chemischen Gleichgewichtsbedingung auch die mechanische Gleichgewichtsbedingung berücksichtigt werden. Bei der Expansion eines Tropfens muss zusätzliche Energie aufgewendet werden, um dessen Oberfläche zu vergrößern, da hierbei ein Transport von Molekülen an die Oberfläche entgegen den wirkenden Van-der-Waals-Kräften nötig ist. Ein Maß für die dabei benötigte Energie ist die Oberflächenspannung σ . Bezieht man die Oberflächenschicht des Tropfens mit der Oberfläche Ω als weitere Variable in die Betrachtungen des thermodynamischen Gleichgewichts (Gl. 2.6) als zusätzliche Phase (Index o)

$$dU_o = T_o dS_o + \sigma d\Omega + \mu_o dn_o \quad [2.19]$$

mit ein, so ergibt sich für die mechanische Gleichgewichtsbedingung die Formel von Laplace (Pruppacher und Klett, 1997):

$$e = p_w - \frac{4\sigma}{D}. \quad [2.20]$$

Aus dem chemischen (Gl. 2.9) und dem modifizierten mechanischen Gleichgewicht (Gl. 2.20) lässt sich die sogenannte Kelvingleichung ableiten (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$e_{eq} = e^\circ \exp\left(\frac{4\sigma M_w}{RT\rho_w D}\right). \quad [2.21]$$

Der Gleichgewichtsdampfdruck über einer Tropfenoberfläche nimmt folglich mit abnehmendem Radius zu und strebt für $D \rightarrow \infty$ gegen unendlich (siehe Abb. 2.1). Dieser Effekt ist als Kelvin-Effekt bekannt. Aus ihm folgt, dass eine Entstehung von reinen Wassertröpfchen in der Atmosphäre unmöglich ist. Damit ein entstandenes Tröpfchen nicht sofort verdunstet, sind sehr hohe Übersättigungen nötig. Diese werden jedoch unter natürlichen Bedingungen in der Atmosphäre nicht erreicht. Die homogene Nukleation von reinen Wassertröpfchen in der Atmosphäre kann somit vernachlässigt werden.

2.1.3. Gleichgewicht über einer Lösung

In der Atmosphäre können Wassertröpfchen nur durch heterogene Nukleation, d.h. der Kondensation von Wasserdampf auf Aerosolpartikeln, entstehen. Durch Lösung eines Aerosolpartikels zu einem Lösungströpfchen kann e_{eq} im Vergleich zu einem reinen Wassertropfen signifikant erniedrigt werden. Hierdurch ist auch für relative Feuchten unter 100% ein Gleichgewicht zwischen der feuchten Luft und einem kleinen Lösungströpfchen möglich.

Der Wasserdampf kann in der Atmosphäre als ideales Gas behandelt werden. Für sein chemisches Potential gilt somit (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$\mu_v = \mu_v^* + RT \ln e. \quad [2.22]$$

Hierbei ist μ_v^* das Standardpotential von Wasserdampf und e dessen Partialdruck.

In einer idealen Lösung gilt für das chemische Potential des Wassers (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$\mu_w = \mu_w^\bullet + RT \ln x_w, \quad [2.23]$$

wobei μ_w^\bullet das chemische Potential für pures Wasser bei identischem Druck und Temperatur und x_w der Molenbruch von Flüssigwasser in der Lösung ist. Aus der chemischen Gleichgewichtsbedingung folgt:

$$\mu_v = \mu_w, \quad [2.24]$$

$$\mu_v^* + RT \ln e = \mu_w^\bullet + RT \ln x_w.$$

Der Gleichgewichtsdampfdruck über einer ebenen Wasserlösung ergibt sich somit zu:

$$e = e_s^\circ = \exp\left(\frac{\mu_w^\bullet - \mu_v^*}{RT}\right) x_w, \quad [2.25]$$

$$e_s^\circ = Q x_w. \quad [2.26]$$

Da für pures Wasser ($x_w = 1$) $e_s^\circ = e^\circ$ (Gl. 2.18) gelten muss, folgt $Q = e^\circ$. Somit gilt:

$$e_s^\circ = e^\circ x_w. \quad [2.27]$$

Im chemischen Gleichgewicht ist somit der Wasserdampfpartialdruck über der Lösung gleich dem Produkt aus Wasserdampfpartialdruck über purem Wasser und dem Molenbruch von Wasser in der Lösung. e_s° ist somit über einer Lösung ($x_w < 1$) im Vergleich zu einer puren Wasseroberfläche e° erniedrigt. Für x_w gilt:

$$x_w = \frac{n_w}{n_w + n_s}, \quad [2.28]$$

wobei n_w die Anzahl der Mole von Wasser und n_s die Anzahl der Mole der gelösten Substanz sind. Je größer n_s desto niedriger ist somit e_s° .

Dies ist als Gesetz von Raoult bekannt und ist gültig für ideale Lösungen. Für nicht-ideale Lösungen muss der Molenbruch x_w durch die Aktivität a_w des Wasser in der Lösung ersetzt werden:

$$e_s^\circ = e^\circ a_w. \quad [2.29]$$

Die Annahme der Idealität ist im Allgemeinen für stark verdünnte Lösungen zulässig (Seinfeld und Pandis, 2006) und wird im Folgenden angenommen.

2.2. Köhlergleichung

Das Gleichgewicht zwischen einem Lösungströpfchen und der umgebenden feuchten Luft wird mit der sogenannten Köhlergleichung (Köhler, 1936) beschrieben. Die Köhlergleichung bestimmt den Gleichgewichtswasserdampfdruck über der Oberfläche eines Lösungströpfchens in Abhängigkeit der Tropfengröße und der Eigenschaften des gelösten Aerosolpartikels. Die Köhlergleichung folgt aus dem Zusammenspiel der Oberflächenkrümmung („Kelvineffekt“, siehe Gl. 2.21) und des Einflusses des gelösten Aerosolpartikels („Raoulteffekt“, siehe Gl. 2.27). Mit Hilfe der Köhlergleichung lassen sich Beziehungen ableiten, ob ein Aerosolpartikel, aufgrund seiner chemischen Zusammensetzung und Größe, als Wolkenkondensationskern bei einer bestimmten Übersättigung dienen kann.

Es wird vereinfachend angenommen, dass das gelöste Aerosolpartikel aus einem reinen, vollständig wasserlöslichen, anorganischen Salz, wie zum Beispiel Natriumchlorid oder Ammoniumsulfat, besteht. Das Gleichgewicht für ein Lösungströpfchen folgt aus den Gleichungen 2.21 und 2.27:

$$\frac{e_{eq}}{e_s^\circ} = \frac{e_{eq}}{e^\circ x_w} = \exp\left(\frac{4\sigma M_w}{RT\rho_w D}\right). \quad [2.30]$$

Das Volumen des Lösungströpfchens ist:

$$\frac{1}{6}\pi D^3 = n_w v_w + n_s v_s, \quad [2.31]$$

v_w, v_s sind hierbei die partiellen Molvolumen von Wasser und des Salzes. Für x_w (siehe Gl. 2.28) folgt somit:

$$\frac{1}{x_w} = 1 + \frac{n_s}{n_w}, \quad [2.32]$$

$$= 1 + \frac{n_s v_w}{1/6\pi D^3 - n_s v_s}. \quad [2.33]$$

Eingesetzt in Gleichung 2.30 ergibt sich:

$$\ln\left(\frac{e_{eq}}{e^\circ}\right) = \frac{4\sigma M_w}{RT\rho_w D} - \ln\left(1 + \frac{n_s v_w}{1/6\pi D^3 - n_s v_s}\right). \quad [2.34]$$

Gleichung 2.34 stellt e_{eq} über einem Lösungströpfchen als Funktion von Tropfendurchmesser D , Menge (n_s) und chemischer Zusammensetzung (v_s) des gelösten Aerosolpartikels dar. Aus ihr lässt sich mit Hilfe einiger Näherungen die bekannte Form der Köhlergleichung ableiten. Für stark verdünnte Lösungen ist das Volumen des gelösten Salzes vernachlässigbar:

$$\frac{1}{6}\pi D^3 \gg n_s v_s. \quad [2.35]$$

Für das Molvolumen des Wassers in der Lösung gilt näherungsweise:

$$v_w = \frac{M_w}{\rho_w}. \quad [2.36]$$

Eingesetzt in 2.34, unter Verwendung von $\ln(1+y) \approx y$ für $y \rightarrow 0$, folgt:

$$\ln\left(\frac{e_{eq}}{e^\circ}\right) = \frac{4\sigma M_w}{RT\rho_w D} - \frac{6n_s M_w}{\pi\rho_w D^3}. \quad [2.37]$$

n_s ergibt sich aus den Eigenschaften des gelösten Aerosolpartikels unter Berücksichtigung der Dissoziation (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$n_s = \frac{v_s \pi D_d^3 \rho_s}{6M_s}. \quad [2.38]$$

D_d ist der trockene Durchmesser des gelösten Aerosolpartikels, ρ_s Dichte des Salzes, M_s die Molmasse des Salzes und v_s die Molenzahl der Ionen pro Mol Salz nach der kompletten Dissoziation des Aerosolpartikels in der Lösung. Gleichung 2.38 eingesetzt in 2.37 liefert:

$$\ln\left(\frac{e_{eq}}{e^\circ}\right) = \frac{4\sigma M_w}{RT\rho_w D} - \frac{v_s M_w \rho_s D_d^3}{M_s \rho_w D^3}. \quad [2.39]$$

e_{eq}/e° entspricht der relativen Feuchte im Gleichgewicht $RH_{eq}/100$ und somit ergibt sich für die Köhlergleichung:

$$\ln(RH_{eq}/100) = \frac{A}{D} - \frac{B}{D^3}, \quad [2.40]$$

$$\text{mit } A = \frac{4\sigma M_w}{RT\rho_w}, \quad B = \frac{v_s M_w \rho_s D_d^3}{M_s \rho_w}. \quad [2.41]$$

Alternativ lässt sich die Gleichung mit der Übersättigung im Gleichgewicht s_{eq} formulieren:

$$\frac{e_{eq}}{e^\circ} = RH_{eq}/100 = s_{eq} + 1. \quad [2.42]$$

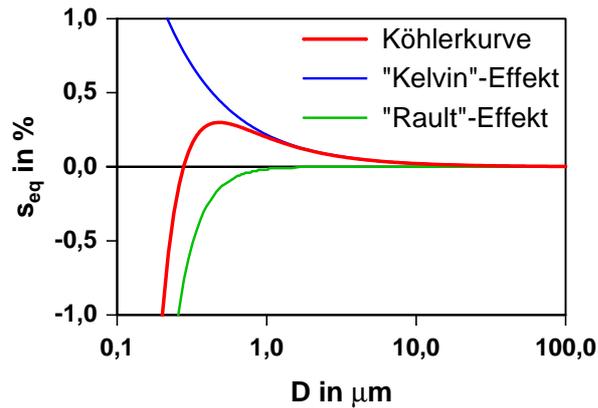


Abb. 2.1.: Köhlerkurve mit „Kelvin“-Effekt und „Raoult“-Effekt.

Wenn $\ln RH/100 \approx 1$ ist, was bei der Entstehung einer Wolke näherungsweise angenommen werden kann, gilt $\ln RH/100 \approx RH/100 - 1$ und somit:

$$s_{eq} = \frac{A}{D} - \frac{B}{D^3}. \quad [2.43]$$

Gleichungen 2.34, 2.37, 2.40 und 2.43 sind verschiedene Formen der Köhlergleichung. Der Gleichgewichtswasserdampfdruck über einem Lösungströpfchen wird durch den Krümmungseffekt (Kelvin-Effekt, siehe Gl. 2.21) erhöht und durch den Lösungseffekt (Raoult-Effekt, siehe Gl. 2.27) erniedrigt (Abb. 2.1). Bei kleinen Durchmessern dominiert der Lösungseffekt und s_{eq} ist kleiner 0, bzw. RH_{eq} ist kleiner 100 %. Im Gegensatz zu einem reinen Wassertropfen kann ein Lösungströpfchen auch bei $RH < 100$ % im Gleichgewicht mit seiner Umgebung sein. Mit zunehmendem Durchmesser des Lösungströpfchens wird die Lösung zunehmend verdünnt und der Krümmungseffekt dominiert. Je größer der gelöste Aerosolpartikel ist, desto dominanter ist der Lösungseffekt und s_{eq} wird zunehmend erniedrigt.

Die hier abgeleitete Form der Köhlergleichung 2.43 gilt nur für den einfachen Fall eines vollständig wasserlöslichen Aerosolpartikels, der aus einem reinen Salz besteht. Eine Vielzahl von Einflussfaktoren kann den Verlauf von s_{eq} beeinflussen. Im Allgemeinen bestehen Aerosolpartikel nicht aus einem einzelnen anorganischen Salz, sondern aus einer Mischung von verschiedenen, löslichen und unlöslichen Komponenten. Die Annahme einer idealen Lösung stellt ebenso eine grobe Näherung dar. Zusätzlich kann σ und somit s_{eq} durch die Bildung von Filmen an der Oberfläche, durch zum Beispiel organische Komponenten, modifiziert werden. Eine Zusammenstellung der wichtigsten Einflussfaktoren findet sich in Seinfeld und Pandis (2006) und McFiggans et al. (2006).

2.2.1. Aktivierung von Aerosolpartikeln

Aus den in Kapitel 2.2 abgeleiteten Gleichgewichtsbeziehungen über einem Lösungströpfchen lassen sich nun Aussagen treffen, ob ein Aerosolpartikel als Wolkenkondensationskern dienen kann. Für eine gegebene Übersättigung s wird das Lösungströpfchen in Abhängigkeit von s_{eq} wachsen oder schrumpfen.

Ist $s > s_{eq}$ wird es durch Kondensation von Wasserdampf anwachsen und für $s < s_{eq}$ wird es aufgrund von Evaporation schrumpfen (Gl. 2.1 und 2.66).

Die in Abbildung 2.2(a) dargestellte Gleichgewichtskurve („Köhlerkurve“) besitzt einen Maximalwert. Der Durchmesser des Lösungströpfchens für den Maximalwert wird als kritischer Durchmesser D_c (Abb. 2.2(a)) bezeichnet. Er lässt sich aus Gleichung 2.43 bestimmen:

$$\frac{ds_{eq}}{dD} = -\frac{A}{D_c^2} + \frac{3B}{D_c^4} = 0, \quad [2.44]$$

$$\rightarrow D_c = \left(\frac{3B}{A}\right)^{1/2}. \quad [2.45]$$

Setzt man Gleichung 2.45 wieder in Gleichung 2.43 ein, erhält man die zugehörige kritische Übersättigung s_c (Abb. 2.2(a)) des Lösungströpfchens:

$$s_c = \frac{A}{D_c} - \frac{B}{D_c^3}, \quad [2.46]$$

$$\rightarrow s_c = \left(\frac{4A^3}{27B}\right)^{1/2}. \quad [2.47]$$

Zunächst wird das Verhalten eines kleinen Lösungströpfchens ($s_{eq} < 0$) bei ansteigender Übersättigung betrachtet. Mit ansteigender Übersättigung wird Wasserdampf auf dem Tröpfchen kondensieren, um das Gleichgewicht zwischen Tröpfchen und Umgebung zu erhalten. Wird nun die kritische Übersättigung überschritten ($s > s_c$), ist kein Gleichgewicht mehr mit der Umgebung möglich. Auch für ein konstantes $s = \text{konst.} > s_c$ wird das Tröpfchen unendlich lange weiterwachsen. Da sich s_{eq} mit zunehmendem Durchmesser erniedrigt, wird sein Wachstum noch zusätzlich beschleunigt. Nimmt s wieder ab, wird das Tröpfchen, wenn auch zunehmend verlangsamt, immer noch weiter anwachsen, bis wieder $s = s_{eq}$ erreicht wird.

Wird s_c jedoch nicht überschritten ($s < s_c$), wird das Tröpfchen im Gleichgewicht mit seiner Umgebung bleiben und anwachsen. Für ein konstantes $s = \text{konst.} < s_c$ wird es jedoch nicht weiter anwachsen können. Bei einer Abnahme von s wird das Tröpfchen im Gleichgewicht mit seiner Umgebung schrumpfen.

Betrachtet man das Gleichgewicht ($s_{eq} = s_{fix}$) für eine feste Übersättigung $s_{fix} > 0 = \text{konstant}$, lassen sich Aussagen über dessen Stabilität hinsichtlich kleiner Änderungen des Durchmessers treffen. Für ein festes $s_{fix} > 0$ existieren zwei Gleichgewichtsdurchmesser D_1 und D_2 (Abb. 2.2(a)).

Zunächst wird ein Tröpfchen mit dem Durchmesser $D_1 < D_c$ betrachtet. Wird der Durchmesser dieses Tröpfchens, z.B. aufgrund der Kollision mit Wassermolekülen der feuchten Luft, minimal erhöht, erhöht sich auch s_{eq} . s_{eq} ist nun größer als s_{fix} in der Umgebung. Als Folge dessen wird das Tröpfchen evaporieren, bis wieder D_1 und somit $s_{eq} = s_{fix}$ erreicht ist. Wird der Durchmesser dieses Tröpfchens verringert, verringert sich s_{eq} und Wasserdampf kondensiert auf dem Tröpfchen, bis D_1 wieder erreicht ist. Das Gleichgewicht für $D < D_c$ ist somit stabil.

Betrachtet man nun ein Tröpfchen im Gleichgewicht mit seiner Umgebung bei D_2 , so ergibt sich für ein minimales Wachstum des Tröpfchens eine Verringerung von s_{eq} . Das Tröpfchen wird folglich immer

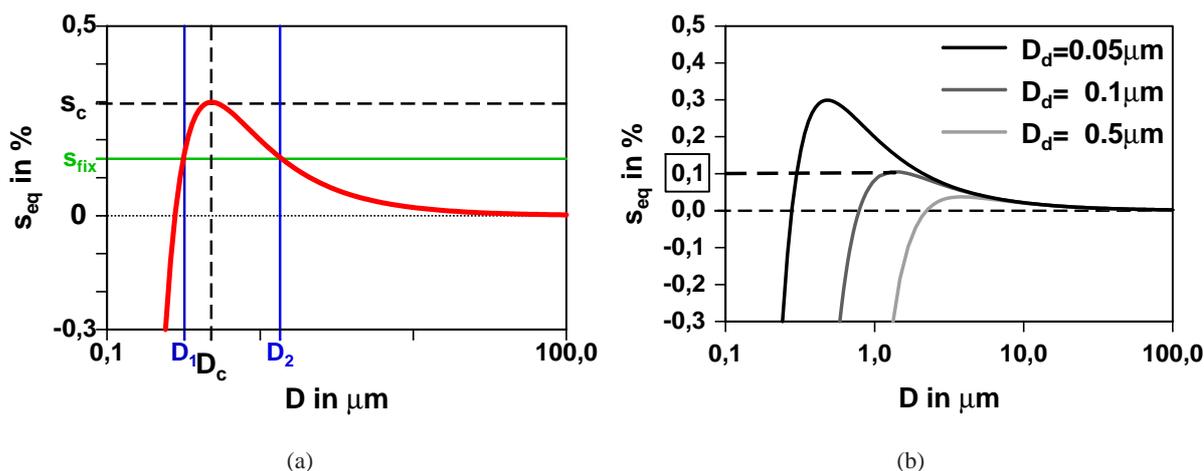


Abb. 2.2.: (a) Köhlerkurve für NaCl mit $D_d = 0.05 \mu\text{m}$. Erläuterungen im Text; (b) Köhlerkurven für drei Partikel aus Natriumchlorid mit verschiedenen trockenen Durchmessern D_d .

weiter beschleunigt anwachsen, da $s_{eq} < s_{fix}$ ist. Wird D_2 minimal erniedrigt, erhöht sich s_{eq} gegenüber s_{fix} und das Tröpfchen evaporiert und wird immer weiter schrumpfen bis $D = D_1$ erreicht wird. Das Gleichgewicht für $D > D_c$ ist somit labil.

Aufgrund der vorangegangenen Überlegungen wird ein Lösungströpfchen, dessen Durchmesser den kritischen Durchmesser D_c aufgrund einer Übersättigung der Umgebung $s > s_c$ überschreitet, schnell zur Größe eines Wolkentropfens anwachsen.

D_c und s_c eines Lösungströpfchens werden durch die Eigenschaften des gelösten Aerosolpartikels bestimmt. Für s_c , folgt unter Verwendung von Gleichung 2.41:

$$s_c = \left(\frac{4A^3 \rho_w M_s}{27 v_s \rho_s M_w D_d^3} \right)^{1/2}, \quad [2.48]$$

$$= \left(\frac{4A^3}{27 B' D_d^3} \right)^{1/2}. \quad [2.49]$$

Hierbei wurde $B' = B/D_d^3$ eingeführt. Mit zunehmendem trockenem Durchmesser des Aerosolpartikels D_d verringert sich die kritische Übersättigung s_c , da mehr gelöste Mole in der Lösung vorhanden sind (siehe Gl. 2.27 und Abb. 2.2(b)).

Mit Gleichung 2.49 kann D_d als Funktion von s_c formuliert werden. Tritt in der Atmosphäre eine Übersättigung s auf, lässt sich der trockene Partikeldurchmesser $D_d^\circ(s)$ bestimmen, für den $s = s_c$ gilt:

$$D_d^\circ(s) = \left(\frac{4A^3 \rho_w M_s}{27 v_s \rho_s M_w s^2} \right)^{1/3}, \quad [2.50]$$

$$= \left(\frac{4A^3}{27 B' s^2} \right)^{1/3}. \quad [2.51]$$

$D_d^\circ(s)$ entspricht folglich dem minimalen trockenen Partikeldurchmesser, für den ein Lösungströpfchen fähig ist, schnell zur Größe eines Wolkentropfens zu wachsen. Ein Aerosolpartikel mit $D_d \geq D_d^\circ(s)$ und

das als Folge dessen D_c überschreitet wird als aktiviert bezeichnet. In Abbildung 2.2(b) sind die Köhlerkurven für drei unterschiedlich große Aerosolpartikel, bestehend aus Natriumchlorid, dargestellt. Für $s = 0,1 \%$ ist $D_d^\circ = 0,1 \mu m$. Für alle Partikel mit $D_d > 0,1 \mu m$, wie zum Beispiel für das Partikel mit $D_d = 0,5 \mu m$, ist $s_c < s$ und sie werden aktiviert. Das Partikel mit $D_d = 0,05 \mu m$ kann somit für $s = 0,1 \%$ nicht zur Größe eines Wolkentropfens wachsen.

Ist s und die trockene Größenverteilung $n(D_d)$ der Aerosolpartikel bekannt, so lässt sich für eine konstante chemische Zusammensetzung der Partikel die Anzahldichte der aktivierten Partikel N° durch Integration von $n(D_d)$ bestimmen:

$$N^\circ(s) = \int_{D_d^\circ(s)}^{\infty} n(D_d) dD_d, \quad [2.52]$$

Alternativ kann Gleichung 2.52 auch als Funktion von s_c formuliert werden:

$$N^\circ(s) = \int_0^s n(s_c) ds_c. \quad [2.53]$$

$n(s_c)$ ergibt sich aus einer Transformation der Aerosolgrößenverteilung $n(D_d)$ in den Raum von s_c :

$$n(s_c) = \frac{dN}{ds_c} = \frac{dN}{dD_d} \frac{dD_d}{ds_c} = n(D_d) \frac{dD_d}{ds_c}. \quad [2.54]$$

Die Anzahldichte der aktivierten Aerosolpartikel N° für eine bestimmte Übersättigung s' entspricht der Anzahldichte der verfügbaren Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}(s')$ für diese Übersättigung. Die Funktion $N_{CCN}(s)$ wird in der englischen Literatur als „CCN spectrum“ bezeichnet und der Index CCN ist hierbei an den englischen Begriff „cloud condensation nuclei“ angelehnt.

Ist die maximale Übersättigung s_{max} bei der Entstehung einer Wolke und die trockene Größenverteilung $n(D_d)$ der Aerosolpartikel bekannt, lässt sich $D_d^* = D_d^\circ(s_{max})$, $N^* = N^\circ(s_{max})$ und somit die Anzahldichte der insgesamt verfügbaren Wolkenkondensationskerne in der Wolke $N_{CCN}^* = N_{CCN}(s_{max}) = N^*$ bestimmen.

2.3. Berechnung der maximalen Übersättigung

Zur Bestimmung der Anzahldichte der aktivierten Aerosolpartikel und somit der N_{CCN}^* , muss die maximale Übersättigung s_{max} , die in einer Wolke erreicht wird, bekannt sein. Hierzu bedient man sich des theoretischen Modells eines aufsteigenden Luftpakets.

Die in einem aufsteigenden Luftpaket auftretende Übersättigung $s(t)$ ist eine nichtlineare Funktion der Zeit t , welche von der Vertikalgeschwindigkeit w , bzw. der daraus resultierenden adiabatischen Abkühlung, und dem Kondensationswachstum der aktivierten Aerosolpartikel abhängt. $s(t)$ besitzt ein Maximum s_{max} , welches N_{CCN}^* bei der Entstehung einer Wolke und somit die initiale Anzahl der Wolkentropfen bestimmt.

In diesem Kapitel wird eine Gleichung für die zeitliche Änderung von $s(t)$ in einem aufsteigenden Luftpaket abgeleitet, welche die Ausgangsbasis für die meisten Parametrisierungen der Aktivierung von Aerosolpartikeln darstellt. s ist definiert als:

$$s = \frac{e}{e^\circ} - 1. \quad [2.55]$$

Unter Verwendung der Definition des Wasserdampf-mischungsverhältnisses

$$X_v = \frac{m_v}{m_a} = \frac{M_w e}{M_a p}, \quad [2.56]$$

wobei m_a die Masse der trockenen Luft, m_v die Masse des Wasserdampfs, M_a die Molmasse von Luft und p der Luftdruck ist, ergibt sich:

$$s = \frac{M_a p}{M_w e^\circ} X_v - 1. \quad [2.57]$$

Die Änderung der Übersättigung ergibt sich aus der Ableitung nach der Zeit:

$$\frac{ds}{dt} = \frac{M_a p}{M_w e^\circ} \frac{dX_v}{dt} + \frac{M_a}{M_w e^\circ} X_v \frac{dp}{dt} - \frac{M_a p}{M_w e^{\circ 2}} X_v \frac{de^\circ}{dt}, \quad [2.58]$$

bzw. umgestellt

$$\frac{ds}{dt} = \frac{M_a p}{M_w e^\circ} \frac{dX_v}{dt} - (1 + s) \left(\frac{1}{e^\circ} \frac{de^\circ}{dt} - \frac{1}{p} \frac{dp}{dt} \right). \quad [2.59]$$

Die Änderung des Luftdrucks p lässt sich aus dem hydrostatischen Gleichgewicht und der quasistatischen Annahme für ein Luftpaket ableiten (siehe z.B. Seinfeld und Pandis (2006)):

$$\frac{dp}{dt} = -\frac{gpM_a}{RT} w, \quad [2.60]$$

wobei angenommen wurde, dass die Temperatur der Umgebung des Luftpakets gleich der Temperatur des Luftpakets ist. g ist die Schwerebeschleunigung der Erde.

Die Änderung des Sättigungsdampfdrucks e° ergibt sich aus der Clausius-Clapeyron-Formel (Gl. 2.17) und der Kettenregel:

$$\frac{de^\circ}{dt} = \frac{de^\circ}{dT} \frac{dT}{dt}, \quad [2.61]$$

$$\frac{de^\circ}{dt} = \frac{l_{wv} M_w e^\circ}{RT^2} \frac{dT}{dt}. \quad [2.62]$$

Die Änderung der Temperatur in einem aufsteigenden Luftpaket ergibt sich, unter Vernachlässigung von Mischungsprozessen mit der Umgebung, zu (Pruppacher und Klett, 1997):

$$\frac{dT}{dt} = -\frac{g}{c_p} w - \frac{l_{wv}}{c_p} \frac{dX_v}{dt}. \quad [2.63]$$

c_p ist die spezifische Wärmekapazität von Luft. Gl. 2.60 und Gl. 2.62 eingesetzt in Gl. 2.59 mit Berücksichtigung von Gl. 2.63 und $dX_v/dt = -dX_c/dt$, wobei X_c das Massenmischungsverhältnis von Flüssigwasser ist, ergibt sich die Änderung der Übersättigung in einem aufsteigenden Luftpaket unter Vernachlässigung von Mischungseffekten mit der Umgebung:

$$\frac{ds}{dt} = \left(\frac{l_{wv} M_w g}{c_p RT^2} - \frac{g M_a}{RT} \right) w - \left(\frac{p M_a}{e^\circ M_w} + \frac{l_{wv}^2 M_w}{c_p RT^2} \right) \frac{dX_c}{dt}, \quad [2.64]$$

$$= \alpha w - \gamma \frac{dX_c}{dt}, \quad [2.65]$$

wobei $1 + s \approx 1$ angenommen wurde, da s im Allgemeinen in Wolken kleiner 0,01 ist. Die zeitliche Änderung der Übersättigung wird somit von einer adiabatischen Abkühlung aufgrund des Aufsteigens

($w > 0$) erhöht und gleichzeitig durch Kondensation von Wasserdampf zu Flüssigwasser ($dX_c/dt > 0$) erniedrigt. Mit Gleichung 2.65 kann s_{max} mit $ds/dt = 0$ berechnet werden. Hierfür wird jedoch die Kondensationsrate dX_c/dt benötigt, welche selbst eine Funktion der aktivierten Partikel und eine Funktion von s ist.

Das Wachstum eines einzelnen Tropfens ist gegeben durch (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$\frac{dD}{dt} = \frac{4G}{D}(s - s_{eq}), \quad [2.66]$$

$$G = \left(\frac{\rho_w RT}{e^\circ D_v M_w} + \frac{l_{wv} \rho_w}{k_a T} \left(\frac{l_{wv} M_w}{TR} - 1 \right) \right)^{-1}. \quad [2.67]$$

D_v ist die Diffusivität von Wasserdampf in Luft und k_a die thermische Leitfähigkeit der Luft. Da die Größe der Tropfen in der Größenordnung der freien Weglänge der Luftmoleküle liegt ($\approx 0,065 \mu\text{m}$ für Standardbedingungen), müssen für D_v und k_a eine modifizierte Diffusivität D'_v und eine modifizierte thermische Leitfähigkeit k'_a , welche eine Funktion der Tropfengröße sind, verwendet werden (Pruppacher und Klett, 1997). Aus Gleichung 2.66 lässt sich dX_c/dt mit Hilfe einiger Näherungen bestimmen. Nach Pruppacher und Klett (1997) folgt hierfür:

$$\frac{dX_c}{dt} \approx 2\pi \frac{\rho_w}{\rho_a} (2G)^{(3/2)} s(t) \int_0^s n(s') \left(\int_{\tau_{akt}(s')}^t s(t') dt' \right)^{1/2} ds'. \quad [2.68]$$

ρ_a ist die Luftdichte und $\tau_{akt}(s')$ ist der Zeitpunkt, bei welcher die jeweils betrachteten Aerosolpartikel aktiviert werden. $n(s') ds'$ ist die Anzahldichte der Partikel mit s_c im Intervall $[s', s' + ds']$ und entspricht somit der Anzahldichte der neu aktivierten Partikel in diesem Intervall.

Mit den Gleichungen 2.52 bis 2.68 ist das Gleichungssystem zur Berechnung der Anzahldichte der aktivierten Aerosolpartikel und somit der Wolkenkondensationskerne vollständig. Das Gleichungssystem ist jedoch nicht analytisch lösbar. Zur expliziten Lösung müssen iterative, numerische Methoden angewandt werden.

Anhand von Gleichung 2.66 und 2.68 lassen sich erste Aussagen über die Aktivierung einer Population von Aerosolpartikeln ableiten. Da die Kondensationsrate von $\tau_{akt}(s')$ abhängt, ist s_{max} und somit N_{CCN}^* abhängig von der Größenverteilung und der chemischen Zusammensetzung des Aerosols. Die Anwesenheit großer, hygroskopischer Partikel, welche frühzeitig aktiviert werden, führt zu einer Erhöhung der Kondensationsrate und damit zu einer Erniedrigung von s_{max} . Somit verhindert ihre Anwesenheit, dass kleinere Partikel aktiviert werden können (Ghan et al., 1998). Das Kondensationswachstum eines Tröpfchens ist jedoch proportional $1/D$. Große Tröpfchen wachsen demnach langsamer als kleine Tröpfchen. Große Aerosolpartikel haben so unter Umständen nicht genug Zeit ihren kritischen Durchmesser zu erreichen und können nicht aktiviert werden (Nenes et al., 2001). Ein weiterer Effekt ist, dass mit der Zeit die Größenverteilung der Tröpfchen in Folge des Wachstums immer schmaler wird.

In Abbildung 2.3 ist eine numerische Lösung des Gleichungssystems für eine Aerosolverteilung dargestellt. In einem aufsteigenden Luftpaket steigt die relative Feuchte zunächst infolge der adiabatischen Abkühlung an. Dabei wachsen die Aerosolpartikel langsam an. Übersteigt die relative Feuchte 100 % ($s > 0$), erreichen die ersten großen Partikel ihren kritischen Radius und werden aktiviert. Das schnelle

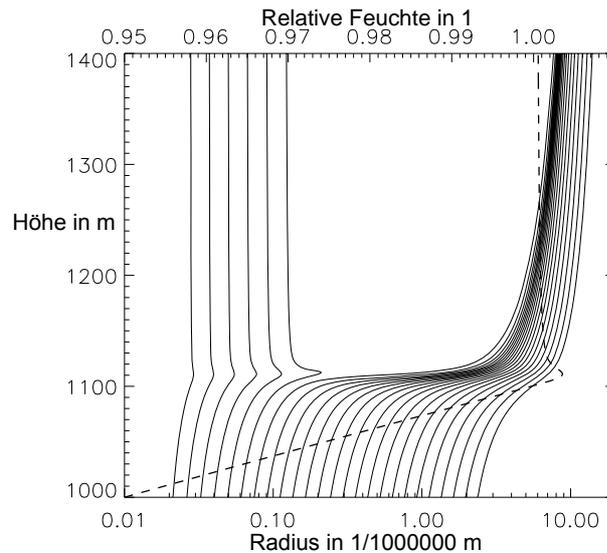


Abb. 2.3.: Änderung der Tröpfchengröße in μm für eine lognormale Aerosolverteilung bestehend aus Ammoniumsulfat mit einem mittleren Durchmesser von 140 nm , einer Anzahldichte von 300 cm^{-3} und einer Standardabweichung von $1,7$ und Verlauf der relativen Feuchte in 1 für einen konstanten Aufwind von $0,5\text{ m/s}$ (nach McFiggans et al. (2006)).

Kondensationswachstum der aktivierten Partikel wirkt nun gegen den Anstieg der Übersättigung infolge der adiabatischen Abkühlung. Mit zunehmender Anzahl von aktivierten Partikeln gleichen sich die Abkühlungsrate und die Kondensationsrate aus und die maximale Übersättigung wird erreicht. Jetzt können keine neuen Partikel mehr aktiviert werden. Durch das fortschreitende Kondensationswachstum der bereits aktivierten Partikel wird s nun wieder erniedrigt und die Partikel, welche ihren kritischen Radius bis jetzt nicht erreicht haben, schrumpfen wieder. Innerhalb der entstanden Wolke existieren nun zwei Klassen von Aerosolpartikeln. Die Partikel der ersten Klasse haben einen trockenen Radius $D_d > D_d^\circ(s_{max})$ und sind zur Größe von Wolkentropfen angewachsen. Die Partikel der zweiten Klasse mit $D_d < D_d^\circ(s_{max})$ konnten nicht anwachsen und bleiben als Aerosolpartikel zwischen den Wolkentropfen in der Wolke enthalten.

Für die Verwendung in dreidimensionalen numerischen Modellen ist eine explizite numerische Lösung des betrachteten Gleichungssystems zu aufwändig. Zudem sind eine hohe vertikale sowie zeitliche Auflösung notwendig, um die Übersättigung innerhalb der Wolke zu berechnen. In dreidimensionalen atmosphärischen Modellen muss daher auf Parametrisierungen der Aktivierung zurückgegriffen werden.

2.4. Parametrisierungen

Parametrisierungen für die Aktivierung von Aerosolpartikeln, bzw. für die Anzahl der verfügbaren Wolkondensationskerne, unterscheiden sich je nach betrachteter Fragestellung und verfügbaren Informationen in den jeweiligen atmosphärischen Modellen. Hierbei werden unterschiedliche Vereinfachungen

der Gleichungen 2.52 bis 2.68 vorgenommen, wobei zum Beispiel auf vorgeschriebene Funktionen für $N_{CCN}(s)$, uniforme Aerosolverteilungen oder auf empirische Daten zurückgegriffen wird.

Twomey (1959) entwickelte eine analytische Lösung des in Kap. 2.3 aufgestellten Gleichungssystems unter Annahme einer Potenzfunktion für $N_{CCN}(s)$:

$$N_{CCN}(s) = Cs^k, \quad [2.69]$$

mit den empirischen Konstanten C und k . Mithilfe geometrisch abgeleiteter Grenzwerte für s_{max} ergibt sich für N_{CCN}^* :

$$N_{CCN}^* = Cs_{max}^k = C^{\frac{2}{k+2}} \left(\frac{1,63 \cdot 10^{-3} w^{3/2}}{kB(3/2, k/2)} \right)^{\frac{k}{k+2}}. \quad [2.70]$$

N_{CCN}^* in cm^{-3} , w in cm/s , C in cm^{-3} und k in 1. B ist die Betafunktion und w die Vertikalgeschwindigkeit. C und k ergeben sich aus Annahmen über das vorhandene Aerosol, wobei $C = N_{CCN}(1\%)$ gilt. Für C und k existieren in der Literatur zahlreiche Werte für verschiedene Aerosolklassifizierungen. Für ein sogenanntes kontinentales Aerosol finden sich zum Beispiel die Werte $C = 600 \text{ cm}^{-3}$ und $k = 0.5$ (Hegg und Hobbs, 1992). Der Nachteil der Parametrisierung ist, dass $N_{CCN}(s)$ aufgrund der Annahme der Potenzfunktion für hohe Übersättigungen nicht begrenzt ist und $N_{CCN}(s)$ nicht direkt aus den Eigenschaften einer vorhandenen Aerosolverteilung abgeleitet werden kann. Cohard et al. (1998) entwickelte die Parametrisierung von Twomey (1959) weiter, um einen realistischeren Verlauf für $N_{CCN}(s)$, im Speziellen bei hohen Übersättigungen, zu erreichen. Gleichung 2.69 wurde hierfür ausgetauscht durch:

$$N_{CCN}(s) = Cs^k F \left(\beta_1, \frac{k}{2}, \frac{k}{2} + 1, -\beta_2 s^2 \right), \quad [2.71]$$

wobei C , k , β_1 und β_2 empirische Parameter sind, die abhängig von einer gegebenen Aerosolverteilung bestimmt werden können und F die hypergeometrische Funktion ist. Die Parametrisierung von Feingold und Heymsfield (1992) greift ebenfalls auf die von Twomey (1959) vorgeschlagene Potenzfunktion für $N_{CCN}(s)$ zurück. Parametrisierungen mit vorgeschriebenem $N_{CCN}(s)$ sind vornehmlich konzipiert für den Einsatz in Modellen, in denen keine Berechnung einer Aerosolverteilung stattfindet. Beispiele sind Prinzipstudien, welche auf räumlich und zeitlich kleine Skalen beschränkt sind oder globale Modelle ohne Aerosolmodul. Hierbei wird meist nur zwischen verschiedenen Aerosolklassifizierungen, klassischerweise „maritimes“ und „kontinentales“ Aerosol, unterschieden und die empirischen Parameter der Funktionen für $N_{CCN}(s)$ daran angepasst.

In Modellen, in welchen zeitlich und räumlich größere Skalen betrachtet werden, muss die Variabilität des Aerosols auf diesen Skalen berücksichtigt werden. Klimamodelle verwenden zum Beispiel empirisch abgeleitete Parametrisierungen, welche die Wolkentropfenanzahl N_c direkt diagnostisch aus der Masse oder der Anzahl der Aerosole (Boucher und Lohmann, 1995; Jones et al., 1994) bestimmen. Hierbei handelt es sich jedoch nicht um eine Parametrisierung der Aktivierung im eigentlichen Sinne, da direkt eine empirische Relation zwischen Aerosol und Wolkentropfenanzahl angenommen wird. Boucher und Lohmann (1995) leiten N_c direkt aus der Sulfatmasse m_{so_4} ab:

$$N_c = 10^{2,21+0,41 \log m_{so_4}}. \quad [2.72]$$

Solche rein empirischen Verfahren können die dynamischen Prozesse bei der Aerosolaktivierung jedoch nicht erfassen. Daher wurden Parametrisierungen der Aerosolaktivierung entwickelt, welche die Vertikalgeschwindigkeit berücksichtigen. Die Parametrisierung von Lin und Leaitch (1997) bestimmt N_{CCN}^* in Abhängigkeit der Vertikalgeschwindigkeit und der Anzahl der hydrophilen Aerosole N_A :

$$N_{CCN}^* = 0,1 \left(N_A \frac{w}{w + 0,0023 \text{ cm}^4 \text{ s}^{-1} N_A} \right)^{1,27}. \quad [2.73]$$

Ghan et al. (1993) entwickelte auf Basis der Gleichungen 2.52 bis 2.68 ebenfalls eine Parametrisierung welche die Vertikalgeschwindigkeit berücksichtigt:

$$N_{CCN}^* = \frac{N_A}{1 + bN_A/w}, \quad [2.74]$$

wobei der Parameter b aus einer Aerosolverteilung abgeleitet werden kann.

Eine weitere Möglichkeit zur Parametrisierung der Aktivierung ist die Verwendung von offline berechneten tabellarischen Datensätzen oder Regressionsgleichungen für die Wolkentropfenanzahl, die auf Ergebnissen von detaillierten, meist eindimensionalen, numerischen Modellen basieren. Aus zahlreichen durchgeführten numerischen Simulationen mit einem Luftpaketmodell leiteten Segal und Khain (2006) eine Parametrisierung der Wolkentropfenanzahl an der Wolkenbasis ab. Die Wolkentropfenanzahl wird hierbei aus der Vertikalgeschwindigkeit und den Parametern einer log-normalen Aerosolverteilung bestimmt.

Für die Berechnung der Aerosolaktivierung in Modellen mit einer detaillierten Behandlung des Aerosols, wie zum Beispiel in Chemie-Transport-Modellen bzw. damit gekoppelten Modellsystemen, ist eine Berücksichtigung möglichst aller jeweils modellierten Aerosoleigenschaften erstrebenswert. Dies kann durch eine direkte Berechnung von $N_{CCN}(s)$ aus der Größenverteilung des Aerosols mit Hilfe der Köhlergleichungen (siehe Kap. 2.2) erreicht werden. Parametrisierungen, welche auf diesem Vorgehen basieren, berechnen s_{max} mit Hilfe unterschiedlicher Annahmen aus Gleichung 2.65 unter Berücksichtigung der verwendeten numerischen Behandlung der Aerosolgrößenverteilung.

Die Parametrisierungen von Abdul-Razzak et al. (1998) und Nenes und Seinfeld (2003) und darauf aufbauende Erweiterungen (Fountoukis und Nenes, 2005; Abdul-Razzak und Ghan, 2000, 2002) ermöglichen eine Berechnung von s_{max} und N_{CCN}^* unter Berücksichtigung der chemischen Zusammensetzung und der Größenverteilung des Aerosols für verschiedene numerische Behandlungen des Aerosols. Im Gegensatz zu anderen Parametrisierungen ist durch die explizite Integration der jeweiligen Aerosolgrößenverteilung eine konsistente Behandlung der Aktivierung der Aerosolpartikel innerhalb der Modelle im Gegensatz zu anderen Parametrisierungen möglich. Nenes und Seinfeld (2003) berechnen s_{max} aus den Gleichungen 2.52 bis 2.68 unter Verwendung des sogenannten „population-splitting“. s_{max} wird hierbei iterativ durch eine Aufteilung der anwachsenden Lösungströpfchen in zwei Klassen bestimmt. Die Tröpfchen der ersten Klasse sind nah an ihrem kritischen Durchmesser, die Tröpfchen in der zweiten Klasse sind es nicht. Aufgrund dieser Annahme ist eine Bestimmung von s_{max} für die meisten atmosphärischen Bedingungen ohne zusätzliche empirische Daten möglich. Da jedoch ein numerisches Iterations-

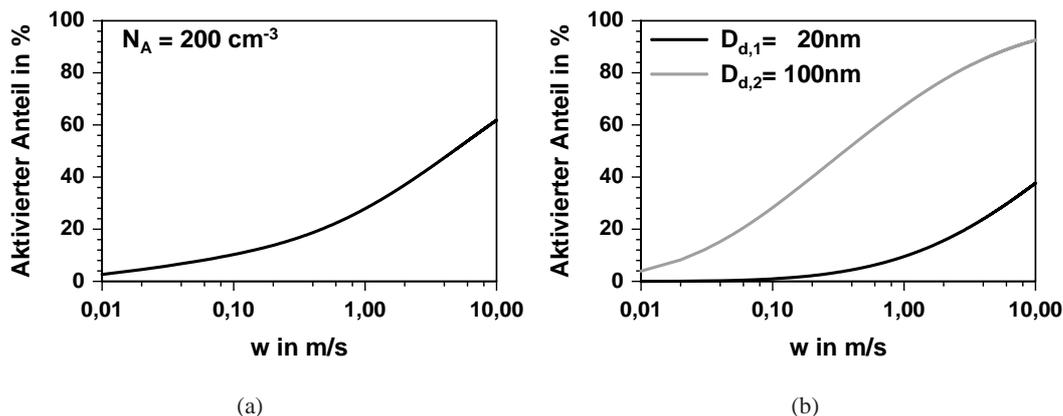


Abb. 2.4.: (a) Aktivierter Anteil von Ammoniumsulfat-Partikel in % für eine log-normal Verteilung mit einem mittleren Durchmesser von 20 nm und einer Anzahldichte von 200 cm^{-3} ; (b) Aktivierter Anteil für zwei log-normale Einzelverteilungen von Ammoniumsulfat-Partikel in % mit einem mittleren Durchmesser von 20 nm und 100 nm und einer Anzahldichte von jeweils 200 cm^{-3} .

verfahren benötigt wird, ist der rechnerische Aufwand im Vergleich zu anderen Parametrisierungen hoch. Fountoukis und Nenes (2005) modifizierten die Parametrisierung für log-normale Aerosolverteilungen.

Abdul-Razzak et al. (1998) bestimmen s_{max} aus Gleichung 2.52 bis 2.68 basierend auf einer log-normalen Aerosolverteilung und den Überlegungen aus Ghan et al. (1993) und Twomey (1959). Hierbei werden vier dimensionslose Parameter eingeführt, welche mit Hilfe detaillierter, numerischer Simulationen angepasst wurden. In Abdul-Razzak und Ghan (2000) wurde diese Parametrisierung um die Berücksichtigung mehrerer Aerosoleinzelverteilung erweitert. Da diese Parametrisierung eine konsistente und effiziente Behandlung der Aktivierung basierend auf physikalischen Prinzipien für log-normale Aerosolgrößenverteilungen ermöglicht, wird sie in dieser Arbeit verwendet. In Kapitel 4.1.1 wird die Umsetzung der Parametrisierung im Detail erläutert. Die Konkurrenz verschiedener Aerosolpartikel beim Kondensationswachstum (Ghan et al., 1998) wird in der Parametrisierung berücksichtigt. In den Abbildungen 2.4(a) und 2.4(b) ist dieser Konkurrenzeffekt, welcher mit der Parametrisierung berechnet wurde, dargestellt. Sind nur die kleineren Partikel vorhanden (Abb. 2.4(a)), können sie schon bei kleinen Vertikalgeschwindigkeiten aktiviert werden. Sind jedoch zusätzlich die größeren Partikel vorhanden (Abb. 2.4(b)), wird die Aktivierung der kleinen Partikel zunächst unterdrückt, da s_{max} bei Anwesenheit der großen Partikel niedriger ist (siehe Kap. 2.3 und 4.1.1). Sogenannte kinetische Effekte, welche durch den Einfluss der begrenzten Wachstumsgeschwindigkeit der Tröpfchen entstehen (Nenes et al., 2001) und daher die Aktivierung eines Aerosolpartikels zeitlich limitieren können, können aufgrund der Annahme einer instantanen Aktivierung der Partikel in der Parametrisierung nicht direkt berücksichtigt werden. Durch die Anpassung der Parametrisierung an die Ergebnisse der durchgeführten detaillierten, numerischen Simulationen werden sie jedoch zum Teil implizit mitberücksichtigt.

Bei allen vorgestellten Parametrisierungen handelt es sich um diagnostische Verfahren zur Bestimmung der Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne, bzw. der aktivierten Aerosolpartikel, bei der

Entstehung einer Wolke. Wird in einem numerischen Modell die Wolkentropfenanzahldichte N_c als prognostische Größe, unter Berücksichtigung der mikrophysikalischen Prozesse, explizit berechnet, müssen die Parametrisierungen in eine prognostische Form überführt werden.

Bei der Entstehung einer Wolke können die Parametrisierungen direkt zur Berechnung der Wolkentropfenanzahl verwendet werden. Die Nuklationsrate der Wolkentropfen ist dann:

$$S^{N,nuk} \approx \frac{N_{CCN}^*}{\Delta t}, \quad [2.75]$$

wobei $S^{N,nuk}$ die Nukleationsrate und Δt der verwendete Zeitschritt im jeweiligen Modell ist.

Für die Nukleation von Wolkentropfen, bzw. für die Aktivierung der Aerosolpartikel, innerhalb einer bestehenden Wolke werden zwei unterschiedliche Ansätze verfolgt.

Der erste Ansatz folgt Lohmann et al. (1999a) und wird vornehmlich in Klimamodellen verwendet. Die Nukleationsrate der Wolkentropfen folgt aus der Differenz der Anzahldichte der berechneten Wolkenkondensationskerne zur Anzahldichte der schon vorhandenen Wolkentropfen:

$$S^{N,nuk} \approx \frac{1}{\Delta t} (N_{CCN}^* - N_c). \quad [2.76]$$

Der Nachteil dieses Ansatzes ist, dass er in numerischen Modellen, welche die Größenverteilung des Aerosols und den Einfang von Aerosol bei der Aktivierung explizit berechnen, nicht anwendbar ist, da in keiner der vorgestellten Parametrisierungen die vorhanden Wolkentropfen mitberücksichtigt werden können. Als Folge dessen würden mit der Zeit zu viele kleine Partikel aktiviert werden. Ein Vorteil des Ansatzes liegt darin, dass er für alle Wolkenschichten anwendbar ist und auch innerhalb einer Wolke Partikel aktiviert werden können.

Der zweite Ansatz wurde von Ghan und Abdul-Razzak (1997) für stratiforme Wolken eingeführt. Eine Nukleation von Wolkentropfen findet nur statt, wenn Luft von außerhalb der Wolke in eine bestehende Wolke fließt:

$$S^{N,nuk} = -\nabla \cdot F_N^*. \quad [2.77]$$

F_N^* ist der Fluss von N_{CCN}^* in die Wolke. Innerhalb der Wolke findet keine Aktivierung statt. Dieser Ansatz ermöglicht eine konsistente Behandlung der Nukleation der Wolkentropfen und des Einfangs der Aerosolpartikel bei der Aktivierung und wird daher in dieser Arbeit verwendet. Die Umsetzung des Ansatzes ist in Kapitel 4.1.3 im Detail erläutert. Der Nachteil des Ansatzes ist, dass keine Aktivierung innerhalb einer Wolke berechnet werden kann. Welche Bedeutung die Aktivierung innerhalb einer Wolke hat und wann sie überhaupt stattfindet, ist Gegenstand der aktuellen Forschung (Seifert (2008) pers. Komm.).

3. Das Modellsystem COSMO-ART

Das in dieser Arbeit verwendete Modellsystem COSMO-ART (Consortium for Small scale **M**odelling - **A**erosols and **R**eactive **T**race **G**ases) wurde für Studien zur Wechselwirkung zwischen Aerosolpartikeln und Gasen mit dem Zustand der Erdatmosphäre auf einer regionalen bis kontinentalen Skala entwickelt.

Das Modell COSMO wurde zu diesem Zweck um die Behandlung der Gasphase und Partikelphase erweitert. COSMO ist ein nicht-hydrostatisches, mesoskaliges Modell, welches vom deutschen Wetterdienst entwickelt wurde und international in der operationellen Wettervorhersage und in der Atmosphärenforschung verwendet wird. Eine detaillierte Beschreibung der zugrundeliegenden Gleichungen und der numerischen Umsetzung findet sich bei Doms und Schättler (2002). COSMO-ART ist ein voll online gekoppeltes Modell-System. Die Berechnung der Variablen für den Atmosphärenzustand (z.B. Temperatur, Druck und Feuchte) und die Berechnung der Variablen für Gasphase und Aerosol (z.B. Anzahldichten und Massendichten) erfolgen gleichzeitig gekoppelt während einer Simulation. Die Transport- und Strahlungsprozesse werden durch die Verwendung identischer numerischer Methoden konsistent behandelt. Eine detaillierte Darstellung des Transports und der mikrophysikalischen Prozesse des Aerosols in COSMO-ART findet sich in Riemer (2002), Rinke (2008) und Tröndle (2008). Durch die vollständige, konsistente Kopplung können Wechselwirkungen und Rückkopplungen zwischen dem Atmosphärenzustand, den reaktiven Gasen und den Aerosolpartikeln simuliert werden. Aufgrund seiner modularen Struktur (siehe Abb. 3.1) ist COSMO-ART zudem flexibel für verschiedene Fragestellungen (Bäumer et al., 2008; Lundgren, 2006; Vogel et al., 2006b; Tröndle, 2008; Rinke, 2008) einsetzbar.

Die Behandlung der Gasphase und der chemischen Umwandlungsprozesse erfolgt mit dem Modul RADMKA, welches auf dem Chemiemechanismus RADM2 von Stockwell et al. (1990) basiert, unter Berücksichtigung der wichtigsten troposphärischen Spurengase. Die Berechnung der benötigten Photolysefrequenzen erfolgt im Modul PAPA (Bangert, 2006). Sie ist vollständig gekoppelt mit der Strahlungsroutine des COSMO-Modells, wodurch der Einfluss aller Faktoren (z.B. Bewölkung) konsistent berücksichtigt wird. Die Berechnung der Größenverteilung und der chemischen Zusammensetzung des Aerosols erfolgt mit dem Modul MADEsoot (Ackermann et al., 1998; Riemer, 2002). Die Berechnung der trockenen Deposition des Aerosols erfolgt nach Slinn (1977). Zusätzlich ist die Berechnung der optischen Eigenschaften der Aerosolpartikel nach Bäumer et al. (2004) und das Auswaschen durch Niederschlag nach Rinke (2008) im Modell-System integriert.

Die Berechnung der natürlichen Emissionen von Seesalz (Lundgren, 2006), Mineralstaub (Hoose, 2004; Vogel et al., 2006a) und biogenen gasförmigen Substanzen (Vogel et al., 1995) erfolgt gekoppelt im Modell in Abhängigkeit des Atmosphärenzustands. Die anthropogenen Emissionen stehen als

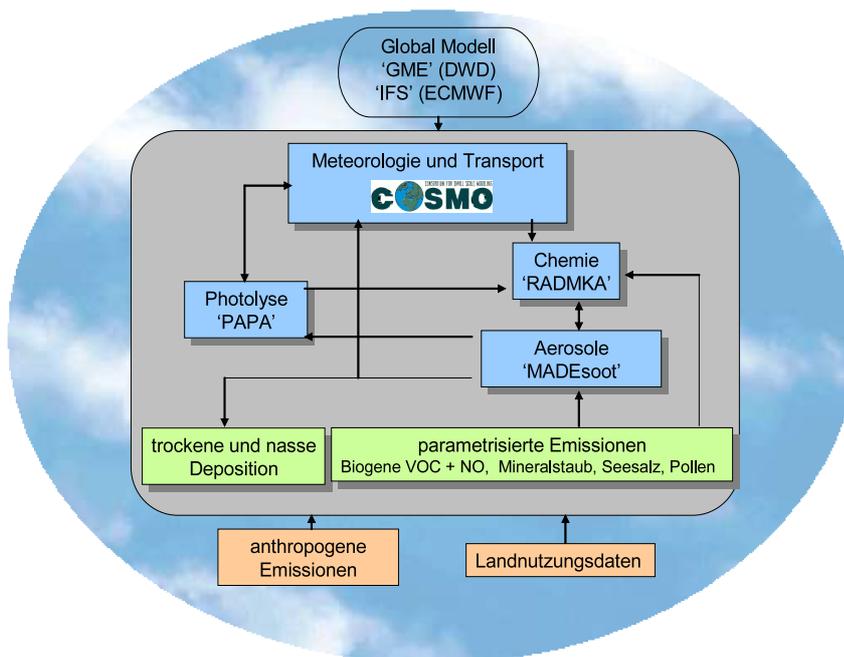


Abb. 3.1.: Schematische Darstellung des Modellsystems COSMO-ART.

Eingabedaten in zeitlich und räumlich hoher Auflösung zur Verfügung (Pregger, 2007). Als weitere externe Eingabegrößen werden Anfangs- und Randwerte der meteorologischen Felder benötigt. Hierbei besteht die Möglichkeit COSMO-ART in COSMO-ART zu nesten. In Studien mit regionalem bis lokalem Fokus kann somit der Einfluss gröberskaliger Transportprozesse auf die Gas- und Aerosolverteilung berücksichtigt werden.

3.1. Aerosolbehandlung

Das atmosphärische Aerosol besteht aus einer Vielzahl von in der Luft suspendierten, flüssigen und festen Partikeln unterschiedlicher Größenordnung. Die Größenverteilung des Aerosols kann daher als kontinuierliche Funktion angenommen werden. Da Aerosolpartikel sehr unterschiedliche chemische und physikalische Eigenschaften besitzen, wird die Größenverteilung in numerischen Modellen in Gruppen mit jeweils ähnlichen Eigenschaften unterteilt und mit analytischen Funktionen beschrieben. COSMO-ART folgt einer modalen Betrachtung des Aerosols. Die Größenverteilung des atmosphärischen Aerosols wird hierbei durch die Summe möglichst weniger analytischer Einzelverteilungen approximiert. Zur Bezeichnung der Einzelverteilungen hat sich der Begriff „Mode“ in der Literatur durchgesetzt (Roedel, 1994; Seinfeld und Pandis, 2006). Hierbei ist jedoch auf eine Abgrenzung des Begriffs vom „Modus“ einer Häufigkeitsverteilung zu achten, der als Maximalwert einer Häufigkeitsverteilung definiert ist. Im Folgenden wird der Begriff „Mode“ für die analytischen Einzelverteilungen der Aerosolpartikel verwendet. Umwandlungsvorgänge der einzelnen Moden lassen sich in Abhängigkeit der Momente der verwendeten analytischen Verteilungsfunktionen beschreiben. Hierdurch ist eine effektive numerische

Tab. 3.1.: Übersicht über die chemische Zusammensetzung der interaktiven Moden in COSMO-ART, einschließlich der Parameter der zugehörigen log-normal Verteilung. \bar{D}_l^{ini} ist der initiale Mediandurchmesser und σ_l die fixe Standardabweichung. SOA steht abkürzend für sekundäres organisches Material.

Signatur	Zusammensetzung	\bar{D}_l^{ini}	σ_l
I	SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , SOA, H_2O	0,01 μm	1,7
J	SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , SOA, H_2O	0,07 μm	2,0
RC	Ruß	0,08 μm	1,4
IM	SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , SOA, H_2O , Ruß	0,08 μm	1,7
JM	SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , SOA, H_2O , Ruß	0,08 μm	2,0

Behandlung des atmosphärischen Aerosols und seiner chemischen und mikrophysikalischen Umwandlung in COSMO-ART möglich.

In COSMO-ART werden insgesamt zwölf Moden verwendet. Sieben Moden repräsentieren Partikel aus rein natürlichen Emissionen. Es werden je drei Moden für Mineralstaub und Seesalzpartikel und eine Mode für Pollen verwendet. Details hierzu finden sich in Hoose (2004), Lundgren (2006) und Vogel et al. (2006b).

Die Aerosolpartikel aus anthropogenen und biogenen Quellen werden durch fünf interaktive Moden repräsentiert. Es werden zwei Moden für sekundäre Aerosolpartikel (I, J) bestehend aus anorganischen Salzen, organischen Substanzen und Wasser, eine Mode für reine Rußpartikel (RC) und zwei Moden für Mischpartikel (IM, JM) verwendet. Als sekundäres Aerosol werden Partikel bezeichnet, die durch Nukleation aus der Gasphase entstehen. Für die Partikel in jeder Mode wird eine interne Mischung angenommen. Jedes Partikel besteht somit aus allen in der jeweiligen Mode berücksichtigten Substanzen, wobei die Zusammensetzung über der Größenverteilung konstant ist. In Tabelle 3.1 sind die Eigenschaften der fünf interaktiven Moden aufgeführt.

Die Moden I und J entstehen durch Kondensation von Schwefelsäuredampf (H_2SO_4) zu Schwefelsäuretröpfchen. Die reine Rußmode R entsteht durch anthropogene Emissionen (Pregger, 2007) und die gemischten Moden IM und JM entstehen durch Koagulation von I oder J mit RC, IM oder JM. Der jeweilige Anteil von Sulfat, Nitrat, Ammonium und Wasser in I, J, IM und JM wird durch Annahme eines chemischen Gleichgewichts der Komponenten mit der Gasphase bestimmt. Eine ausführliche Darstellung der chemischen Umwandlungen und der Koagulation zwischen den Moden findet sich in Riemer (2002).

3.1.1. Mathematische Beschreibung des Aerosols

Jede Mode l wird mit einer Anzahldichteverteilungsfunktion $n_l(D)$ bezüglich des Partikeldurchmessers D beschrieben:

$$n_l(D) = \frac{dN_l}{dD}, \quad [3.1]$$

wobei N_l die Gesamtanzahldichte der Partikel in Mode l ist. Ist $n_l(D)$ bekannt, folgt N_l aus:

$$N_l = \int_0^{\infty} n_l(D) dD. \quad [3.2]$$

Die Größenverteilung des Aerosols $n(D)$ und die Gesamtanzahldichte N der Aerosolpartikel ergeben sich aus der Summe der einzelnen Moden:

$$n(D) = \sum_l n_l(D), \quad [3.3]$$

$$N = \sum_l N_l = \sum_l \int_0^{\infty} n_l(D) dD. \quad [3.4]$$

Die mathematische Beschreibung der einzelnen Moden erfolgt nach einem Vorschlag von Whitby und Sverdrup (1973) mit logarithmischen Normalverteilungen:

$$n_l(\ln D) = \frac{N_l}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_l} \exp\left(-\frac{\ln^2(D/\bar{D}_l)}{2 \ln^2 \sigma_l}\right), \quad [3.5]$$

bzw. ausgedrückt als Funktion von D :

$$n_l(D) = \frac{1}{D} \frac{N_l}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_l} \exp\left(-\frac{\ln^2(D/\bar{D}_l)}{2 \ln^2 \sigma_l}\right). \quad [3.6]$$

σ_l ist die geometrische Standardabweichung und \bar{D}_l der Mediandurchmesser der Verteilung. Durch N_l , σ_l und \bar{D}_l wird $n_l(D)$ eindeutig bestimmt. Zur Berechnung von $n_l(D)$ müssen somit die zeitlichen Änderungen von N_l , σ_l und \bar{D}_l bestimmt werden. Da eine Formulierung des Gleichungssystems für N_l , σ_l und \bar{D}_l für gleichzeitig ablaufende Prozesse nicht möglich ist (Whitby et al., 1991), wird die Änderung von $n_l(D)$ als Funktion der Momente der Verteilungsfunktion formuliert. Für die Bestimmung von $n_l(D)$ sind drei Momente, aufgrund der drei freien Parameter N_l , σ_l und \bar{D}_l , erforderlich.

Die Momente einer Verteilung $n_l(D)$ sind definiert als:

$$M_j = \int_0^{\infty} D^j n_l(D) dD. \quad [3.7]$$

Das nullte Moment ($j = 0$) entspricht somit der Anzahldichte N_l der Mode l (siehe Gleichung 3.2). Das zweite Moment ($j = 2$) ist der Oberflächendichte O_l proportional und das dritte Moment ($j = 3$) ist der Volumendichte V_l bzw. der Massendichte m_l proportional:

$$N_l = M_0, \quad [3.8]$$

$$O_l = \pi \int_0^{\infty} D^2 n_l(D) dD = \pi M_2, \quad [3.9]$$

$$V_l = \frac{\pi}{6} \int_0^{\infty} D^3 n_l(D) dD = \frac{\pi}{6} M_3, \quad [3.10]$$

$$m_l = \frac{\pi}{6} \rho_p \int_0^{\infty} D^3 n_l(D) dD = \frac{\pi}{6} \rho_p M_3, \quad [3.11]$$

wobei ρ_p die Dichte der einzelnen Partikel ist. Zur Bestimmung von $n_l(D)$ müssen Bilanzgleichungen für drei Momente gelöst werden. Dies ist jedoch numerisch sehr aufwändig. In COSMO-ART wird daher σ_l für jede Mode konstant gehalten. Da die simulierten Größenverteilungen mittlere Verhältnisse

für ein großes Volumen darstellen, ist diese Näherung zulässig. Hierdurch reduziert sich der benötigte Rechenaufwand signifikant, da auf eine Bilanzgleichung verzichtet werden kann. Zur eindeutigen Bestimmung von $n_l(D)$ genügt somit die Lösung der Bilanzgleichungen für zwei Momente der Verteilung. In COSMO-ART werden Bilanzgleichungen für N_l und m_l gelöst, welche nach Gleichung 3.8 und 3.11 dem nullten und dritten Moment von $n_l(D)$ proportional sind.

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_l}{\partial t} = & ADV_{N,l} + DIFF_{N,l} + KONV_{N,l} \\ & - KOAG_{N,l} - KOAG_{N,l}^{\circ} - SED_{N,l} + NUKL_{N,l=i} - WASH_{N,l}, \end{aligned} \quad [3.12]$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial m_l}{\partial t} = & ADV_{m,l} + DIFF_{m,l} + KONV_{m,l} \\ & - KOAG_{m,l} - SED_{m,l} + NUKL_{m,l=i} + KOND_{m,l} - WASH_{m,l}. \end{aligned} \quad [3.13]$$

Die einzelnen Terme sind:

<i>ADV</i>	Advektion
<i>DIFF</i>	turbulente Diffusion
<i>KONV</i>	subskaliger, konvektiver Transport
<i>KOAG</i> [°]	Intramodale Koagulation
<i>KOAG</i>	Intermodale Koagulation
<i>SED</i>	Sedimentation
<i>NUKL</i>	Nukleation in Mode I
<i>KOND</i>	Kondensation
<i>WASH</i>	Auswaschen durch Regen

Die Behandlung der Advektion, der turbulenten Diffusion und des subskaligen konvektiven Transports erfolgt konsistent zur Behandlung der Skalare des COSMO-Modells. Die numerische Umsetzung dieser Terme ist in Rinke (2008) und Tröndle (2008) beschrieben. Das Auswaschen durch Regen folgt Rinke (2008). Die restlichen Terme werden in Riemer (2002) ausführlich beschrieben.

3.2. Wolkenschema

Das in COSMO-ART verwendete Wolkenschema entspricht dem operationell zur Wettervorhersage genutzten Wolkenschema des COSMO-Modells. Das Wolkenschema ist ein sogenanntes Bulk-Wolkenschema. Das Wasser in der Atmosphäre wird in möglichst wenige Kategorien unterteilt und nur prognostische Gleichungen für die Massenanteile gelöst. Dies macht das Schema effizient. Aus dem Massenanteil, welcher dem ersten Moment einer Anzahldichteverteilungsfunktion $n_c(m_c)$ proportional ist, wobei m_c die Masse eines Wolkentropfens ist, kann die Form von $n_c(m_c)$ abgeleitet werden, sofern diese nur einen freien Parameter besitzt. In COSMO werden fünf Kategorien von Wasser in der Atmosphäre berücksichtigt. Es wird zwischen Kategorien mit vernachlässigbarer Fallgeschwindigkeit und niederschlagsbildenden Kategorien unterschieden. Zur ersten Gruppe gehören der Flüssigwassergehalt q_c , der

Wolkeneisgehalt q_i und der Wasserdampf q_v . Zur zweiten Gruppe gehören der Regen q_c und der Schnee q_s . q_x bezeichnet jeweils den Massenanteil der Kategorie x . Als Regen wird ein Tropfen mit einer Masse größer als $2,6 \cdot 10^{-10}$ kg bezeichnet, was einem Durchmesser von $80 \mu m$ entspricht (Seifert und Beheng, 2001; Seifert, 2008). Als prognostische Gleichungen ergeben sich:

$$\frac{\partial q_{c,i}}{\partial t} = ADV_{c,i} + DIFF_{c,i} + S_{c,i}, \quad [3.14]$$

$$\frac{\partial q_{r,s}}{\partial t} = ADV_{r,s} + FALL_{r,s} + S_{r,s}. \quad [3.15]$$

Der erste Term auf der rechten Seite beschreibt jeweils die Advektion von q_x . S_x sind die mikrophysikalischen Quellen und Senken der q_x . Für q_c und q_i wird der Beitrag infolge der Fallgeschwindigkeit $FALL_x$ im Vergleich zur turbulenten Diffusion vernachlässigt. Im Gegensatz hierzu sind für q_r und q_s die turbulenten Flüsse klein im Vergleich zur mittleren Fallgeschwindigkeit und die turbulente Diffusion $DIFF_x$ wird vernachlässigt. Die Umsetzung von ADV_x , $DIFF_x$ und $FALL_x$ wird in Doms et al. (2005) beschrieben. Die S_x beschreiben den spezifischen Transfer von Wasser zwischen den einzelnen Kategorien q_x :

$$S_v = -S^{cond} + S^{ev} - S_i^{dep} - S_s^{dep} - S^{nuc}, \quad [3.16]$$

$$S_c = S^{cond} - S^{au} - S^{ac} - S_c^{frz} + S_i^{melt} - S^{rim} - S^{shed}, \quad [3.17]$$

$$S_i = S^{nuc} + S_c^{frz} + S_i^{dep} - S_i^{melt} - S_i^{au} - S^{aud} - S^{agg} - S_i^{cri}, \quad [3.18]$$

$$S_r = S_c^{au} + S^{ac} - S^{ev} + S^{shed} - S_r^{cri} - S_r^{frz} + S_s^{melt}, \quad [3.19]$$

$$S_s = S_i^{au} + S^{aud} + S^{agg} + S^{rim} + S_s^{dep} + S_i^{cri} + S_r^{frz} - S_s^{melt}. \quad [3.20]$$

Die Summe der S_x ist Null. Die Transferraten sind im Einzelnen:

S^{cond}	Kondensation und Evaporation von Wolkenwasser
S^{au}	Autokonversion von Wolkenwasser zu Regenwasser
S^{ac}	Einfang von Wolkentropfen durch Regen / Akkreszenz
S^{ev}	Evaporation von Regenwasser
S^{nuc}	heterogene Nukleation von Wolkeneis
S_c^{frz}	homogenes Gefrieren von Wolkenwasser zu Wolkeneis
S_i^{dep}	Depositionswachstum und Sublimation von Wolkeneis
S_i^{melt}	Schmelzen von Wolkeneis zu Wolkenwasser
S_i^{au}	Autokonversion von Wolkeneis zu Schnee durch Aggregation
S^{aud}	Autokonversion von Wolkeneis zu Schnee durch Deposition
S^{agg}	Einfang von Wolkeneis durch Schnee
S^{rim}	Bereifen von Schnee durch Wolkenwasser
S^{shed}	Bildung von Regen durch Einfang von Wolkenwasser durch Schnee
S_i^{cri}	Bildung von Schnee durch Einfang von Wolkeneis durch Regen
S_r^{cri}	Bildung von Schnee durch Gefrieren von Regen aufgrund des Einfangs von Wolkeneis

S_r^{frz}	Gefrieren von Regen zu Schnee
S_s^{dep}	Depositionswachstum und Sublimation von Schnee
S_s^{melt}	Schmelzen von Schnee zu Regenwasser

Betrachtet man eine sogenannte warme Wolke, in der keine feste Wasserphase auftritt ($q_i = 0$, $q_s = 0$), müssen zur Bestimmung von q_c nur S^{cond} , S^{au} und S^{ac} berücksichtigt werden.

Die Rate S^{cond} wird durch eine sogenannte Sättigungsadjustierung bestimmt. Da Kondensationsprozesse in der Atmosphäre schnell ablaufen, können sie in mesoskaligen numerischen Modellen aufgrund ihrer begrenzten räumlichen und zeitlichen Auflösung nicht explizit berechnet werden. Es wird daher von der Näherung ausgegangen, dass sich die Wasserphasen q_v und q_c in der Atmosphäre immer im Sättigungsgleichgewicht (siehe Kap. 2.1.1) befinden. Tritt innerhalb einer Gitterbox eine Abweichung vom Gleichgewicht auf, zum Beispiel infolge einer adiabatischen Abkühlung, wird das Sättigungsgleichgewicht durch eine iterative Anpassung von q_v , q_c und der Temperatur T wiederhergestellt. Für die zu q_v korrespondierende relative Feuchte gilt somit immer $RH \leq 100\%$. Für die Rate S^{cond} folgt (Doms et al., 2005):

$$S^{cond} \approx \frac{q_c^\circ - q_c}{\Delta t}, \quad [3.21]$$

hierbei bezeichnet q_c° den berechneten Flüssigwassergehalt im Sättigungsgleichgewicht. Für $q_c^\circ > q_c$ wird q_c somit auf Kosten von q_v auf den Wert q_c° erhöht, was der Kondensation von Wasser entspricht. Für $q_c^\circ < q_c$ wird q_c zu Gunsten von q_v auf den Wert q_c° erniedrigt, was der Evaporation von Wasser entspricht.

Für die Autokonversion S^{au} wird, in der Version 4.0 des COSMO-Modells, die Parametrisierung von Seifert und Beheng (2001) verwendet. Seifert und Beheng (2001) nehmen eine Gammagrößenverteilung der Wolkentropfen $n_c(m_c)$ an:

$$n_c(m_c) = a_1 m_c^\nu e^{-a_2 m_c}, \quad [3.22]$$

wobei m_c die Masse eines Wolkentropfens ist. a_1 , a_2 und ν sind Parameter der Gammaverteilung. Die Autokonversion S^{au} wird unter Verwendung der Ähnlichkeitstheorie parametrisiert:

$$S^{au} = \frac{k_c}{20m_c^*} \frac{(\nu+2)(\nu+4)}{(\nu+1)^2} q_c^2 \frac{q_c^2 \rho_h^3}{N_{c,konst}^2} \left(1 + \frac{\Phi_{au}(\tau)}{(1-\tau)^2} \right). \quad [3.23]$$

k_c ist der Koeffizient der Koagulationsfunktion, Φ_{au} eine universelle Funktion, $\tau = 1 - q_c/(q_c + q_r)$ eine dimensionslose Zeitskala, $N_{c,konst}$ eine vorgegebene konstante Tropfenzahldichte, ρ_h die Dichte feuchter Luft und $m_c^* = 2,6 \cdot 10^{-10}$ kg die Trennmasse zwischen Wolken- und Regentropfen. Die Parametrisierung von Seifert und Beheng (2001) ist für numerische Modelle, welche das nullte und erste Moment von $n_c(m_c)$ berücksichtigen, konzipiert. Da im COSMO-Modell nur q_c berechnet wird, muss für das nullte Moment, welches der Anzahldichte der Wolkentropfen entspricht, ein fester Wert vorgegeben werden. In der operationellen Wettervorhersage wird für $N_{c,konst}$ der Wert 500 cm^{-3} verwendet (Seifert, 2008).

Die Akkreszenz S^{ac} , welche den Einfang von Wolkentropfen durch Regen beschreibt, wird ebenfalls nach Seifert und Beheng (2001) parametrisiert:

$$S^{ac} = k_{cr}q_cq_r\rho_h\Phi_{ac}(\tau), \quad [3.24]$$

wobei k_{cr} der Koeffizient der Koagulationsfunktion für Wolkenwasser und Regen ist und Φ_{ac} die universelle Funktion für Akkreszenz.

Die verwendeten Parametrisierungen der Transferraten, welche die kalte Phase der Wolke (q_i, q_s) betreffen, und Details zur numerischen Umsetzung werden in der Dokumentation von Doms et al. (2005) beschrieben. Die optischen Eigenschaften der Wolken werden in COSMO-ART in Abhängigkeit von q_c parametrisiert (Ritter und Geleyn, 1992).

4. Kopplung von Aerosol und Wolken in COSMO-ART

Mit dem Modellsystem COSMO-ART kann die räumliche und zeitliche Verteilung des troposphärischen Aerosols in Abhängigkeit der anthropogenen Emissionen auf der regionalen bis kontinentalen Skala berechnet werden (siehe Kap. 3). Die Behandlung der Wolken in COSMO-ART folgt dem Wolkenschema des COSMO-Modells (siehe Kap. 3.2). Das Wolkenschema verwendet nur Bilanzgleichungen für die Massenanteile und ist daher sehr effizient in seiner numerischen Behandlung. Dennoch beinhaltet es die wichtigsten mikrophysikalischen Prozesse zur Beschreibung der Wolken und des Niederschlags.

Die Umsetzung der Wechselwirkung zwischen Aerosol und Wolken in COSMO-ART basiert auf Erweiterungen der bisher verwendeten Verfahren zur Aerosol- und Wolkenbehandlung. Die Aktivierung des Aerosols erfolgt konsistent mit der numerischen Behandlung des Aerosols, wobei die Bilanzgleichungen für die einzelnen Aerosolmoden um die Behandlung der Aerosolaktivierung als Senke erweitert werden. Da das verwendete Wolkenschema in seiner bisherigen Form nur auf Bilanzgleichungen für die Massenanteile basiert, wird es um eine Bilanzgleichung für die Anzahldichte der Wolkentropfen erweitert. Diese enthält die Aktivierung des Aerosols als Quelle und berücksichtigt die mikrophysikalischen Prozesse konsistent zu den Bilanzgleichungen der Massenanteile. Die berechneten Anzahldichten der Wolkentropfen werden zur Berechnung der Autokonversionsrate von Wolkentropfen zu Regentropfen verwendet. Hierdurch wird der Einfluss des Aerosols auf die Regenbildung berücksichtigt und als Folge die Eigenschaften und die Verteilung der Wolken in Abhängigkeit des Aerosols modifiziert.

4.1. Aerosolaktivierung

Die Berechnung der Anzahl- und Massendichten des aktivierten Aerosols basiert auf einer direkten Verwendung der Köhlergleichungen. Zunächst wird der minimale Durchmesser zur Aktivierung $D_{d,l}^* = D_{d,l}^{\circ}(s_{max})$ für jede Mode berechnet (siehe Gl. 2.51) und anschließend die zugehörigen Anzahldichten- und Massendichtenverteilungsfunktionen integriert.

Da es sich bei den in COSMO-ART enthaltenen anthropogenen Aerosol-Moden jeweils um interne Mischungen handelt, muss der Parameter B'_i bzw. B_l der Köhlerfunktion (Gl. 2.43) in Abhängigkeit der Zusammensetzung und der Eigenschaften der einzelnen Komponenten i der jeweiligen Mode l bestimmt werden. Zudem enthalten die Moden zum Teil unlösliches Material in Form von Ruß, welches mitberücksichtigt werden muss. Die Berücksichtigung der internen Mischung bei der Aktivierung folgt dem

Vorschlag von Abdul-Razzak und Ghan (2000). Nach Pruppacher und Klett (1997) gilt für ein Aerosolpartikel, welches unlösliches Material enthält:

$$B' = \frac{v_s M_w \rho_p \varepsilon_p}{M_s \rho_w}.$$

$\varepsilon_p = m_s/m_p$ ist der Anteil der gesamten löslichen Masse $m_s = \sum_i m_{s,i}$ an der Gesamtmasse $m_p = \sum_i m_i$ des Partikels und ρ_p ist die Dichte des Partikels. m_i ist die Masse einer einzelnen Komponente, $m_{s,i}$ die lösliche Masse einer Komponente und M_s die molare Masse des löslichen Anteils des Partikels. Zusätzlich wurde eine ideale Lösung angenommen. Im Falle eines intern gemischten Partikels müssen nun mittlere Größen verwendet werden. Nach Hänel (1976) gilt:

$$\begin{aligned} \bar{v}_s &= \frac{1}{n_s} \sum_i v_{s,i} n_{s,i} = \frac{1}{\sum_i n_{s,i}} \sum_i v_{s,i} n_{s,i} = \frac{1}{\sum_i m_{s,i}/M_i} \sum_i v_{s,i} \frac{m_{s,i}}{M_i}, \\ \bar{M}_s &= \frac{m_s}{n_s} = \frac{\sum_i m_{s,i}}{\sum_i m_{s,i}/M_i}, \\ \bar{\rho}_p &= \frac{1}{\sum_i m_i / (m_p \rho_i)} = \frac{\sum_i m_i}{\sum_i m_i / \rho_i}. \end{aligned}$$

n_s ist die gesamte Molenanzahl der wasserlöslichen Komponenten, $n_{s,i}$ ist die Anzahl der Mole einer Komponente, M_i ist die Molmasse einer Komponente und ρ_i die Dichte einer Komponente. Für B'_i des intern gemischten Partikels folgt somit:

$$B'_{l,intern} = \left(\frac{1}{\sum_i m_{s,i}/M_i} \sum_i v_{s,i} \frac{m_{s,i}}{M_i} \right) M_w \left(\frac{\sum_i m_i}{\sum_i m_i / \rho_i} \right) \left(\frac{\sum_i m_{s,i}}{\sum_i m_i} \right) \left(\frac{\sum_i m_{s,i}/M_i}{\sum_i m_{s,i}} \right) \frac{1}{\rho_w}.$$

Mit der Einführung von $r_i = m_i/m_p$ und $\varepsilon_i = m_{s,i}/m_i$ folgt $B'_{l,intern}$ für einen intern gemischten Aerosolpartikel:

$$B'_{l,intern} = \frac{M_w \sum_i v_{s,i} r_i \varepsilon_i / M_i}{\rho_w \sum_i r_i / \rho_i}. \quad [4.1]$$

Für Gleichung 4.1 müssen die Eigenschaften der einzelnen Komponenten bekannt sein. Die Eigenschaften der anorganischen Salze und des Rußanteils sind bekannt. Für die organischen Anteile der Partikel wird in dieser Arbeit die Annahme getroffen, dass sie voll wasserlöslich sind und nicht in der Lösung dissoziieren.

Mit $B'_{l,intern}$ kann nun $D_{d,l}^*$ für jede Mode mit Gleichung 2.51 in Abhängigkeit von s_{max} bestimmt werden:

$$D_{d,l}^* = \left(\frac{4A^3}{27B'_{l,intern} s_{max}^2} \right)^{1/3}, \quad [4.2]$$

wobei das Volumen des trockenen Aerosolpartikels gegenüber dem Volumen des Lösungströpfchens vernachlässigt wurde.

Zur Bestimmung von A (Gl. 2.41) wird die Oberflächenspannung σ von reinem Wasser verwendet (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$\sigma = 0,0761 - 1,55 \cdot 10^{-4}(T - 273), \quad [4.3]$$

mit T in K und σ in J/m^2 .

Die Anzahldichte der aktivierten Aerosolpartikel $N_l^* = N_l^\circ(s_{max})$ in einer Mode l folgt nach Gleichung 2.52 aus der Integration der Anzahldichtenverteilung $n_l(D_d)$ des trockenen Aerosols:

$$N_l^* = \int_{D_{d,l}^*}^{\infty} n_l(D_d) dD_d. \quad [4.4]$$

Für $n_l(D_d)$ werden in COSMO-ART logarithmische Normalverteilungen verwendet (siehe Gl. 3.6):

$$n_l(D_d) = \frac{1}{D} \frac{N_l}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_l} \exp\left(-\frac{\ln^2(D_d/\bar{D}_{d,l})}{2 \ln^2 \sigma_l}\right).$$

Für das Integral in Gleichung 4.4 ergibt sich nun (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$N_l^* = \frac{N_l}{2} - \frac{N_l}{2} \operatorname{erf}\left(\frac{\ln(D_{d,l}^*/\bar{D}_{d,l})}{\sqrt{2} \ln \sigma_l}\right). \quad [4.5]$$

Hierbei ist erf die sogenannte Fehlerfunktion:

$$\operatorname{erf}(y) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^y e^{-y'^2} dy'.$$

Analog zur Anzahldichte lässt sich die Massendichte der aktivierten Partikel aus der Massendichtenverteilungsfunktion $n_{l,m}(D_d) = \pi/6\rho_p D_d^3 n_l(D_d)$ bestimmen:

$$m_l^* = \int_{D_{d,l}^*}^{\infty} n_{l,m}(D_d) dD_d. \quad [4.6]$$

Ein Vorteil bei der Verwendung von logarithmischen Normalverteilungen für $n_l(D_d)$ ist, dass sich auch für $n_{l,m}(D_d)$ eine logarithmische Normalverteilung ergibt (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$n_{l,m}(D_d) = \frac{1}{D} \frac{m_l}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_{l,m}} \exp\left(-\frac{\ln^2(D_d/\bar{D}_{m,l})}{2 \ln^2 \sigma_{l,m}}\right).$$

Hierbei ist m_l die Gesamtmasse, $\bar{D}_{m,l}$ der Mediandurchmesser und $\sigma_{l,m}$ die geometrische Standardabweichung von $n_{l,m}(D_d)$. Somit ergibt sich Gleichung 4.6 analog zu Gleichung 4.5:

$$m_l^* = \frac{m_l}{2} - \frac{m_l}{2} \operatorname{erf}\left(\frac{\ln(D_{d,l}^*/\bar{D}_{m,l})}{\sqrt{2} \ln \sigma_{l,m}}\right). \quad [4.7]$$

$\bar{D}_{m,l}$ und $\sigma_{l,m}$ von $n_{l,m}(D_d)$ lassen sich aus den Parametern von $n_l(D_d)$ bestimmen (Seinfeld und Pandis, 2006):

$$\begin{aligned} \sigma_{l,m} &= \sigma_l, \\ \ln \bar{D}_{m,l} &= \ln \bar{D}_l + 3 \ln^2 \sigma_l. \end{aligned}$$

Eingesetzt in Gleichung 4.7 ergibt sich die Massendichte der aktivierten Partikel zu:

$$m_l^* = \frac{m_l}{2} - \frac{m_l}{2} \operatorname{erf}\left(\frac{\ln(D_{d,l}^*/\bar{D}_l) - \frac{3 \ln \sigma_l}{\sqrt{2}}}{\sqrt{2} \ln \sigma_l}\right). \quad [4.8]$$

Mit Gleichung 4.5 und Gleichung 4.8 wird die Anzahldichte und die Massendichte der aktivierten Aerosolpartikel für jede Mode bestimmt.

4.1.1. Berechnung der maximalen Übersättigung

Zur Berechnung von $D_{d,l}^*$ muss die maximale Übersättigung s_{max} bestimmt werden. Die Berechnung von s_{max} erfolgt mit der Parametrisierung von Abdul-Razzak und Ghan (2000) (siehe Kap. 2.4). Die maximale Übersättigung wird in Abhängigkeit der Eigenschaften der einzelnen Moden und der Vertikalgeschwindigkeit berechnet. Die Parametrisierung basiert auf einer Lösung des in Kapitel 2.3 beschriebenen Gleichungssystem, wobei vier dimensionslosen Parametern eingeführt werden, welche aus einer expliziten numerischen Lösung des Gleichungssystems abgeleitet wurden. Ist die vertikale Windgeschwindigkeit w und die Eigenschaften der einzelnen Aerosolmoden bekannt, folgt s_{max} aus:

$$s_{max} = \left\{ \sum_l \frac{1}{\bar{s}_l^2} \left[f_l \left(\frac{\zeta}{\eta_l} \right)^{\frac{3}{2}} + g_l \left(\frac{\bar{s}_l^2}{\eta_l + 3\zeta} \right)^{\frac{3}{4}} \right] \right\}^{-\frac{1}{2}}, \quad [4.9]$$

mit den vier dimensionslosen Parametern

$$\begin{aligned} \zeta &= \frac{2A}{3} \left(\frac{\alpha w}{G} \right)^{\frac{1}{2}}, \\ \eta_l &= \frac{(\alpha w / G)^{\frac{3}{2}}}{2\pi\rho_w\gamma N_l}, \\ f_l &= 0,5e^{(2,5\ln^2\sigma_l)}, \\ g_l &= 1 + 0,25\ln\sigma_l, \end{aligned}$$

mit G aus Gleichung 2.66, α und γ aus Gleichung 2.65 und A aus Gleichung 2.41. N_l ist die Anzahldichte der Mode l , σ_l ist die Standardabweichung der Mode l und \bar{s}_l ist die kritischen Übersättigung (Gl. 2.49) für den mittleren Durchmesser \bar{D}_l der Mode l :

$$\bar{s}_l = \left(\frac{4A^3}{27B'\bar{D}_l^3} \right)^{1/2}.$$

Für die Berechnung von G (Gl. 2.67) muss eine modifizierte Diffusivität für Wasserdampf D'_v in Abhängigkeit der Größe der einzelnen Tröpfchen verwendet werden. Die Größe der anwachsenden Tröpfchen ist jedoch nicht bekannt und es werden keine einzelnen Tröpfchen, sondern ein Ensemble unterschiedlich großer Tröpfchen, betrachtet. Daher wird eine mittlere modifizierte Diffusivität \bar{D}'_v nach Fountoukis und Nenes (2005) verwendet:

$$\bar{D}'_v = \frac{D_v}{D_{d,big} - D_{d,low}} \left(D_{d,big} - D_{d,low} - \Psi \ln \left(\frac{D_{d,big} + \Psi}{D_{d,low} + \Psi} \right) \right), \quad [4.10]$$

mit

$$\begin{aligned} \Psi &= \frac{2D_v}{\alpha_c} \left(\frac{2\pi M_w}{RT} \right)^{1/2}, \\ D_{d,big} &= 5 \cdot 10^{-6} \text{m}, \\ D_{d,low} &= \min(0,207683\alpha_c^{-0,33048}, 5) \cdot 10^{-6} \text{m}. \end{aligned}$$

$D_{d,big}$ und $D_{d,low}$ sind die obere bzw. untere Grenze für die Tröpfchendurchmesser. Für den Akkomodationskoeffizienten α_c wird, in Konsistenz zu Abdul-Razzak und Ghan (2000), $\alpha_c = 1$ verwendet. Die Diffusivität D_v für Wasserdampf wird nach Pruppacher und Klett (1997) bestimmt:

$$D_v = 0,211 \frac{101325}{p} \left(\frac{T}{273,15} \right)^{1,94} \cdot 10^{-4}, \quad [4.11]$$

D_v in m^2/s , p in Pa und T in K.

Die ebenfalls für die Berechnung von G benötigte thermische Leitfähigkeit der Luft k_a wird nach Seinfeld und Pandis (2006) bestimmt:

$$k_a = 10^{-3}(4,39 + 0,071T), \quad [4.12]$$

k_a in $\text{J}/(\text{m s K})$ und T in K. Auf eine Berechnung der Größenabhängigkeit von k_a wird nach Fountoukis und Nenes (2005) verzichtet.

4.1.2. Vertikalgeschwindigkeit

Die Vertikalgeschwindigkeit an der Wolkenbasis ist zeitlich und räumlich sehr variabel. Mit numerischen Modellen, welche eine räumliche Auflösung von mehreren Kilometern besitzen, können diese Schwankungen nicht aufgelöst werden. Die zur Bestimmung von s_{max} notwendige Vertikalgeschwindigkeit w_{cl} an der Wolkenbasis wird daher, bei der in dieser Arbeit verwendeten horizontalen Auflösung von 7km, nicht erfasst. Als Folge dessen müssen Annahmen über w_{cl} getroffen werden. Zur Berechnung von w_{cl} in COSMO-ART wird das einfache Verfahren von Lohmann et al. (1999b), welches w_{cl} in Abhängigkeit der turbulenten kinetischen Energie TKE abschätzt, verwendet. Um zu vermeiden, dass es im Bereich von Abwinden zu einem positiven w_{cl} und als Folge dessen zu einer Aktivierung von Aerosol kommt, wird das Vorzeichen von w_{cl} weiterhin durch die simulierte mittlere Vertikalgeschwindigkeit bestimmt:

$$w_{cl} = \begin{cases} w + c\sqrt{TKE}, & \text{für } w \geq 0, \\ 0, & \text{für } w < 0. \end{cases} \quad [4.13]$$

c ist eine Konstante und w ist die berechnete mittlere Vertikalgeschwindigkeit in einer Gitterbox im Modell. Für $w < 0$ wird im Modell keine Aktivierung berechnet. TKE ist definiert als

$$TKE = \frac{1}{2}(u'^2 + v'^2 + w'^2)$$

und beinhaltet die Schwankungen der Geschwindigkeitskomponenten u' , v' und w' , welche nicht vom Modell explizit erfasst werden können. In der Parametrisierung wird davon ausgegangen, dass an der Wolkenbasis die Schwankungen w' dominieren. In Globalen Zirkulationsmodellen wird $c = 1,33$ verwendet (Lohmann, 2008). Ivanova und Leighton (2008) finden bei Simulationen mit 3 km horizontaler Auflösung für $c = 1$ eine gute Übereinstimmung von w_{cl} mit Beobachtungen. In COSMO-ART wird

daher $c = 1$ übernommen. Die Berechnung der TKE in COSMO-ART wird in Doms et al. (2005) beschrieben. Da w_{cl} eine wichtige Eingabegröße für die Berechnung der Aktivierung ist, stellt eine Parametrisierung von w_{cl} immer eine Schwäche bei der Berechnung der Aktivierung dar, die nur durch Verwendung einer hohen Auflösung (ca. < 1 km) umgangen werden kann.

4.1.3. Erweiterung der Aerosolbilanzgleichung

Mit der Parametrisierung von Abdul-Razzak und Ghan (2000) wird die Anzahl und Masse der aktivierten Aerosolpartikel in einem mit konstanter Geschwindigkeit aufsteigenden Luftpaket berechnet. Die Parametrisierung ist zeitunabhängig und somit diagnostisch. Für die Berücksichtigung der Aktivierung in den Bilanzgleichungen des Aerosols und der Wolkentropfenanzahldichte muss die Parametrisierung in eine prognostische Form überführt werden. Nach Ghan und Abdul-Razzak (1997) wird zwischen zwei Fällen unterschieden. Die Aktivierung findet nur statt, wenn eine Wolke neu entsteht oder wenn Luft von außerhalb der Wolke in eine bereits bestehende Wolke fließt. Eine Aktivierung von Partikel innerhalb einer bestehenden Wolke wird hierbei als vernachlässigbar angenommen, da durch die Anwesenheit der Wolkentropfen keine genügend hohen Übersättigungen erreicht werden können, um die übrigen kleinen Partikel, welche sich innerhalb der Wolke befinden, zu aktivieren. Entsteht in einer Gitterbox eine neue Wolke, so ist die Parametrisierung unmittelbar für diesen Zeitschritt anwendbar und die Aktivierungsrate für die Anzahldichte $ACT_{N,l}$ und die Massendichte $ACT_{m,l}$ jeder Mode ergeben sich in diskretisierter Form zu:

$$ACT_{N,l} \approx \frac{N_l^*}{\Delta t}, \quad [4.14]$$

$$ACT_{m,l} \approx \frac{m_l^*}{\Delta t}, \quad [4.15]$$

wobei Δt die Länge des verwendeten Zeitschritts ist. Bei einer schon bestehenden Wolke können in Folge der gemachten Annahmen nur außerhalb der Wolke neue Partikel aktiviert werden. Die Aktivierungsraten ergeben sich dann aus der Divergenz der Flüsse der frisch aktivierten Partikel in die bestehende Wolke. In differentieller Form gilt dann:

$$ACT_{N,l} = -\nabla \cdot F_{N,l}^*,$$

$$ACT_{m,l} = -\nabla \cdot F_{m,l}^*.$$

$F_{N,l}^*$ ist der Fluss der Anzahldichte der aktivierten Aerosolpartikel einer Mode und $F_{m,l}^*$ der Fluss der Massendichte der aktivierten Aerosolpartikel einer Mode. Zur Berechnung der Flüsse werden die Advektion und die turbulente Diffusion der Partikel berücksichtigt:

$$ACT_{N,l} = -\nabla \cdot N_l^* \vec{v} + \nabla \cdot K \nabla N_l^*,$$

$$ACT_{m,l} = -\nabla \cdot m_l^* \vec{v} + \nabla \cdot K \nabla m_l^*.$$

K ist der turbulente Diffusionskoeffizient für Skalare. Die Berechnung von K ist in Doms et al. (2005) beschrieben. Der Einfluss der molekularen Diffusion wird vernachlässigt. Nach Ghan und Abdul-Razzak

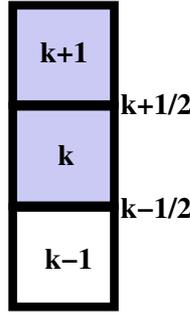


Abb. 4.1.: Vertikale Gitterstruktur; die blauen Gitterboxen enthalten Wolkentropfen, die weißen Gitterboxen sind wolkenfrei.

(1997) kann die Aktivierung an den Wolkenseiten und der Wolkenoberseite vernachlässigt werden. Dies beschränkt zum Einen die Aktivierung auf die Wolkenbasis und zum Anderen müssen zur Berechnung der Aktivierungsrate nur die vertikalen Flüsse berücksichtigt werden:

$$ACT_{N,l} = -\frac{\partial}{\partial z} N_l^* w + \frac{\partial}{\partial z} K \frac{\partial}{\partial z} N_l^*,$$

$$ACT_{m,l} = -\frac{\partial}{\partial z} m_l^* w + \frac{\partial}{\partial z} K \frac{\partial}{\partial z} m_l^*.$$

Um die Aktivierungsraten in einem numerischen Modell zu berechnen, müssen die Flüsse noch diskretisiert werden. In Abbildung 4.1 sind zur Anschauung des hier verwendeten Verfahrens drei Gitterboxen im Bereich der Wolkenbasis dargestellt. Ganzzahlige Indizes bezeichnen die Boxmitten. An diesen Punkten sind die Anzahl- und die Massendichten definiert. Die Vertikalgeschwindigkeiten sind an den Boxrändern definiert. Die Gitterboxen k und $k+1$ enthalten Wolkentropfen. Die Gitterbox $k-1$ ist wolkenfrei. Mit den diskretisierten Flüssen (Jacobson, 1999) lauten die Aktivierungsraten für die Wolkenbasis k :

$$ACT_{N,l}^k \approx -\left(\frac{N_l^{*,k+1/2} w^{k+1/2} - N_l^{*,k-1/2} w^{k-1/2}}{z^{k+1/2} - z^{k-1/2}} \right) + \frac{\left(K^{k+1/2} \frac{N_l^{*,k+1} - N_l^{*,k}}{z^{k+1} - z^k} \right) - \left(K^{k-1/2} \frac{N_l^{*,k} - N_l^{*,k-1}}{z^k - z^{k-1}} \right)}{z^{k+1/2} - z^{k-1/2}},$$

$$ACT_{m,l}^k \approx -\left(\frac{m_l^{*,k+1/2} w^{k+1/2} - m_l^{*,k-1/2} w^{k-1/2}}{z^{k+1/2} - z^{k-1/2}} \right) + \frac{\left(K^{k+1/2} \frac{m_l^{*,k+1} - m_l^{*,k}}{z^{k+1} - z^k} \right) - \left(K^{k-1/2} \frac{m_l^{*,k} - m_l^{*,k-1}}{z^k - z^{k-1}} \right)}{z^{k+1/2} - z^{k-1/2}}.$$

Da die Aktivierung nur für Partikel außerhalb der bestehenden Wolke stattfindet, gilt:

$$N_l^{*,k} = N_l^{*,k+1} = N_l^{*,k+1/2} = 0,$$

$$m_l^{*,k} = m_l^{*,k+1} = m_l^{*,k+1/2} = 0.$$

Somit folgt für die Aktivierungsraten an der Wolkenbasis in diskretisierter Form:

$$ACT_{N,l}^k \approx \frac{w^{k-1/2}}{z^{k+1/2} - z^{k-1/2}} N_l^{*,k-1} + K^{k-1/2} \frac{\frac{N_l^{*,k-1}}{z^k - z^{k-1}}}{z^{k+1/2} - z^{k-1/2}}, \quad [4.16]$$

$$ACT_{m,l}^k \approx \frac{w^{k-1/2}}{z^{k+1/2} - z^{k-1/2}} m_l^{*,k-1} + K^{k-1/2} \frac{\frac{m_l^{*,k-1}}{z^k - z^{k-1}}}{z^{k+1/2} - z^{k-1/2}}. \quad [4.17]$$

Die Anzahl- und Massendichten an der Stelle $k - 1/2$ wurden mit den Dichten an der Stelle $k - 1$ genähert.

Zur Bestimmung der Aktivierungsraten an der Wolkenbasis wird nun zunächst, mit Gleichung 4.5 und 4.8, $N_l^{*,k-1}$ und $m_l^{*,k-1}$ berechnet und anschließend, mit Gleichung 4.16 und 4.17, die Aktivierungsraten bestimmt.

Die Aktivierungsraten in COSMO-ART sind:

$$ACT_{N,l} = \begin{cases} \text{Gl.4.14} & \text{neue Wolke,} \\ \text{Gl.4.16} & \text{alte Wolke} \end{cases}$$

und

$$ACT_{m,l} = \begin{cases} \text{Gl.4.15} & \text{neue Wolke,} \\ \text{Gl.4.17} & \text{alte Wolke.} \end{cases}$$

Die Bilanzgleichungen für die Anzahldicke (Gl. 3.12) und die Massendichte des Aerosols (Gl. 3.13) können nun um die Aktivierung als Senke erweitert werden:

$$\frac{\partial N_l}{\partial t} = ADV_{N,l} + DIF F_{N,l} - KOAG_{N,l} - KOAG_{N,l}^{\circ} - SED_{N,l} + NUKL_{N,l} - ACT_{N,l}, \quad [4.18]$$

$$\frac{\partial m_l}{\partial t} = ADV_{m,l} + DIF F_{m,l} - KOAG_{m,l} - SED_{m,l} + NUKL_{m,l} + KOND_{m,l} - ACT_{m,l}. \quad [4.19]$$

Die in den Bilanzgleichungen in Kap. 3.1 enthaltenen Terme für *KONV* und *WASH* werden in dieser Arbeit nicht verwendet.

4.2. Bilanzgleichung der Wolkentropfenanzahldichte

Zur Behandlung der Wechselwirkung zwischen Aerosol und Wolken wird die Anzahldicke der Wolkentropfen N_c als zusätzliche prognostische Variable in COSMO-ART eingeführt. Hierdurch kann der Einfluss des Aerosols auf die Größenverteilung der Wolkentropfen und als Folge dessen auf die Autokonversion berechnet werden. Die Transportprozesse, die mikrophysikalischen Transferraten und die Nukleation von Wolkentropfen infolge der Aerosolaktivierung werden konsistent mit der physikalischen und numerischen Behandlung der Wolkenwasserkategorien (siehe Kap. 3.2) und des Aerosols (siehe Kap. 3.1.1, 4.1.3) umgesetzt.

Die Nukleationsrate der Wolkentropfen entspricht der Aktivierungsrate für die Anzahldicke der Aerosolpartikel (Kap. 4.1.3):

$$S^{N,nuk} = \sum_l ACT_{N,l}. \quad [4.20]$$

An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass die Berechnung von q_c weiterhin mit der Sättigungsadjustierung (Kap. 3.2) erfolgt. Bei der Entstehung einer Wolke im Modell wird somit N_c und q_c getrennt berechnet.

Die Advektion und die turbulente Diffusion von N_c werden analog zur Ausbreitung des Wolkenwassergehalts q_c (Doms und Schättler, 2002) berechnet. Unter Anderem wird hierbei N_c mit ρ_h normiert, um eine konsistente Formulierung der Advektion und der turbulenten Diffusion mit q_c zu ermöglichen.

Für die Autokonversion und den Selbsteinfang werden die zur Behandlung von q_c korrespondierenden Parametrisierungen aus Seifert und Beheng (2001) verwendet.

Die Autokonversion der Wolkentropfen erfolgt in Abhängigkeit von S_{au} (siehe Kap. 3.2) nach Seifert und Beheng (2001) und Beheng (1994):

$$S^{N,au} = \frac{2\rho_h}{m_c^*} S_{au}. \quad [4.21]$$

m_c^* ist, identisch zu m_c^* in S_{au} , die Trennmasse zwischen Wolkentropfen und Regentropfen mit $m_c^* = 2,60 \cdot 10^{-10}$ kg. ρ_h ist die Dichte der feuchten Luft, welche zur Umrechnung von Massenanteile in Massendichten verwendet wird.

Als zusätzlicher Prozess muss für die Anzahldichte der Wolkentropfen, im Gegensatz zu q_c , der Selbsteinfang der Wolkentropfen S_{sc} berücksichtigt werden. Nach Seifert und Beheng (2001) gilt für den Selbsteinfang:

$$S^{sc} = +k_c \frac{(\nu + 2)}{(\nu + 1)} (q_c \rho_h)^2 - S_{N,au}. \quad [4.22]$$

k_c ist der Koeffizient der Koagulationsfunktion (Gl. 3.23) und ν der Parameter der Gammaverteilung der Wolkentropfen (Gl. 3.22).

Zur Erhöhung von N_c durch Schmelzen von Wolkeneis muss die Anzahldichte der Wolkeneispartikel bekannt sein. Da sie nicht explizit im Modell berechnet wird, wird sie analog zur Berechnung des Depositionswachstums von q_i (Doms und Schättler, 2002) in Abhängigkeit der Temperatur parametrisiert. Es folgt:

$$S^{N,melt} \approx \begin{cases} \frac{1}{\Delta t} N_{i,0} e^{0,2(T_0 - T)} & \text{für } T \geq T_0, \\ 0 & \text{für } T < T_0, \end{cases} \quad [4.23]$$

mit T in K. T_0 ist der Gefrierpunkt $T = 273,15$ K und für $N_{i,0}$ wird der Wert $N_{i,0} = 10^2 \text{ m}^{-3}$ verwendet.

Für den Einfang der Wolkentropfen durch Regentropfen, das homogene Gefrieren der Wolkentropfen, das Bereifen von Schnee mit Wolkentropfen und für den Einfang von Wolkentropfen durch Schnee werden die Transferraten direkt proportional zu den korrespondierenden Transferraten von q_c berechnet:

$$S^{N,micro} = \frac{\rho_h}{\bar{m}_c} (S^{ac} + S_c^{frz} + S^{rim} + S^{shed}), \quad [4.24]$$

mit der mittleren Masse der Wolkentropfen:

$$\bar{m}_c = \frac{q_c \rho_h}{N_c}.$$

Für die Änderung von N_c infolge von Evaporation wird angenommen, dass die Wolkentropfen durch Evaporation bei konstanter Tropfenanzahl schrumpfen. Nur wenn das gesamte Wolkenwasser evaporiert ist, folgt $N_c = 0$. Für die Evaporationsrate gilt somit:

$$S^{N,evap} \approx \begin{cases} 0 & \text{wenn } q_c > 0, \\ \frac{N_c}{\Delta t} & \text{wenn } q_c \leq 0. \end{cases} \quad [4.25]$$

Die Bilanzgleichung von N_c ist nun:

$$\frac{\partial}{\partial t} N_c = ADV_{N_c} + DIF F_{N_c} + S^{N,nuk} - S^{N,au} - S^{sc} + S^{N,melt} - S^{N,micro} - S^{N,evap}. \quad [4.26]$$

Mit Gleichung 4.26 ist nun eine prognostische Berechnung der Wolkentropfenanzahldichte N_c möglich. Die Bildung von Regentropfen, durch Koagulation von Wolkentropfen, kann nun in Abhängigkeit von N_c berechnet werden. Hierfür ist die Gleichung 4.26 zusätzlich über die Berechnung der Autokonversionsrate S_{au} mit der Bilanzgleichung für q_c gekoppelt. Da die Tropfenanzahldichte N_c nun als zusätzliche prognostische Variable vorliegt, kann sie direkt für die Berechnung von S_{au} (Gl. 3.23) verwendet werden. Die vorgegebene konstante Tropfenanzahldichte $N_{c,konst}$ wird hierfür durch N_c ersetzt:

$$S_{au} = \frac{k_c}{20m_c^*} \frac{(v+2)(v+4)}{(v+1)^2} q_c^2 \frac{q_c^2 \rho_h^3}{N_c^2} \left(1 + \frac{\Phi_{au}(\tau)}{(1-\tau)^2} \right). \quad [4.27]$$

An Gleichung 4.27 sieht man, dass S_{au} proportional zu N_c^{-2} ist. Je größer N_c desto kleiner ist S_{au} und desto langsamer ist somit die Bildung von Niederschlag im warmen Teil der Wolken im Modell.

An dieser Stelle sei angemerkt, dass hierdurch nur die Anzahl der Wolkentropfen und als Folge dessen deren mittlere Durchmesser berücksichtigt werden. Die Form der zugrundeliegenden Größenverteilung der Wolkentropfen, welche ebenfalls einen Einfluss auf die Autokonversion hat, bleibt konstant.

Durch die hier vorgestellte Erweiterung des Wolkenschemas kann die Wolkentropfenanzahldichte berechnet werden und der Einfluss des Aerosols auf den warmen Teil einer Wolke bestimmt werden.

5. Simulationen

Mit den in Kapitel 4 vorgestellten Erweiterungen kann die Anzahldichte der verfügbaren Wolkenkondensationskerne N_{CCN}^* in Abhängigkeit der Aerosolverteilung und der Eigenschaften der Aerosolpartikel berechnet werden. Mit der Einführung der Wolkentropfenanzahldichte N_c als zusätzliche prognostische Größe in COSMO-ART und der Erweiterung des Wolkenschemas kann nun der Einfluss des Aerosols auf den warmen Teil einer Wolke, im Speziellen der Einfluss auf die Bildung von Regen durch Koagulation von Wolkentropfen, bestimmt werden. Hierdurch ergeben sich Änderungen der Wolkeneigenschaften und der Niederschlagsverteilung am Boden. Als Folge der Änderungen der Wolkeneigenschaften, im Speziellen des Flüssigwassergehalts, ergeben sich Änderungen im Strahlungsfeld der Atmosphäre.

Zur Überprüfung der durchgeführten Erweiterungen und zur Quantifizierung des Einflusses des Aerosols auf die Wolkeneigenschaften und den Niederschlag wurden Simulationen für ein Gebiet von der Größe $350 \text{ km} \times 553 \text{ km}$ durchgeführt. Das Simulationsgebiet umfasst Süd-West-Deutschland, die Schweiz und Teile der angrenzenden Länder (Abb. 5.1(a)). Die Simulationen wurden mit einer horizontalen Auflösung von $7 \times 7 \text{ km}$ und einem Zeitschritt von 20 s durchgeführt. Die vertikale Auflösung umfasst 40, nicht äquidistante Höhenschichten. In der Höhe der Wolken beträgt der Abstand der Höhenschichten im Modell ca. 150 m. Die Simulationen wurden ohne Parametrisierungen der subgridskaligen Konvektion durchgeführt. Um den Transport von Aerosol in das Simulationsgebiet zu berücksichtigen, wurden die durchgeführten Simulationen in die Ergebnisse einer zusätzlichen gröberskaligen Simulation SIM_{EURO} genestet. SIM_{EURO} wurde mit der Standardversion von COSMO-ART (siehe Kap. 3) mit einer Auflösung von $14 \times 14 \text{ km}$ durchgeführt. Das Simulationsgebiet erfasst hierbei ganz Europa (Abb. 5.1(c)).

Zur Berücksichtigung der anthropogenen Emissionen von Gasen und Partikeln wurde in allen Simulationen ein stündlich aufgelöster Emissionsdatensatz verwendet. Die biogenen Emissionen wurden innerhalb des Modells in Abhängigkeit der Temperatur, der Strahlung und der Landnutzung berechnet. Das atmosphärische Aerosol wurde durch fünf interaktive Moden repräsentiert (siehe Tab. 3.1). Diese erfassen den für die Bestimmung der Wolkenkondensationskerne wichtigen Größenbereich von 0,01 bis $1 \mu\text{m}$. Die Simulationen wurden mit minimalen Konzentrationen für die Gas- und Partikelphase initialisiert. Das atmosphärische Aerosol wurde dann innerhalb der ersten Simulationsstunden durch Nukleation, Kondensation und direkter Emission aufgebaut. Hierbei ist von einer Einschwingzeit des Modells von 24 Stunden auszugehen.

Die Simulationen wurden für den Zeitraum vom 16. - 20. August 2005 durchgeführt. Die ersten drei Simulationstage wurden jeweils in allen Simulationen mit der Standardversion von COSMO-ART durchgeführt und erst am 19. August, 0:00 UTC die jeweiligen Erweiterungen zugeschaltet. Zum Einen wird

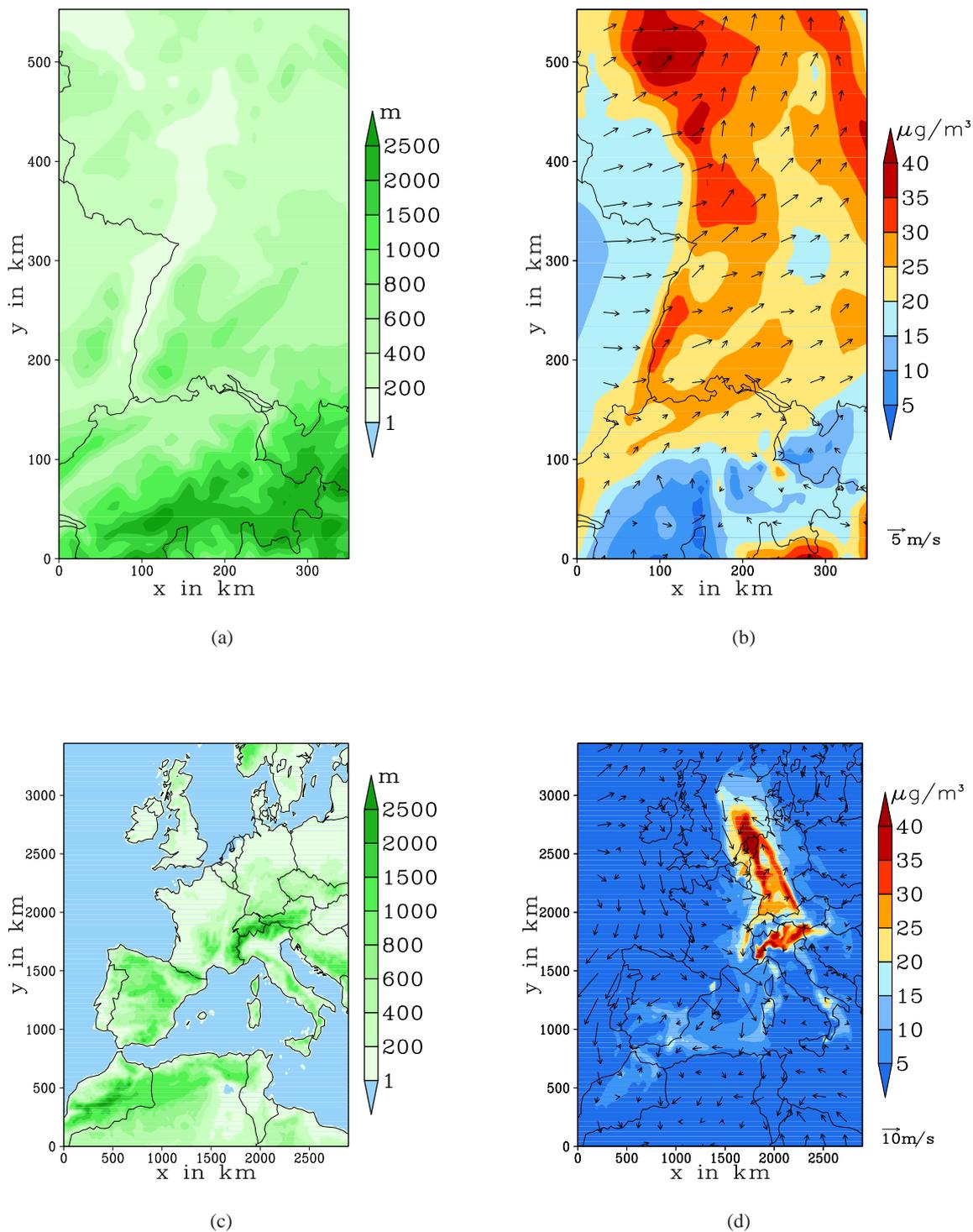


Abb. 5.1.: (a) Simulationsgebiet mit der Orographie in m über NN und Ländergrenzen; (c) Simulationsgebiet der größerskaligen Simulation mit der Orographie in m über NN und Ländergrenzen; (b) und (d) Aerosolmassendichte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ am 20. August 2005, 0:00 UTC in ca. 30 m Höhe über Grund mit dem horizontalen Windfeld.

Tab. 5.1.: Übersicht über die durchgeführten Simulationen.

Bezeichnung	Aerosol	Aerosolbilanz	Übersättigung	Wolkenschema
SIM_{CCN}	simuliert	standard	$s_{FIX} = 0, 1\%$	Standard COSMO
SIM_{VAR}	simuliert	standard	parametrisiert	erweitertes Schema
SIM_{SCAV}	simuliert	erweitert	parametrisiert	erweitertes Schema
SIM_{FIX}	fix	-	parametrisiert	erweitertes Schema
SIM_{STD}	simuliert	standard	-	Standard COSMO
SIM_{EURO}	simuliert	standard	-	Standard COSMO

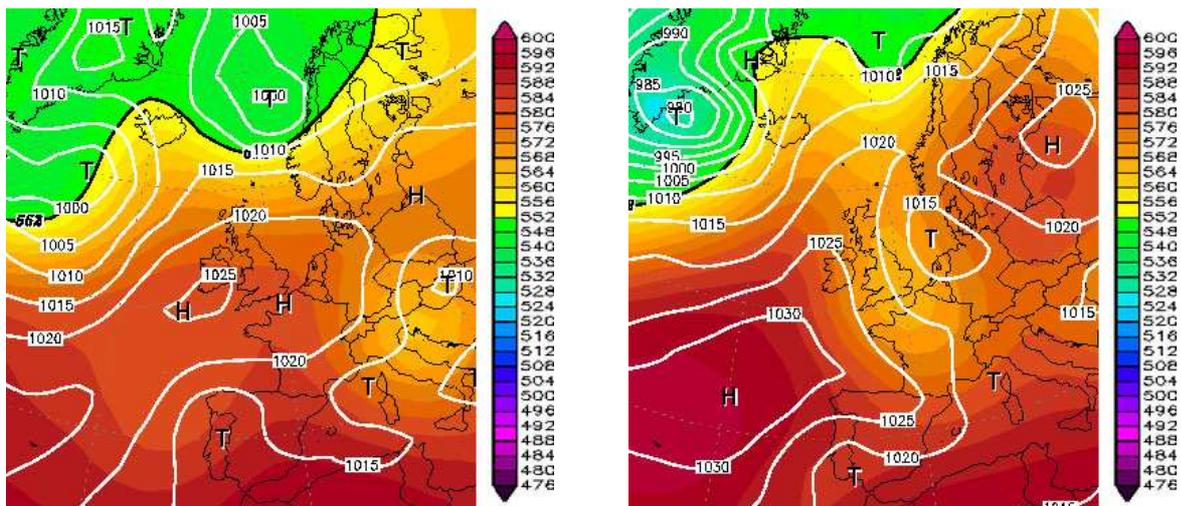
hierdurch der Einschwingzeit des Modells Rechnung getragen und es können sich Strukturen in der Aerosolverteilung in Abhängigkeit der synoptischen Situation ausbilden. Zum Anderen kommt es in den ersten drei Tagen nur zu vernachlässigbarer Wolkenbildung innerhalb des Simulationsgebiets.

Vom 16. - 18. August befand sich das Simulationsgebiet unter einer ausgeprägten Hochdruck-Wetterlage (Abb. 5.2(a)). Am 19. August kommt das Gebiet unter den Einfluss eines herannahenden Höhentrogs und befindet sich am 20. August direkt unter der Trogvorderseite (Abb. 5.2(b)). Dies führt zu einem verstärkten Antrieb für Vertikalbewegungen und der Bildung von Wolken innerhalb des Simulationsgebiets. Im Bereich der Nordsee ist in diesem Zeitraum ein Bodentief entstanden. In der Nacht vom 19. zum 20. August passiert ein Frontensystem das Simulationsgebiet (Abb. 5.2(b) und 5.2(c)). Damit verbunden wandern Wolken von Westen in das Simulationsgebiet und es kommt zur verstärkten Bildung von Wolken innerhalb des Simulationsgebiets. In Abbildung 5.1(b) ist bei $y = 400$ km der mit der Front verbundene, zyklonale Windsprung gut zu erkennen.

Im Bereich des Frontensystems, im Bereich des Tiefs vor der Nordseeküste und in der Poebene ist die Massendichte des Aerosols zu diesem Zeitpunkt am höchsten (Abb. 5.1(b) und 5.1(d)). Das Tiefdruckgebiet und das Frontensystem sind mit großräumigen Transportprozessen des Aerosols verbunden, die zu den Maxima der Massendichte des Aerosols in diesen Bereichen führen. Die horizontale Verteilung des Aerosols im Simulationsgebiet wird bei der Passage der Front somit primär durch die großräumigen Transportprozesse und nur sekundär durch die lokalen Emissionen bestimmt.

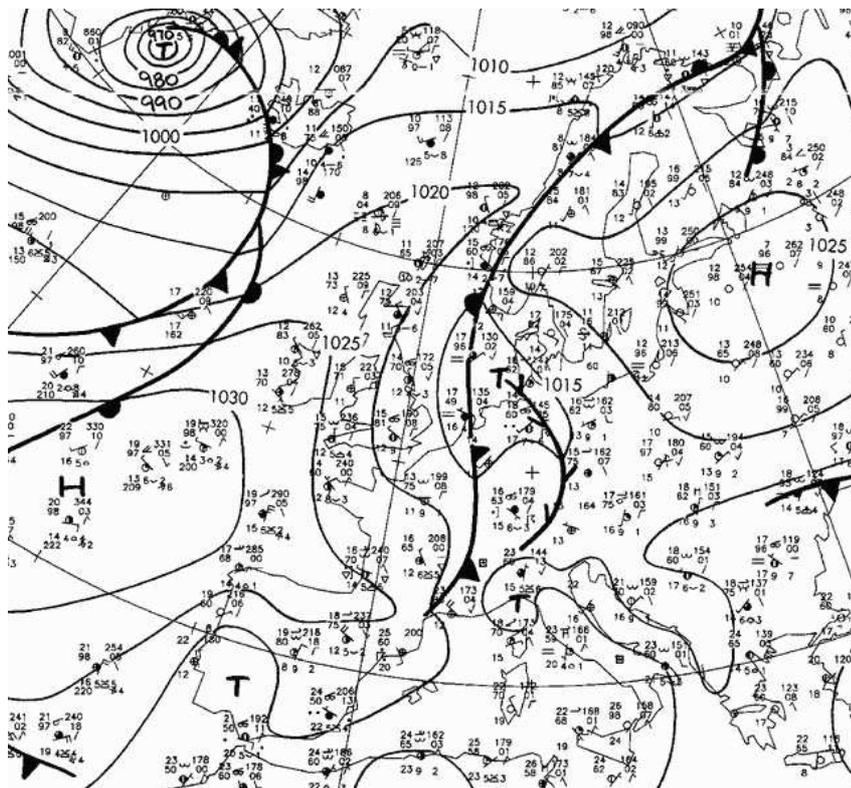
Der 20. August ist geprägt von einer sommerlichen, leicht konvektiven Wetterlage, welche mit der Bildung von größtenteils tiefer Stratocumulusbewölkung verbunden ist. Während des Simulationszeitraums befindet sich das Gebiet unter einer westlichen Anströmung, welche erst am Nachmittag des 20. August in eine östliche Anströmung übergeht.

Es wurden fünf verschiedene Simulationen durchgeführt. In der ersten Simulation wurde die Verteilung der Wolkenkondensationskerne für eine vorgeschriebene Übersättigung berechnet. Hierdurch lässt sich der Einfluss der Aerosolverteilung und der Aerosoleigenschaften auf die Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne N_{CCN} während des Simulationszeitraums bestimmen. Diese Simulation wird im Folgenden als SIM_{CCN} bezeichnet.



(a) 16. August 2005, 0:00 UTC

(b) 20. August 2005, 0:00 UTC



(c) 20. August 2005, 0:00 UTC

Abb. 5.2.: (a)+(b) Reanalysen für das Geopotential in 500 hPa (farbig) in gpm und den Bodendruck (Linien) in hPa (www.Wetterzentrale.de, 2008); (c) Analyse des Bodendruckfelds in hPa mit Fronten, Konvergenz-zonen und Stationsdaten (www.Wetter3.de, 2008).

In der zweiten Simulation wurden zusätzlich die erweiterten Aerosolbilanzgleichungen verwendet. Somit lässt sich der Einfluss der Aktivierung als Senke für das Aerosol abschätzen. Diese Simulation wird mit SIM_{SCAV} bezeichnet.

In der dritten Simulation wurde mit dem erweiterten Wolkenschema die Wolkentropfenanzahldichte in Abhängigkeit des Aerosols berechnet. Die Variabilität des Aerosols hat somit einen direkten Einfluss auf die Wolkeneigenschaften der warmen Wolken und den Niederschlag. Diese Simulation wird im Folgenden mit SIM_{VAR} bezeichnet.

Zur Quantifizierung des Einflusses der räumlichen und zeitlichen Variabilität des Aerosols auf die Wolkeneigenschaften und den Niederschlag wurde eine vierte Simulation durchgeführt, in welcher eine konstante Aerosolverteilung für den gesamten Simulationszeitraum verwendet wurde. Die Simulation ist ansonsten mit SIM_{VAR} identisch und wird mit SIM_{FIX} bezeichnet. Die Differenzen in den Simulationsergebnissen von SIM_{VAR} und SIM_{FIX} können somit direkt auf die Variabilität des Aerosols in SIM_{VAR} zurückgeführt werden.

Zum Schluss wurde eine fünfte Simulation durchgeführt, welche der Standardversion von COSMO-ART ohne die in dieser Arbeit eingeführten Erweiterungen entspricht. Diese Simulation wird mit SIM_{STD} bezeichnet. Durch einen Vergleich von SIM_{VAR} und SIM_{STD} lassen sich die Änderungen der Simulationsergebnisse, welche sich durch die Erweiterung des Modellsystems ergeben, quantifizieren.

5.1. Verteilung des Aerosols und der Wolkenkondensationskerne

Das atmosphärische Aerosol und folglich die zur Verfügung stehenden Wolkenkondensationskerne sind räumlich und zeitlich sehr variabel. Mit dem erweiterten Modellsystem kann nun die Anzahldichte der zur Verfügung stehenden Wolkenkondensationskerne basierend auf dem simulierten anthropogenen Aerosol berechnet werden.

Es wurde eine Simulation SIM_{CCN} durchgeführt, in welcher $N_{CCN}(s)$ für eine vorgeschriebene fixe Übersättigung s_{FIX} bestimmt wurde. Die Anzahldichten der Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}(s_{FIX})$ können hierdurch direkt auf die Eigenschaften des simulierten Aerosols zurückgeführt werden und die Variabilität der verfügbaren Wolkenkondensationskerne für den betrachteten Zeitraum bestimmt werden. Zur Berechnung der $N_{CCN}(s_{FIX})$ wurde $s_{FIX} = 0,1\%$ angenommen. Dies entspricht einem mittleren beobachteten Wert der Übersättigung in Wolken (Seinfeld und Pandis, 2006). Da die reine Rußmode nicht wasserlöslich ist, werden im Folgenden nur die vier intern gemischten Moden betrachtet. Angaben über das Aerosol, wie Anzahldichte und log-normal Verteilung, beziehen sich im Folgenden nur auf die vier intern gemischten Moden. Die Berechnung von $N_{CCN}(s_{FIX})$ folgt den Angaben in Kapitel 4.1.

Im Folgenden wird exemplarisch die Verteilung der simulierten $N_{CCN}(0,1\%)$ für zwei Zeitpunkte diskutiert. Der erste Zeitpunkt ist am 19. August 2005, 9:00 UTC und spiegelt die Verhältnisse wieder bevor die Front das Simulationsgebiet erreicht. Am zweiten Zeitpunkt am 19. August 2005, 20:00 UTC hat die Front das Simulationsgebiet erreicht und es kommt zu signifikanten Änderungen der Aerosolverteilung. In den Abbildungen 5.3(a) bis 5.3(c) sind die Anzahldichte der Aerosolpartikel N_A , die Anzahldichte

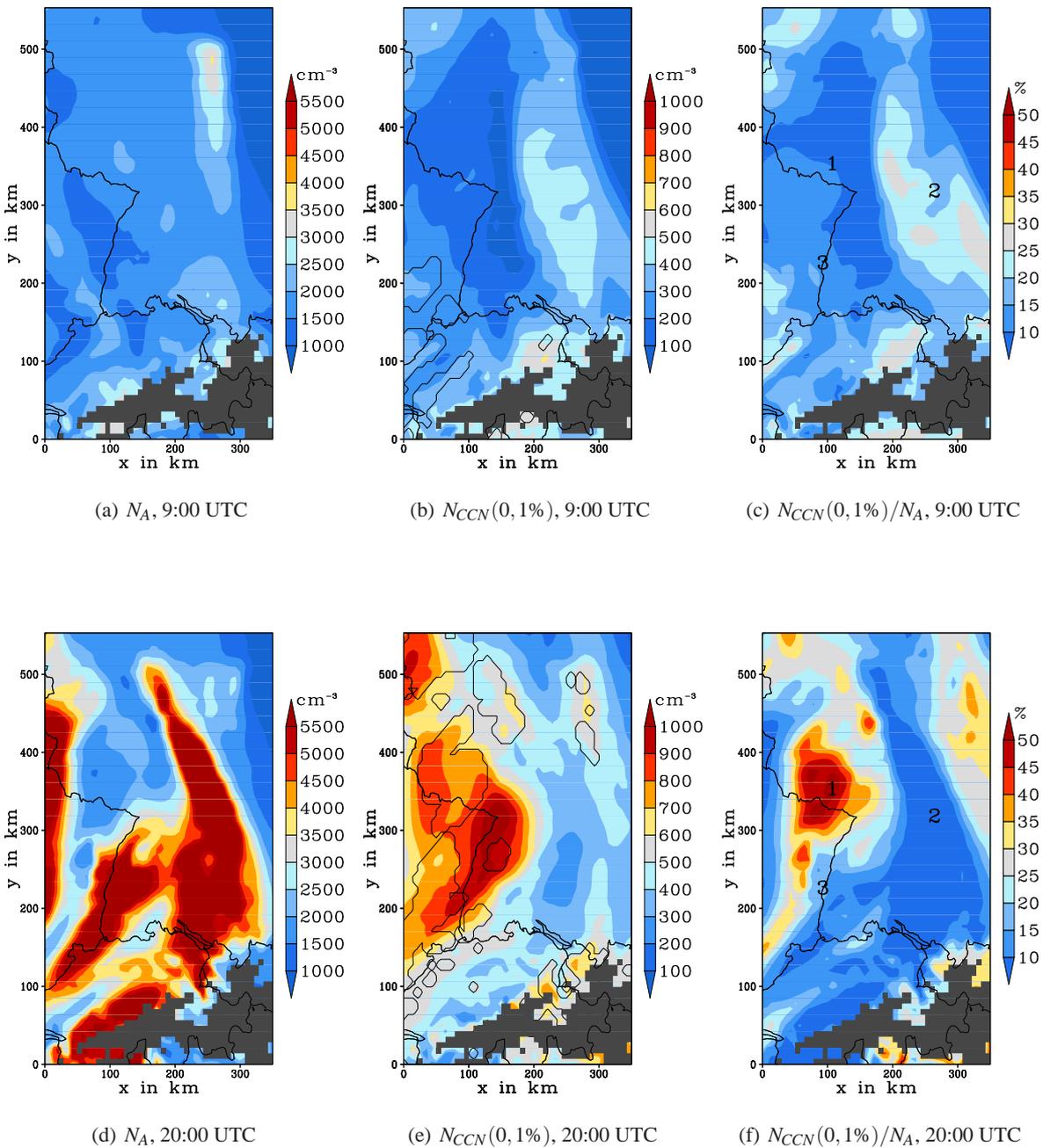


Abb. 5.3.: (a) und (d) Anzahldichte der Aerosolpartikel N_A in cm^{-3} ; (b) und (e) Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}(0,1\%)$ in cm^{-3} mit Umrandung der Wolken; (c) und (f) Anteil der aktivierten Partikel $N_{CCN}(0,1\%)/N_A$ in %; für den 19. August 2005 in einer Höhe von 1500 m über NN, in SIM_{CCN} .

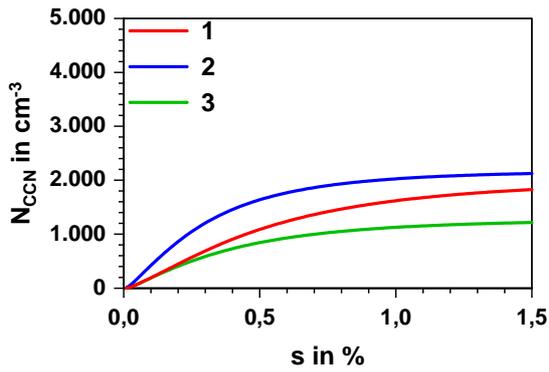
der Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}(0, 1\%)$ und der Anteil der aktivierten Partikel $N_{CCN}(0, 1\%)/N_A$ für 9:00 UTC in einer Höhe von 1500 m über NN dargestellt. Bei zu diesem Termin haben sich nur vereinzelt Wolken gebildet. N_A beträgt zu diesen Zeitpunkt im Mittel ca. 2000 cm^{-3} und erreicht Werte von unter 1000 cm^{-3} im Minimum und bis zu 3500 cm^{-3} im Maximum.

Für $N_{CCN}(0, 1\%)$ werden Werte von unter 100 cm^{-3} bis über 500 cm^{-3} erreicht. Vergleicht man N_A mit den berechneten $N_{CCN}(0, 1\%)$, so lässt sich feststellen, dass die Verteilung der $N_{CCN}(0, 1\%)$ deutlich variabler ist. Besonders bei $x = 200 \text{ km}$ treten große horizontale Gradienten der $N_{CCN}(0, 1\%)$ auf, welche nicht durch die Verteilung von N_A bedingt werden. Die Variabilität der $N_{CCN}(0, 1\%)$ ist vielmehr durch die Variabilität der Aerosoleigenschaften bedingt. Dies lässt sich direkt anhand der Verteilung von $N_{CCN}(0, 1\%)/N_A$ erkennen. $N_{CCN}(0, 1\%)/N_A$ variiert von Gebieten, in denen weniger als 10 % der gesamten Partikel aktiviert werden, bis zu Gebieten, in denen mehr als 25 % der Partikel aktiviert werden. Hierdurch lässt sich auch der Gradient der $N_{CCN}(0, 1\%)$ bei $x = 200 \text{ km}$ erklären. Dies zeigt deutlich den Einfluss der Aerosoleigenschaften auf $N_{CCN}(s)$.

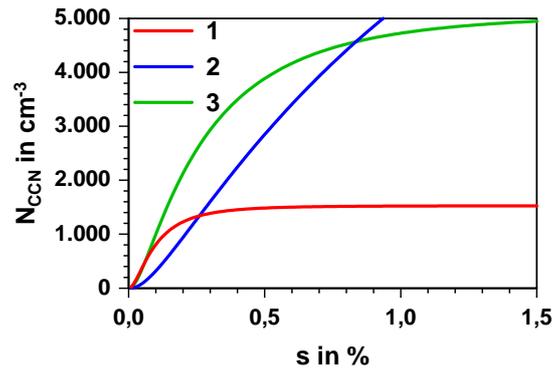
In den Abbildungen 5.3(d) bis 5.3(f) sind N_A , $N_{CCN}(0, 1\%)$ und $N_{CCN}(0, 1\%)/N_A$ für 20:00 UTC dargestellt. Zu diesem Zeitpunkt hat die Front das Gebiet erreicht und es kommt zunächst im Westen des Gebiets zur Bildung von Wolken. Die Verteilung von N_A ist im Vergleich zu 9:00 UTC deutlich inhomogener und erreicht innerhalb von streifenförmigen Gebieten Werte von $N_A > 5500 \text{ cm}^{-3}$. Die hohen Werte von N_A sind unter Anderem auf die Nukleation von neuen Partikeln am Oberrand der Wolken während des Tages und auf den verstärkten Vertikaltransport von Partikeln im Bereich der Front zurückzuführen.

Die horizontale Verteilung der berechneten $N_{CCN}(0, 1\%)$ weicht stark von der Verteilung von N_A ab und es lässt sich keine direkte Korrelation mehr zwischen N_A und $N_{CCN}(0, 1\%)$ erkennen. Besonders im Bereich mit hohen N_A östlich von $x = 200 \text{ km}$ treten niedrige $N_{CCN}(0, 1\%)$ mit Werten kleiner 300 cm^{-3} auf. Anhand der Verteilung von $N_{CCN}(0, 1\%)/N_A$ lässt sich erkennen, dass in diesem Bereich weniger als 10 % der Aerosolpartikel aktiviert werden (Abb. 5.3(f)). $N_{CCN}(0, 1\%)$ ist im westlichen Teil des Simulationsgebiets am höchsten und erreicht im Maximum Werte größer 1000 cm^{-3} . Insbesondere in Bereichen mit Wolken treten erhöhte Werte für $N_{CCN}(0, 1\%)$ auf (Abb. 5.3(e)). Die horizontale Verteilung von $N_{CCN}(0, 1\%)/N_A$ ist allgemein sehr variabel und hat seine niedrigsten Werte $N_{CCN}(0, 1\%)/N_A < 10 \%$ im Bereich von hohen N_A und die höchsten Werte $N_{CCN}(0, 1\%)/N_A > 50 \%$ im Bereich von relativ niedrigem N_A . Die Variation der Eigenschaften der Aerosolpartikel ist an diesem Termin somit deutlich höher als um 9:00 UTC.

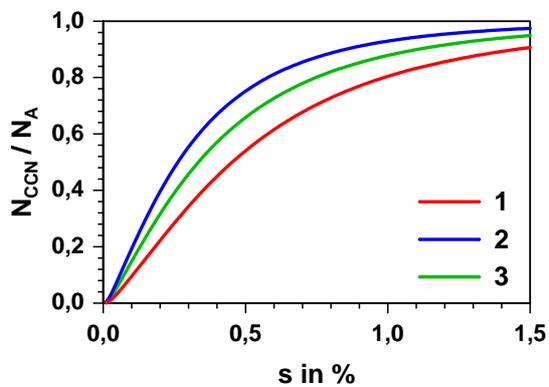
Um die simulierten $N_{CCN}(0, 1\%)$ mit den Eigenschaften des Aerosols und im Speziellen mit dessen Größenverteilung zu korrelieren, wurde zusätzlich an drei Punkten $N_{CCN}(s)$ und $N_{CCN}(s)/N_A$ als Funktion von s sowie die Größenverteilungen der Aerosolpartikel $n(\ln D_d)$ für drei verschiedene Punkte 1, 2 und 3 für die zwei Termine berechnet. Die Punkte sind jeweils in den Abbildungen 5.3(c) und 5.3(f) eingezeichnet. Anhand der Verläufe von $N_{CCN}(s)$ und $N_{CCN}(s)/N_A$ lassen sich die unterschiedli-



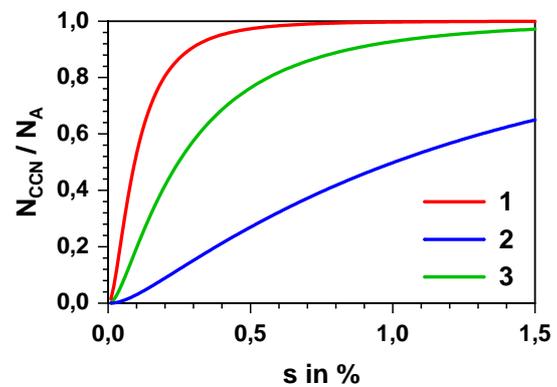
(a) 9:00 UTC



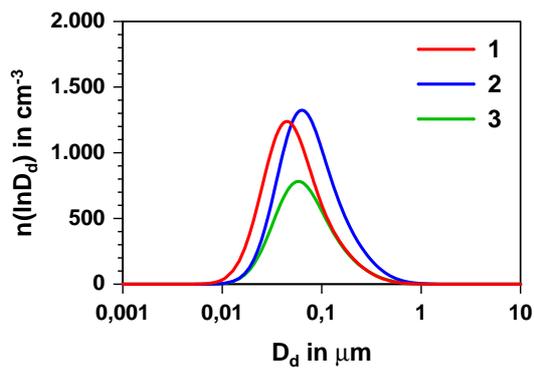
(b) 20:00 UTC



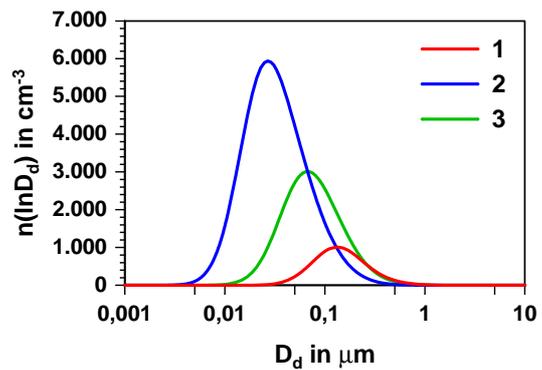
(c) 9:00 UTC



(d) 20:00 UTC



(e) 9:00 UTC



(f) 20:00 UTC

Abb. 5.4.: (a) und (b) Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}(s)$ in Abhängigkeit der Übersättigung; (c) und (d) Verhältnis der Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}(s)$ zur totalen Aerosolanzahl-dichte N_A ; (e) und (f) Aerosolgrößenverteilung $n(\ln D_d)$; (a)-(f) für drei verschiedene Punkte (siehe Abb. 5.3(c) und 5.3(f)) in SIM_{CCN} am 19. August 2005.

chen $N_{CCN}(0, 1\%)$ an den zwei Terminen direkt auf den Einfluss der Größenverteilungen des Aerosols zurückführen.

Um 9:00 UTC ist die Form von $N_{CCN}(s)$ und $N_{CCN}(s)/N_A$ an den Punkten 2 und 3 ähnlich (Abb. 5.4(a) und 5.4(c)). Der Verlauf unterscheidet sich primär durch die unterschiedlichen N_A an den beiden Punkten ($N_A = 2179 \text{ cm}^{-3}$ an Punkt 2 und $N_A = 1283 \text{ cm}^{-3}$ an Punkt 3). $N_{CCN}(s)$ an Punkt 1 unterscheidet sich von $N_{CCN}(s)$ an Punkt 2 trotz ähnlichem N_A ($N_A = 2014 \text{ cm}^{-3}$ an Punkt 2). $N_{CCN}(s)$ an Punkt 1 steigt bei niedrigen Übersättigungen $s < 0,5 \%$ zunächst langsamer und für $s > 0,5 \%$ dann schneller an als an Punkt 2. Dies liegt daran, dass die Größenverteilung an Punkt 1 im Vergleich zu Punkt 2 zu kleineren Durchmessern verschoben ist (Abb. 5.4(e)).

Um 20:00 UTC unterscheiden sich die Form von $N_{CCN}(s)$ und $N_{CCN}(s)/N_A$ an den drei Punkten deutlich voneinander (Abb. 5.4(b) und 5.4(d)). Vergleicht man Punkt 1 mit Punkt 2, so sieht man, dass $N_{CCN}(s)$ an Punkt 2 für $s < 0,35 \%$ niedriger ist als an Punkt 1 und erst für $s > 0,35 \%$ höher als an Punkt 1 wird, obwohl N_A an Punkt 2 deutlich höher als an Punkt 1 ist ($N_A = 10564 \text{ cm}^{-3}$ an Punkt 2 und $N_A = 1526 \text{ cm}^{-3}$ an Punkt 1). Dies begründet sich durch die unterschiedlichen Größenverteilungen an den beiden Punkten (Abb. 5.4(f)). An Punkt 1 sind mehr größere Partikel vorhanden als an Punkt 2, daher ist $N_{CCN}(s)$ für kleine Übersättigungen an Punkt 2 niedriger als an Punkt 1. Mit steigender Übersättigung werden zunehmend auch die kleinen Partikel aktiviert. Als Folge dessen steigt $N_{CCN}(s)$ an Punkt 2 immer weiter an, während an Punkt 1 schnell das Maximum erreicht wird. Anhand des Verlaufs von $N_{CCN}(s)/N_A$ (Abb. 5.4(d)) lässt sich der Einfluss der unterschiedlichen Größenverteilungen gut erkennen. Bei Punkt 1 und Punkt 3 steigt $N_{CCN}(s)/N_A$ zunächst schnell an, wobei der Großteil der Partikel schon bei $s = 0,5\%$ aktiviert ist. Bei Punkt 2 steigt $N_{CCN}(s)/N_A$ kontinuierlich mit zunehmendem s immer weiter langsam an.

Die unterschiedlichen $N_{CCN}(0, 1\%)$ an den drei Punkten lassen sich somit direkt mit den unterschiedlichen Größenverteilungen des Aerosols erklären. Die veränderliche chemische Zusammensetzung modifiziert die Verteilungen der $N_{CCN}(s)$ noch zusätzlich, wird jedoch an dieser Stelle nicht weiter erörtert, da in der Simulation der Einfluss der Größenverteilung dominant ist. Die chemische Zusammensetzung bestimmt jedoch die Größe der Partikel durch Kondensationsprozesse maßgeblich mit und ist somit ebenfalls eine nicht zu vernachlässigende Einflussgröße.

In Abbildung 5.5 sind verschiedene, aus Messungen abgeleitete, $N_{CCN}(s)$ für eine kontinentale Luftmasse dargestellt. Die $N_{CCN}(s)$ haben die Form eines Potenzgesetzes nach Twomey (1959):

$$N_{CCN}(s) = Cs^k.$$

Die Werte für C und k wurden Pruppacher und Klett (1997) entnommen. Vergleicht man die simulierten $N_{CCN}(s)$ in Abbildung 5.4 mit den empirischen $N_{CCN}(s)$ in Abbildung 5.5, so lässt sich erkennen, dass die simulierten $N_{CCN}(s)$ im zu erwarteten Bereich für eine kontinentale Luftmasse liegen. Die simulierten $N_{CCN}(s)$ an den drei ausgewählten Punkten decken die gesamte Spannbreite der empirisch bestimmten $N_{CCN}(s)$ ab. Auf der betrachteten regionalen Skala ist somit eine explizite Berechnung der $N_{CCN}(s)$ notwendig. Die Annahme eines festgeschriebenen $N_{CCN}(s)$ für das gesamte Simulationsgebiet und den

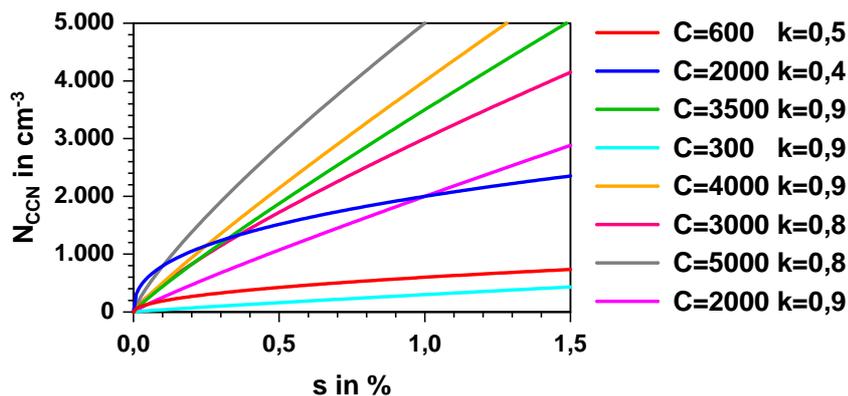


Abb. 5.5.: Empirisch abgeleitete Verläufe für $N_{CCN}(s)$ nach Pruppacher und Klett (1997) für eine kontinentale Luftmasse.

gesamten Simulationszeitraum würde zu großen Fehlern bei der Berechnung der Wolken Tropfenanzahldichten führen.

Zusätzlich zur horizontalen Verteilung der $N_{CCN}(s)$ treten auch Änderungen in der vertikalen Verteilung während des Simulationszeitraums auf. In den Abbildungen 5.6(a) bis 5.6(c) sind Vertikalschnitte der $N_{CCN}(0,1\%)$ bei $y = 315$ km zusammen mit dem Umriss der Wolken dargestellt. Am 18. August, 12:00 UTC befindet sich das Gebiet noch unter starkem Hochdruckeinfluss. Da als Folge dessen kein effektiver Vertikaltransport in größere Höhen möglich ist, finden sich nur in der Grenzschicht signifikante Anzahldichten für $N_{CCN}(0,1\%)$ mit Werten um 400 cm^{-3} . Am 19. August, 9:00 UTC befindet sich das Gebiet nun schon vorderseitig des herannahenden Höhentrogs und es kommt sowohl zu einem verstärkten Vertikaltransport von Aerosol in die freie Troposphäre als auch zur Bildung von Wolken. Die $N_{CCN}(0,1\%)$ nehmen durch den Vertikaltransport nun auch in Höhen größer 2000 m Werte $> 200 \text{ cm}^{-3}$ an und stehen dort bei der Wolkenbildung zur Verfügung. Am 19. August, 20:00 UTC hat die herannahende Front das Gebiet von Westen her erreicht. Hierbei kommt es zur Advektion von hohen $N_{CCN}(0,1\%)$ in das Modellgebiet. In Höhen über 2000 m werden nun auch Werte von $N_{CCN}(0,1\%) > 300 \text{ cm}^{-3}$ erreicht.

Die Maxima der $N_{CCN}(0,1\%)$ treten, wie schon in der betrachteten horizontalen Verteilung, insbesondere im Bereich der Wolken auf, was auf eine Korrelation von Wolken mit lokalen Maxima der Wolkenkondensationskerne hindeutet. Die erklärt sich dadurch, dass sowohl die Bildung von Wolken als auch der Transport des Aerosols in höhere Schichten durch die gleichen dynamischen Prozesse bestimmt werden. Ein Aufwind führt zum Beispiel zum Einem zu einer Umverteilung des Aerosols in der Vertikalen und somit im Allgemeinen zu erhöhten $N_{CCN}(s)$ in der Höhe und zum Anderen führt er zur Bildung von Wolken. Zudem kommt es im Bereich der Wolken zu hohen relativen Feuchten, was durch chemische Prozesse ebenso Auswirkungen auf das Aerosol hat. Die Verteilung der $N_{CCN}(s)$ und der Wolken ist daher miteinander korreliert. Da COSMO-ART ein online gekoppeltes Modellsystem ist, werden diese Effekte in den Simulationen erfasst. Dies stellt einen großen Vorteil des Modellsystems dar.

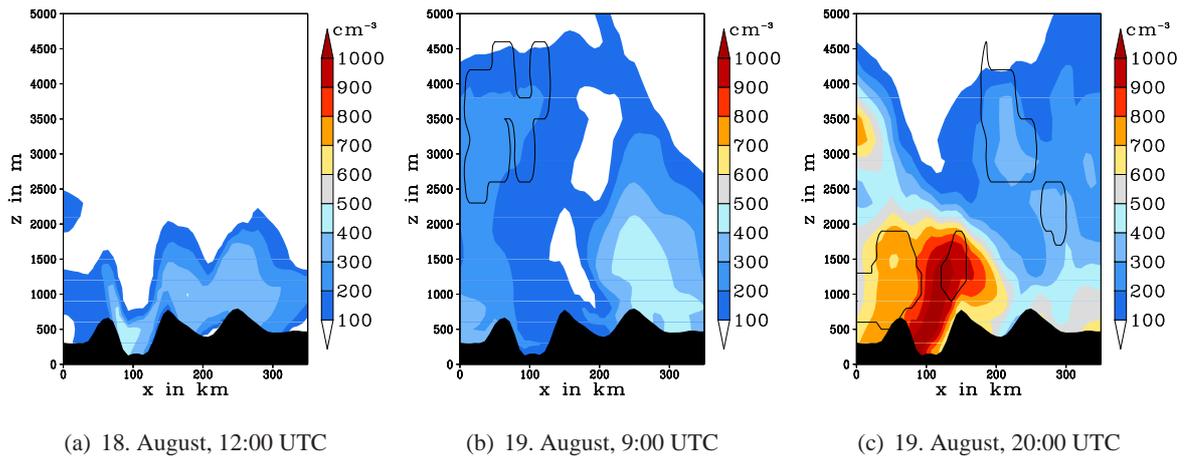


Abb. 5.6.: Vertikalschnitt bei $y = 315$ km durch das Modellgebiet; Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}(0, 1\%)$ in cm^{-3} in Farben; Bereiche, welche Wolkenwasser enthalten, sind mit schwarzen Linien umrandet; SIM_{CCN} ; August 2005.

5.2. Scavenging von Aerosol durch Aktivierung

Die Aktivierung von Aerosolpartikeln stellt eine Senke des atmosphärischen Aerosols dar, da die Partikel in den entstehenden Wolkentropfen eingeschlossen werden. Die Aufnahme von Aerosolpartikeln durch Wolken- oder Regentropfen wird allgemein als Scavenging bezeichnet (Wacker und Beheng, 1993). Da die Evaporation von Wolkentropfen als Quelle des Aerosols in der verwendeten Modellversion nicht berücksichtigt wird, ist mit der Zeit mit einem zunehmenden Verlust von Aerosolmasse innerhalb des Modells zu rechnen. Die Beschreibung der Evaporation und der Prozessierung des Aerosols innerhalb der Wolken erfordert zusätzliche Bilanzgleichungen für das eingeschlossene Aerosol und geht über den Rahmen dieser Arbeit hinaus. Um den Einfluss der Aktivierung auf eine Aerosolverteilungen bestimmen zu können, wurde eine Simulation SIM_{SCAV} durchgeführt, welche die Aktivierung als zusätzlichen Senkenterm in den Bilanzgleichungen des Aerosols berücksichtigt. Die Simulation enthält alle in Kapitel 4 beschriebenen Erweiterungen des Modellsystems. Anhand der resultierenden Differenzen zur Simulation mit der Standardversion von COSMO-ART SIM_{STD} lässt sich abschätzen, wie viel Prozent des Aerosols innerhalb eines Tages aktiviert werden und bei der Entstehung von Wolken in den Wolkentropfen aufgenommen werden.

Im Folgenden wird die Verteilung des Aerosols am 20. August 2005, 0:00 UTC nach 24 Stunden Simulationszeit mit zugeschalteter Aktivierung betrachtet. Bis zu diesem Zeitpunkt ist es in großen Teilen des Simulationsgebiets schon zur Bildung von Wolken gekommen. In den Abbildungen 5.7(a) bis 5.7(b) ist die relative Differenz der Anzahldichte und Massendichte zwischen SIM_{SCAV} und SIM_{STD} dargestellt. Die Abbildungen beziehen sich auf Modellschichten, welchen ein geländefolgendes Koordinatensystem zugrunde liegt. Modellschicht 20 entspricht hierbei im Mittel ca. 4500 m über NN und Modellschicht 10 ca. 1200 m. In SIM_{SCAV} ist die Anzahldichte und die Massendichte des Aerosols im Bereich der Bewölkung signifikant reduziert. Die Differenzen der Massendichte sind höher als die Differenzen der

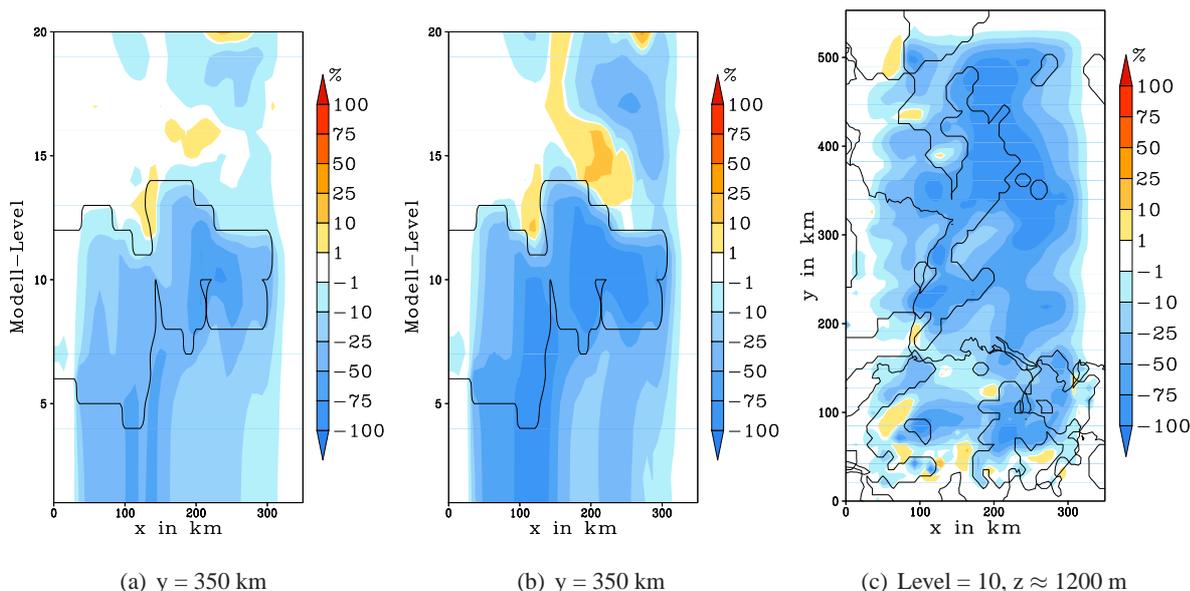


Abb. 5.7.: Relative Abnahme der Anzahldichte (a) und der Massendichte (b) und (c) in SIM_{SCAV} im Vergleich zu SIM_{STD} in % am 20. August 2005, 0:00 UTC. Bereiche, welche Wolkenwasser enthalten, sind schwarz umrandet.

Anzahldichte, da die größten Partikel als erstes aktiviert werden. Die relative Änderung der Anzahldichte innerhalb der Bewölkung beträgt im Mittel ca. 50 %, während die relative Änderung der Massendichte des Aerosols zum Großteil über 75 % liegt. Da sich die Wolkenbasis in der atmosphärischen Grenzschicht befindet, kommt es mit der Zeit infolge der turbulenten Durchmischung und der fehlenden Berücksichtigung der Evaporation auch unterhalb der Bewölkung zu einer starken Reduktion der Anzahldichte und der Massendichte. Betrachtet man die Differenzen der Massendichte des Aerosols in der Horizontalen für eine Modellschicht in Höhe der Bewölkung (Abb. 5.7(c)), so sieht man, dass es schon nach 24 Stunden Simulationszeit im Großteil des Simulationsgebiets zu einer Reduktion der Massendichte von 50 % bis nahezu 100 % kommt. Hieraus folgt direkt, dass der Großteil des vorhandenen Aerosols in dieser Schicht innerhalb von 24 Stunden bei der Bildung von Wolken beteiligt war.

Da es durch Transportprozesse auch außerhalb der Wolken zu einer signifikanten Reduktion der Anzahl- und der Massendichte des Aerosols während der Simulation kommt, wird in den folgenden Simulationen wieder auf die Erweiterung der Aerosolbilanzgleichung verzichtet. Um den Einfluss der Aktivierung auf das Aerosol im Modell berücksichtigen zu können, muss das Modell zusätzlich um weitere Bilanzgleichungen für die in den Wolken enthaltene Aerosolmasse erweitert werden.

5.3. Simulation der Wolkentropfenanzahldichten

Die Anzahl der Tropfen in einer Wolke wird maßgeblich durch die Anzahl der zur Verfügung stehenden Wolkenkondensationskerne bestimmt und ist somit abhängig von der Anzahl und den Eigenschaften des vorhandenen Aerosols. Mit den in Kapitel 4 vorgestellten Erweiterungen des Modell-Systems COMSO-

ART ist eine prognostische Berechnung der Wolkentropfenanzahldichten N_c , gekoppelt mit den simulierten Aerosolverteilungen, möglich.

Die Simulation SIM_{VAR} wurde mit den in Kapitel 4.2 vorgestellten Erweiterungen des Wolkenschemas durchgeführt. Die Wolkentropfenanzahldichte wird somit als zusätzliche prognostische Größe im Modell in Abhängigkeit des Aerosols und der mikrophysikalischen Prozesse innerhalb der Wolken berechnet. Auf die Erweiterung der Aerosolbilanzgleichung um den Senkenterm für die Aerosolaktivierung wurde verzichtet. Die Simulationen beinhalten somit keine Änderung der Aerosolverteilung infolge der Aktivierung.

Da SIM_{VAR} in die Ergebnisse von SIM_{EURO} genestet wurde, muss an den Rändern des Simulationsgebiets N_c vorgegeben werden. Als Wert für N_c wurde hierfür der Standardwert des COSMO-Modells $N_c = 500 \text{ cm}^{-3}$ verwendet. Der Einfluss der Randwerte ist jedoch auch für Wolken, welche in das Simulationsgebiet wandern, nach maximal 100 km abgeklungen.

Im Folgenden werden die simulierten Verteilungen der N_c exemplarisch an zwei Zeitpunkten betrachtet, bei denen es zur Bildung von Wolken innerhalb des Simulationsgebiets gekommen ist. In den Abbildungen 5.8(a) bis 5.8(d) ist die Wolkentropfenanzahldichte N_c und der Wolkenflüssigwassergehalt q_c für den 19. August 2005, 23:00 UTC dargestellt. Zu diesem Zeitpunkt hat sich entlang des Oberrheingrabens Bewölkung entwickelt. Hierbei handelt es sich um tiefe Wolken, welche sich über einen Höhenbereich von ca. 500 m bis maximal 2500 m über NN erstrecken. Die Bildung der Wolken ist auf die Passage der Front zu diesem Zeitpunkt und im Speziellen im Bereich des Schwarzwalds und der Vogesen auf die westliche Anströmung und die damit verbundenen orografisch induzierten Vertikalbewegungen zurückzuführen. Am westlichen Rand des Simulationsgebiets wandern Wolken unterhalb von 1500 m über NN in das Simulationsgebiet und es entstehen Wolken im Bereich der Alpen an der Grenze zwischen der Schweiz und Österreich.

Die berechneten Anzahldichten der Wolkentropfen N_c erreichen zu diesem Zeitpunkt Werte von wenigen 10 cm^{-3} bis ca. 500 cm^{-3} . Die horizontale Verteilung von N_c ist allgemein sehr variabel, weist aber für Höhen größer 1500 m eine zunehmende Korrelation von Bereichen mit relativ hohem N_c und hohem q_c auf. In Abbildung 5.8(d) ist ein Vertikalschnitt durch das Simulationsgebiet bei $x = 133 \text{ km}$ dargestellt. N_c ist im Allgemeinen in der Nähe der Wolkenbasis am Höchsten und nimmt mit zunehmender Höhe ab. Dies folgt aus der Tatsache, dass die Aktivierung von Aerosolpartikeln nur an der Wolkenbasis möglich ist. Mit zunehmender Höhe und somit zunehmendem Alter der Tropfen wird N_c durch Diffusion aus der Wolke und Koagulation zwischen den Wolkentropfen erniedrigt. Die vertikale Verteilung von q_c weist im Gegensatz zu N_c die höchsten Werte im oberen Bereich der Wolke auf. Die Werte von N_c und deren vertikale Verteilung innerhalb der Wolken haben, verglichen mit Beobachtungen, welche zum Beispiel in den Monografien von Rogers und Yau (1989) und Pruppacher und Klett (1997) zusammengestellt sind, eine realistische Größenordnung.

In den Abbildungen 5.9(a) bis 5.9(d) ist N_c und q_c für den 20. August 2005, 13:00 UTC dargestellt. Die Bewölkung, welche sich in der Nacht gebildet hatte, hat sich aufgelöst und es sind neue Wolken

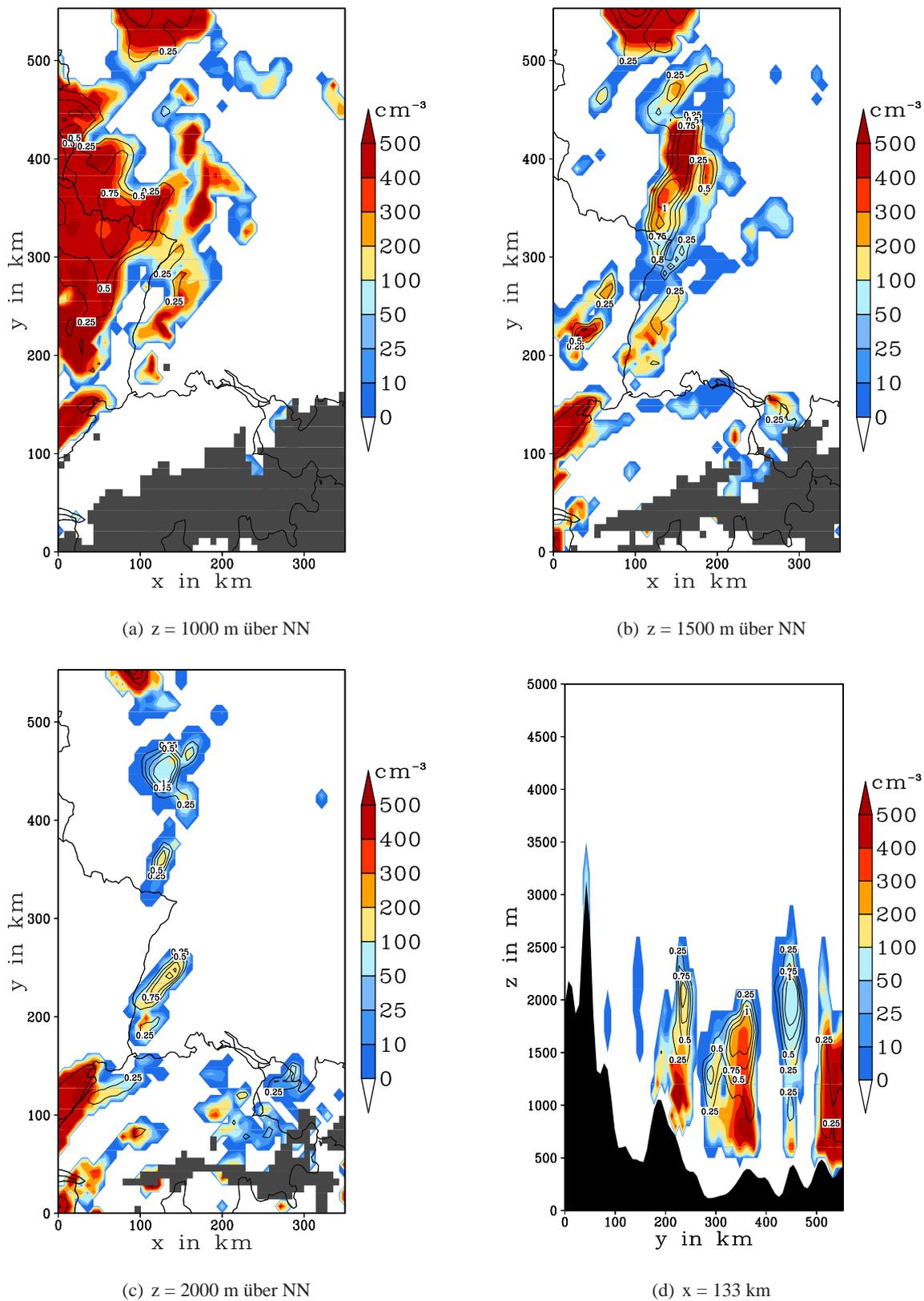


Abb. 5.8.: (a)-(d) Wolkentropfenzahldichte N_c in cm^{-3} in Farben und Isolinien des Wolkenflüssigwassergehalts q_c in g/kg ; für den 19. August 2005, 23:00 UTC in SIM_{VAR} .

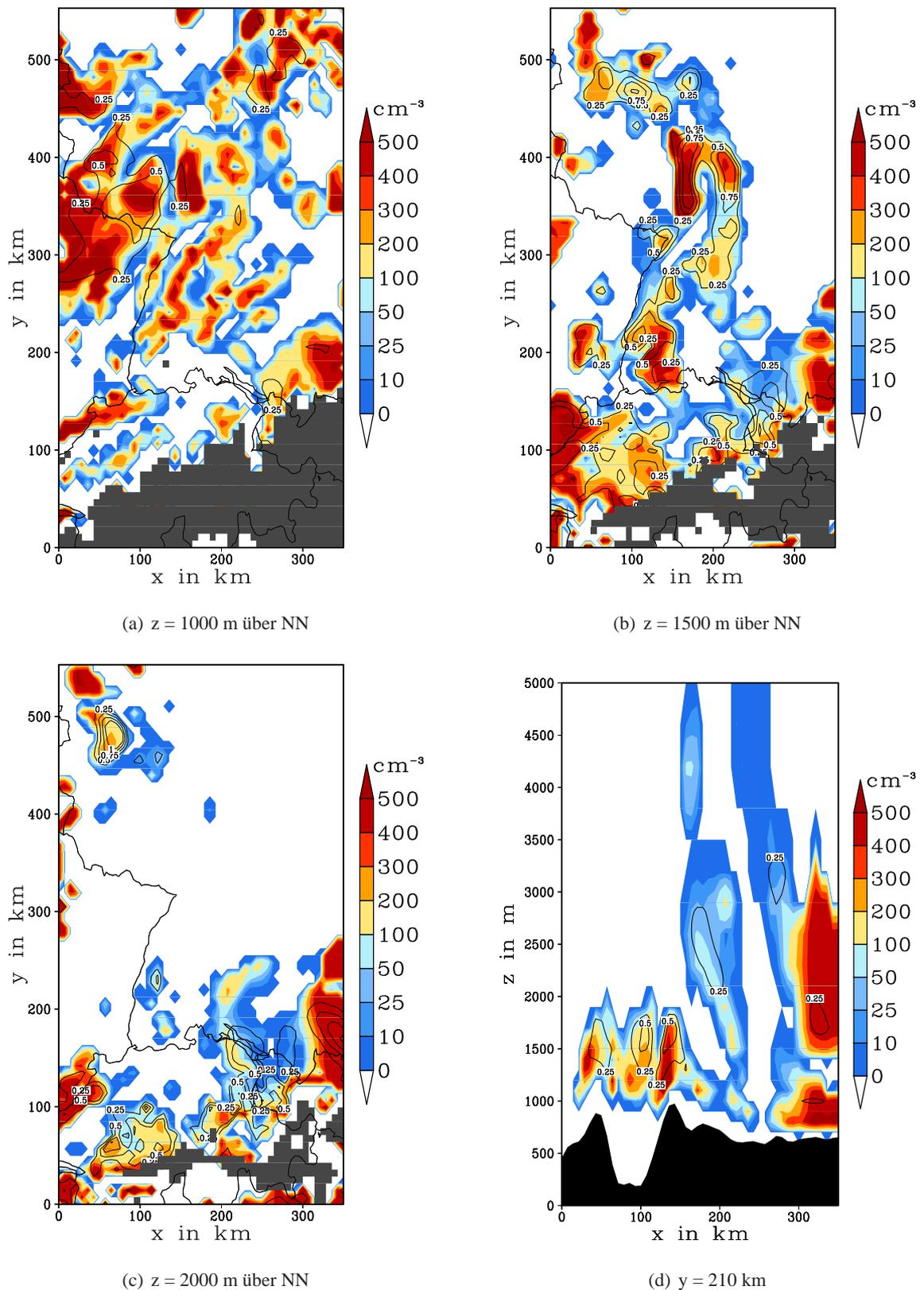


Abb. 5.9.: (a)-(d) Wolkentropfenzahldichte N_c in cm^{-3} in Farben und Isolinien des Wolkenflüssigwassergehalt q_c in g/kg ; für den 20. August 2005, 13:00 UTC in SIM_{VAR} .

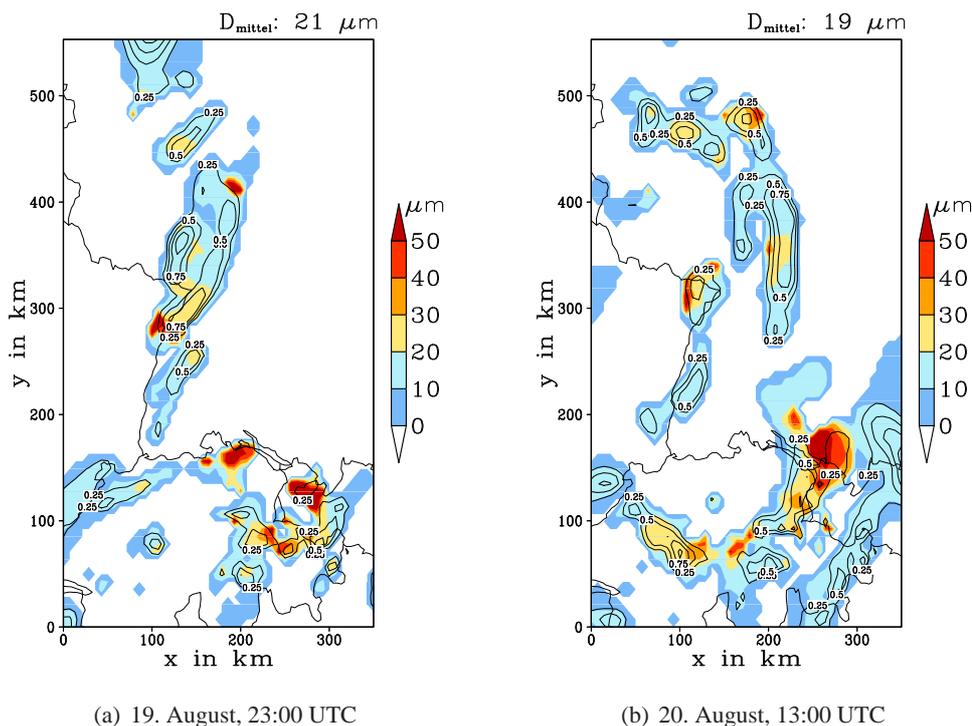


Abb. 5.10.: Mittlerer Tropfendurchmesser \bar{D} in μm in Farben und Wolkenwassergehalt q_c in g/kg mit Isolinien; auf einer geländefolgenden Modellschicht in ca. 1500 m über NN für zwei Zeitpunkte in SIM_{VAR} ; August 2005.

entstanden. Im Großteil des Simulationsgebiets haben sich tiefe Wolken (Abb. 5.9(a)) gebildet, welche hohe N_c aber meist niedriges q_c besitzen. N_c bewegt sich in der gleichen Größenordnung wie zuvor mit Werten von maximal $500 - 600 \text{ cm}^{-3}$. Die Bewölkung in der Höhe von 1500 m besitzt die höchsten N_c und q_c im Bereich der Mittelgebirge und nordöstlich von Karlsruhe. In Abbildung 5.9(d) ist ein Vertikalschnitt bei $y = 210 \text{ km}$ dargestellt. Auch hier treten die höchsten Werte für N_c im unteren Bereich der Wolke und für q_c im oberen Bereich der Wolken auf. Im Luv des Schwarzwalds ist N_c am höchsten. In den Wolken höher als 2000 m über NN ist N_c niedriger als in der tiefen Bewölkung, da die Verfügbarkeit der N_{CCN}^* mit der Höhe im Allgemeinen abnimmt. Im Maximum betragen die Werte von N_c oberhalb von 2000 m ca. 200 cm^{-3} . Die hohen Werte östlich von $x = 300 \text{ km}$ kommen durch den festgelegten Randwert zustande.

Da im Modell zur Entstehung einer Wolke und zur Bestimmung von q_c nur die verwendete Sättigungsadjustierung (siehe Kap. 3.2) maßgeblich ist, ist die Berechnung von N_c und q_c bei der Entstehung einer Wolke voneinander entkoppelt. Zur Überprüfung, ob die berechneten N_c mit den q_c in einem realistischen Verhältnis stehen, wurde der mittlere Durchmesser der Wolkentropfen \bar{D} für jede Gitterzelle berechnet:

$$\bar{D} = \left(\frac{6}{\pi \rho_w} \frac{q_c \rho_h}{N_c} \right)^{1/3}.$$

Die Verteilung von \bar{D} ist in Abbildung 5.10(a) und 5.10(b) für die beiden betrachteten Zeitpunkte auf einer Modellschicht dargestellt. Die Höhe der Schicht entspricht im Großteil des Simulationsgebiets

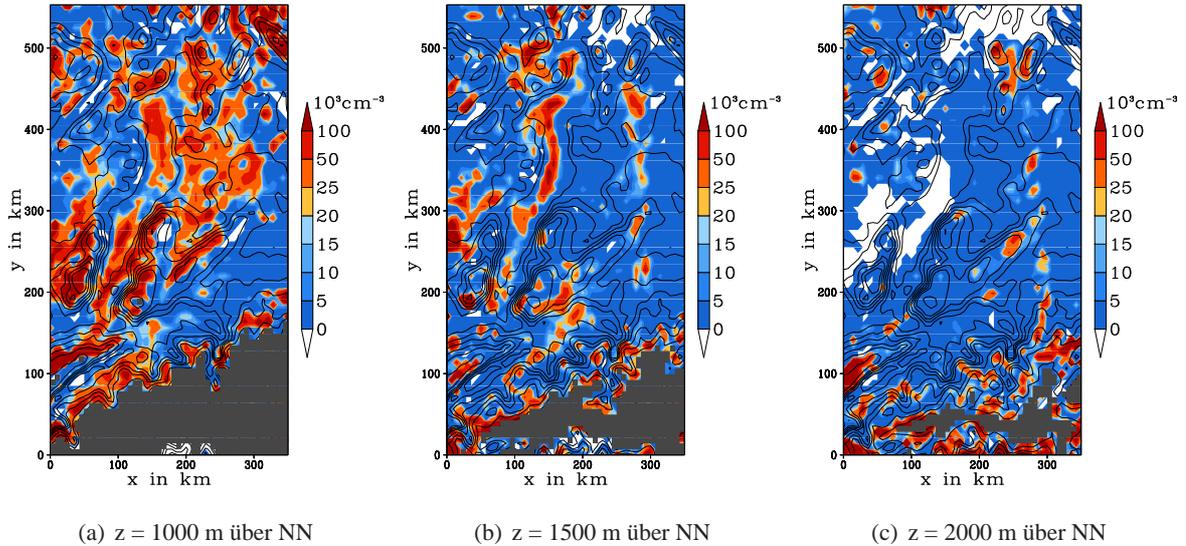


Abb. 5.11.: (a)-(c) Anzahldichte der aktivierten Partikel N_{tot}^* in 10^3 cm^{-3} an jedem Gitterpunkt, aufsummiert über den Zeitraum vom 19. bis 20. August 2005 für drei Höhen; mit Isohypsens der Orografie; in SIM_{VAR} .

einer Höhe von ca. 1500 m über NN. Im Bereich der Mittelgebirge und speziell im Bereich der Alpen liegt sie jedoch höher, da ein geländefolgendes Koordinatensystem verwendet wird. Zusätzlich zu \bar{D} ist das arithmetische Mittel D_{mittel} für alle bewölkte Gitterpunkte der beiden Verteilungen angegeben. D_{mittel} ist zu beiden Zeitpunkten ca. $20 \mu\text{m}$. \bar{D} umfasst zu beiden Zeitpunkten Werte von kleiner $10 \mu\text{m}$ bis zu lokal größer $50 \mu\text{m}$. Werte kleiner $10 \mu\text{m}$ treten in Bereichen mit niedrigem q_c auf. Werte größer $50 \mu\text{m}$ sind primär im Bereich der Alpen zu finden. Im Luv der Alpen werden die größten Aufwinde innerhalb der Wolken im Modell erreicht. Da innerhalb von Wolken keine Aktivierung zugelassen ist, kommt es hierbei nur zu einer Erhöhung von q_c ohne zusätzliche Nukleation neuer Wolkentropfen. Als Folge dessen ist \bar{D} in diesen Bereichen erhöht. Die Werte um $50 \mu\text{m}$ bei sehr kleinen q_c , wie zum Beispiel an den Rändern der Bewölkung, lassen sich dadurch erklären, dass in der Aktivierungsparametrisierung keine Aktivierung infolge von Mischungsvorgänge im Allgemeinen und im Speziellen an den Wolkenrändern berücksichtigt ist. Im Bereich der tiefen Wolken in der nördlichen Hälfte des Simulationsgebiets liegen die \bar{D} im Bereich von $10 \mu\text{m}$ bis $30 \mu\text{m}$. Die höchsten Werte werden hierbei im Bereich der höchsten Werte für q_c erreicht.

Verglichen mit Beobachtungen, zum Beispiel in Pruppacher und Klett (1997) und Rogers und Yau (1989), liegt \bar{D} in einem realistischen Größenbereich und ist deutlich unterhalb des Durchmessers von $80 \mu\text{m}$, welcher die Wolkentropfen von den Regentropfen im COSMO-Modell trennt.

Um abzuschätzen, in welchen Bereichen und in welche Höhen die Aktivierung der Aerosolpartikel primär stattfindet, wurde die akkumulative Anzahldichte der aktivierten Partikel an jedem Gitterpunkt für den Zeitraum vom 19. bis 20. August bestimmt:

$$N_{tot}^* = \int_{19. \text{ Aug.}}^{20. \text{ Aug.}} S^{N,nuk}.$$

In Abbildung 5.11(a) bis 5.11(c) ist N_{tot}^* für drei Höhen dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass in 1000 m über NN die meisten Partikel aktiviert wurden. Mit zunehmender Höhe gibt es immer weniger Bereiche mit hohem N_{tot}^* . In 2000 m über NN treten nur noch vereinzelt kleine Gebiete mit hohem N_{tot}^* auf. Die vertikale Abnahme von N_{tot}^* erklärt sich dadurch, dass die Aktivierung von Aerosolpartikeln im Modell nur bei der Neubildung einer Wolke, welche in dem betrachteten Fall zumeist in Höhen um 1000 m einsetzt, und an der Wolkenbasis stattfindet. In der horizontalen Verteilung von N_{tot}^* ist eine starke Korrelation mit der Orografie in allen drei Höhenschichten zu erkennen. Insbesondere in 1000 m Höhe im Bereich der Mittelgebirge treten hohe Werte für N_{tot}^* im Luv und niedrigere Werte für N_{tot}^* im Lee der Mittelgebirge auf. Die hohen Werte von N_{tot}^* kommen hierbei zum Einen durch die Entstehung von Wolken im Luv der Gebirge und zum Anderen durch eine vermehrte Aktivierung von Partikeln an der Wolkenbasis bestehender Wolken zustande. In 1500 m über NN zeichnet sich zudem im Bereich des Oberrheingrabens zwischen $y = 330$ km bis $y = 450$ km ein Bereich mit hohen Werten von N_{tot}^* ab. Dies deutet auf eine vermehrte Entstehung von Wolken in diesem Bereich während des Simulationszeitraums hin (vgl. Abb. 5.8(b) und 5.9(b)).

5.4. Einfluss des Aerosols auf Wolkeneigenschaften und Niederschlag

In SIM_{VAR} wurde die Anzahldichte der Wolkentropfen in Abhängigkeit der variablen Eigenschaften der Aerosolpartikel und deren räumlicher und zeitlicher Verteilung berechnet (Kap. 5.3). Als Folge dessen ergeben sich Sensitivitäten in der Niederschlagsbildung aufgrund der räumlichen und zeitlichen Variabilität des Aerosols. Die modifizierte Niederschlagsbildung beeinflusst mit der Zeit den Wassergehalt der Wolken und als Folge dessen die Lebensdauer der Wolken. Durch die Modifizierung der Wolkeneigenschaften ergeben sich wiederum Änderungen im Strahlungshaushalt der Atmosphäre.

Um die Modifikationen der Wolkeneigenschaften und des Niederschlags, welche durch das simulierte Aerosol entstehen, zu bestimmen, wurde eine zusätzliche Simulation durchgeführt. Hierbei wurde für das gesamte Simulationsgebiet und den gesamten Simulationszeitraum eine konstante Aerosolgrößenverteilung angenommen. Als konstantes Aerosol wurde die Größenverteilung an Punkt 1 am 19. August, 9:00 UTC verwendet (siehe Abb. 5.4(a), 5.4(c) und 5.4(e) in Kap. 5.1). Das konstante Aerosol, bzw. das dazu korrespondierende N_{CCN} , entspricht somit den Bedingungen vor Erreichen der Front. Wie in Kapitel 5.1 gezeigt wurde, kommt es im weiteren Verlauf der Simulation zu deutlich höherem N_{CCN} , insbesondere im Bereich der Wolken. Daher sind Unterschiede in der Wolkentropfenanzahl und dem Niederschlag im Vergleich zu SIM_{VAR} zu erwarten. Die Simulation ist ansonsten identisch mit SIM_{VAR} und wird im Folgenden mit SIM_{FIX} bezeichnet. Unterschiede in den beiden Simulationen ergeben sich somit ausschließlich aufgrund der Variabilität des Aerosols in SIM_{VAR} im Vergleich zum räumlich und zeitlich konstanten Aerosol in SIM_{FIX} .

Im Folgenden wird die Entwicklung der Bewölkung und des Niederschlags für den Zeitraum vom 20. August 2005, 0:00 UTC bis 20. August 2005, 12:00 UTC betrachtet. In diesem Zeitraum befindet sich das Simulationsgebiet unter einer westlichen Anströmung. In Abbildung 5.12(a) und 5.12(b) sind N_c und

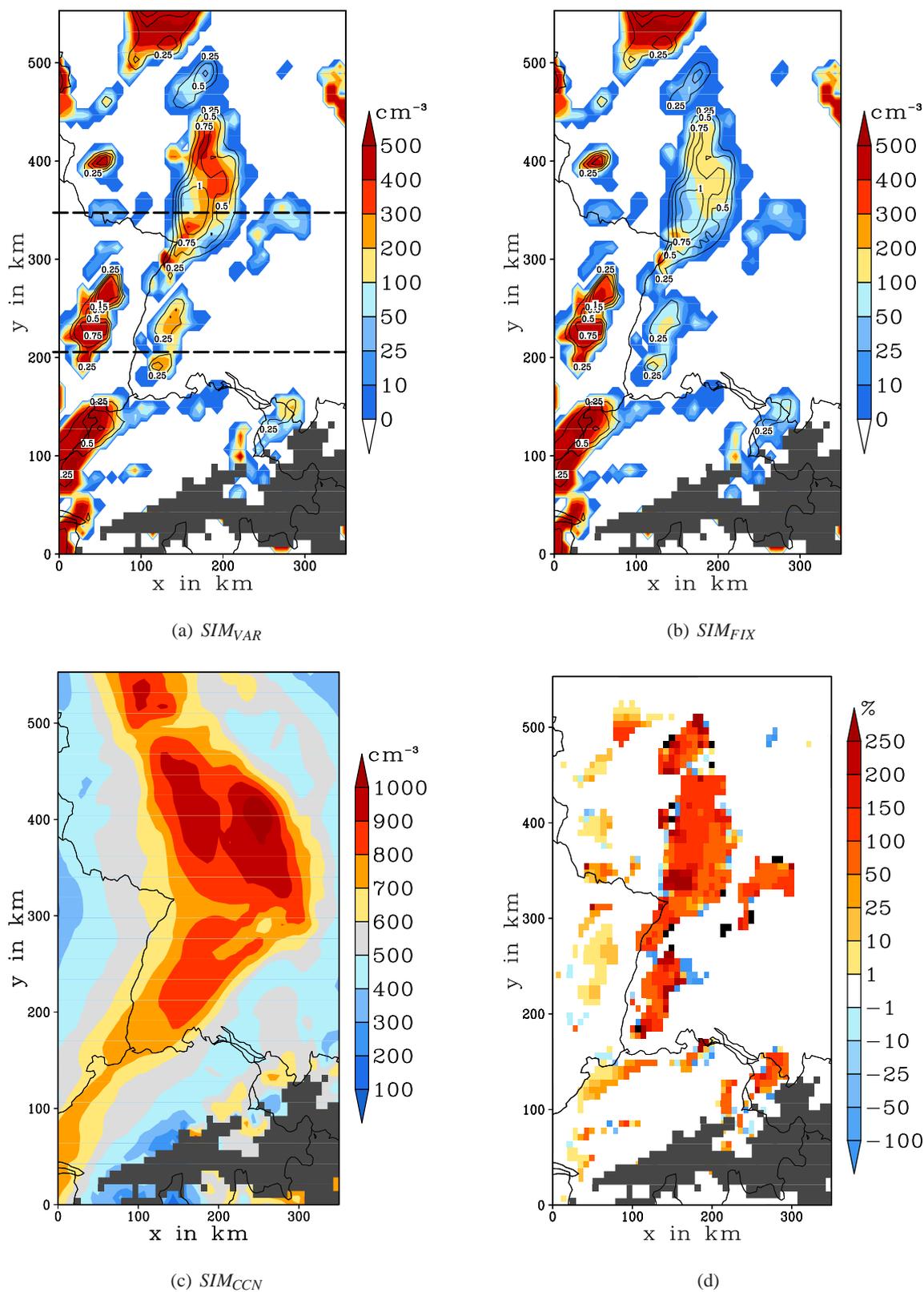


Abb. 5.12.: (a) und (b) Wolkentropfenanzahldichten N_c in cm^{-3} in Farben; Wolkenwassergehalt q_c in g/kg mit Isolinien; (c) Anzahlddichte der Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}(0, 1\%)$ in cm^{-3} ; (d) relative Abweichung der Wolkentropfenanzahldichten von (a) zu (b) in %; (a)-(d) für $z = 1500$ m über NN am 20. August 2005, 0:00 UTC.

q_c für die Simulationen SIM_{VAR} und SIM_{FIX} für 0:00 UTC dargestellt. Im Folgenden werden die Wolken, welche sich am Schwarzwald und im Bereich des nördlichen Oberrheins gebildet haben, näher betrachtet. q_c ist zu diesem Zeitpunkt in beiden Simulationen noch näherungsweise identisch. N_c unterscheidet sich jedoch stark zwischen den beiden Simulationen. In SIM_{VAR} werden Werte von N_c bis zu 500 cm^{-3} erreicht. In SIM_{FIX} ist N_c zum Großteil kleiner als 200 cm^{-3} . Abbildung 5.12(c) zeigt die Verteilung der $N_{CCN}(s)$ für $s = 0,1\%$, welche in Kapitel 5.1 bestimmt wurden. Da die Aktivierung als Senke des Aerosols in SIM_{VAR} nicht enthalten ist, entspricht die Verteilung von $N_{CCN}(0,1\%)$ in Abbildung 5.12(c) näherungsweise der zugrundeliegenden $N_{CCN}(s)$ -Verteilung in SIM_{VAR} aus der sich die Wolken gebildet haben. $N_{CCN}(0,1\%)$ für das konstante Aerosol in SIM_{FIX} beträgt zum Vergleich ca. 200 cm^{-3} . Das höhere N_c in SIM_{VAR} erklärt sich somit durch die erhöhte Verfügbarkeit von Wolkenkondensationskernen im Bereich der Bewölkung. In Abbildung 5.12(d) ist die relative Abweichung von SIM_{VAR} bezogen auf SIM_{FIX} dargestellt. Im Bereich mit hohem $N_{CCN}(0,1\%)$ beträgt die relative Abweichung von N_c zwischen den Simulationen deutlich über 100 %. In den Bereichen mit niedrigeren $N_{CCN}(0,1\%)$ ist die relative Abweichung unterhalb 100 %. Das Aerosol, bzw. die zur Verfügung stehenden Wolkenkondensationskerne, haben somit einen signifikanten Einfluss auf die Anzahldichte der Wolkentropfen.

Da die N_c direkten Einfluss auf die Autokonversionsrate besitzen, sind Unterschiede im Niederschlag zwischen SIM_{VAR} und SIM_{FIX} zu erwarten. Zur Quantifizierung des Einflusses der variablen Aerosolverteilung auf die Niederschlagsbildung wird die zeitliche Entwicklung des Niederschlags bei $y = 350 \text{ km}$ und $y = 210 \text{ km}$ (siehe Abb. 5.12(a)) für den Zeitraum vom 20. August, 0:00 UTC bis 20. August, 12:00 UTC betrachtet.

Zunächst wird der Fall für $y = 350 \text{ km}$ betrachtet. Hierbei handelt es sich um tiefe Bewölkung, welche sich unterhalb von $z = 2000 \text{ m}$ über NN von $x = 0 \text{ km}$ bis ca. $x = 250 \text{ km}$ erstreckt und eine vertikale Mächtigkeit von ca. 1000 m besitzt. Es handelt sich hierbei um warme Wolken, in welchen der Niederschlag nur über die Autokonversion ausgelöst wird. In Abbildung 5.12(a) und 5.12(b) ist die Bewölkung für $z = 1500 \text{ m}$ über NN dargestellt. In beiden Simulationen kommt es innerhalb der ersten Stunden zu geringem Niederschlag. In SIM_{FIX} erreichen die stündlichen Niederschlagsmengen innerhalb der ersten vier Stunden jeweils bis zu $0,3 \text{ mm}$ (Abb. 5.13(f)). In SIM_{VAR} sind sie deutlich geringer und bleiben zum Teil ganz aus (Abb. 5.13(e)). In der fünften Stunde kommt es in SIM_{FIX} zu einem Niederschlagsmaximum mit Mengen größer $0,5 \text{ mm}$. In SIM_{VAR} hat es in der fünften Stunde zunächst nur schwach geregnet. Erst in der sechsten Stunde wurden Niederschlagsmengen über $0,5 \text{ mm}$ erreicht. Ab der siebten Stunde kommt es weiterhin zu zeitlichen und räumlichen Verschiebungen der gefallen Niederschlagsmengen. Durch die höheren N_c in SIM_{VAR} (Abb. 5.12(d)) kommt es somit zum Einen zu einer starken Abschwächung bis hin zur Unterdrückung der schwachen Niederschläge und zum Anderen zu einer zeitlichen Verzögerung der Niederschlagsmaxima im Vergleich zu SIM_{FIX} . Dies lässt sich direkt darauf zurückführen, dass die Bildung von Regentropfen durch Koagulation von Wolkentropfen bei gleichem q_c für hohe N_c weniger effizient ist als für niedrigere N_c . Die relativen Änderungen der stündlichen Niederschlagsmengen reichen hierbei von -100% bis $+100 \%$.

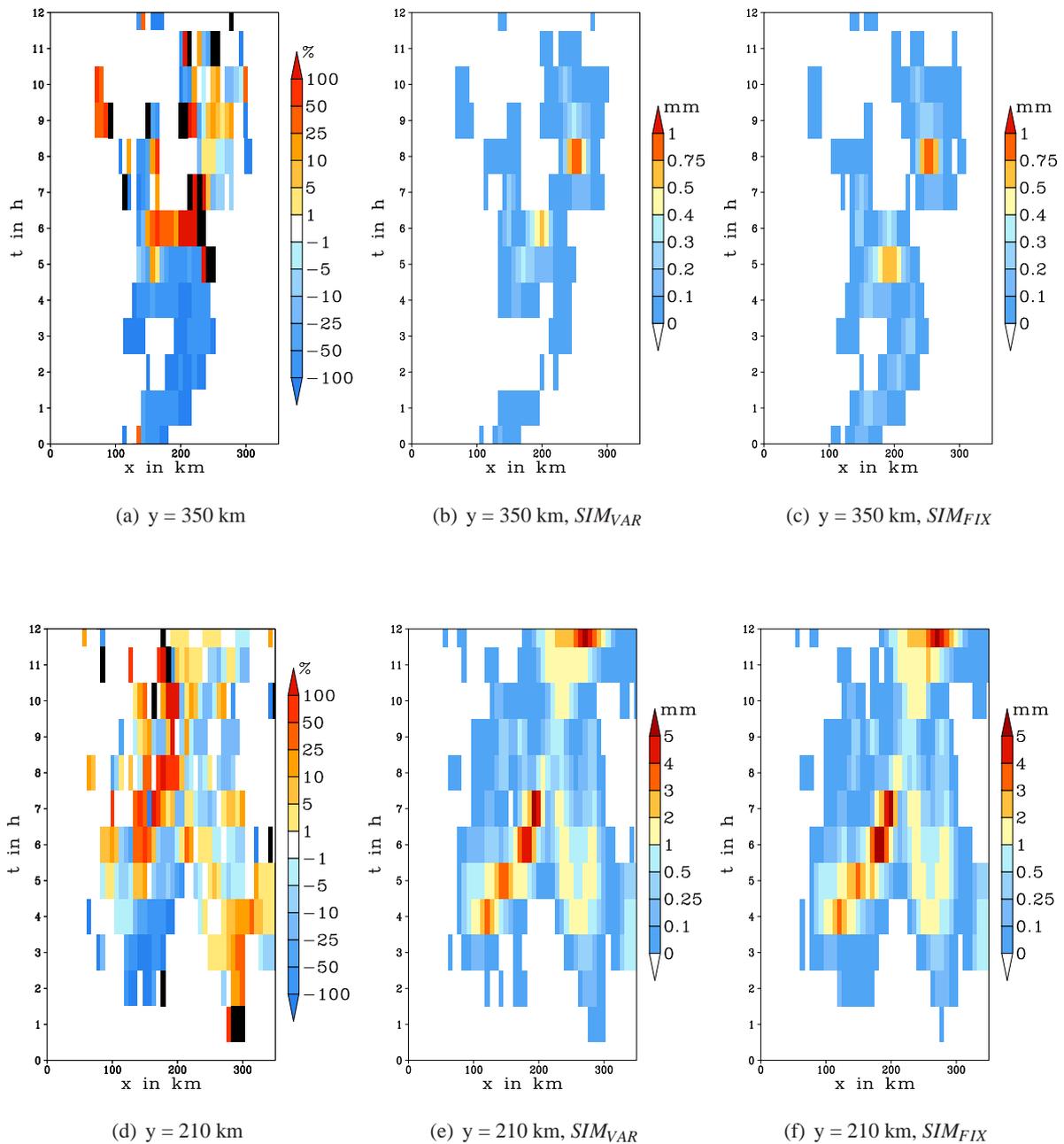


Abb. 5.13.: (a) und (d) relative Abweichung der stündlichen Niederschlagsmengen von SIM_{VAR} zu SIM_{FIX} in %; (b), (c), (e) und (f) stündliche Niederschlagsmengen in SIM_{VAR} und SIM_{FIX} in mm für den Zeitraum vom 20. August 2005, 0:00 UTC bis 20. August 2005, 12:00 UTC.

Bei $y = 210$ km bildet sich im betrachteten Zeitraum zunächst eine Wolke an der Westflanke des Schwarzwalds. Die Wolke wächst innerhalb der ersten Stunden an und erreicht in der vierten Stunde eine vertikale Erstreckung von ca. 3000 m, wobei es zur Bildung von Wolkeneis am Oberrand der Wolke kommt. Im weiteren Verlauf wandert sie weiter nach Westen. In SIM_{FIX} kommt es zunächst zu geringen Niederschlagsmengen im Bereich zwischen $x = 100$ km und $x = 200$ km (Abb. 5.13(f)). In SIM_{VAR} kommt es, wie im vorigen Fall, wiederum zu einer Abschwächung und teilweisen Unterdrückung dieser schwachen Niederschläge (Abb. 5.13(e)). Ab der vierten Stunde kommt es in beiden Simulationen zu Niederschlagsmengen bis 5 mm, wobei sich das Niederschlagsgebiet nach Westen verlagert. Wie in Abbildung 5.13(d) zu erkennen ist, kommt es hierbei und auch im weiteren Verlauf zu leichten zeitlichen und räumlichen Verschiebung des Niederschlags zwischen SIM_{VAR} und SIM_{FIX} . Die erhöhten Niederschläge im Bereich $x = 300$ km in SIM_{VAR} kommen zustande, da es sich hier um die Ausläufer eines starken Niederschlagsgebiets weiter südlich handelt, welche in diesem Bereich nach Norden wandern. Sie sind somit ein Beleg für das verzögerte Einsetzen des Niederschlags in Folge der höheren $N_{CCN}(s)$ in SIM_{VAR} im Vergleich zu SIM_{FIX} . Da im Gegensatz zum vorherigen Fall ($y = 350$ km) nun zusätzlich ab der vierten Stunde die Eisphase der Wolke eine Rolle bei der Niederschlagsbildung spielt, treten zusätzliche Wechselwirkungen zwischen fester und flüssiger Phase innerhalb der Wolke auf. Die Variationen im Niederschlag sind folglich nicht mehr ausschließlich auf die Änderung der Autokonversionsrate zurückzuführen.

Aufgrund der räumlichen und zeitlichen Verschiebung des Niederschlags folgen Differenzen im Flüssigwassergehalt q_c der Wolken zwischen den beiden Simulationen. In Abbildung 5.13(a) und 5.13(d) ist zu erkennen, dass in beiden Fällen in den ersten fünf Stunden in SIM_{VAR} aufgrund der höheren N_c deutlich weniger Niederschlag gefallen ist als in SIM_{FIX} . Als Folge dessen ergeben sich am 20. August, 5:00 UTC die größten Differenzen von q_c . In Abbildung 5.14(a) und 5.14(b) sind N_c und q_c für beide Simulationen in einer Höhe von 1500 m über NN dargestellt. In SIM_{VAR} sind N_c und q_c im Bereich der Bewölkung östlich von $x = 100$ km zum Großteil deutlich höher als in SIM_{FIX} . Westlich von $x = 100$ km sind die q_c und N_c von den Randwerten geprägt. Im Bereich von $x = 220$ km und $y = 380$ km ist es in SIM_{FIX} in 1500 m über NN schon zu einer Auflösung der Bewölkung gekommen, während sie in SIM_{VAR} noch weiterhin besteht. Infolge der Differenzen von q_c und der unterschiedlichen Lebensdauer der Wolken ergeben sich Unterschiede im Strahlungshaushalt der Atmosphäre.

In Abbildung 5.14(c) ist die Differenz des vertikal integrierten Wolkenwassergehalts q_c^{int} zwischen den Simulationen dargestellt. q_c^{int} ist für SIM_{VAR} im Bereich der aufgelösten Bewölkung und in der Mitte des Simulationsgebiets deutlich höher als in SIM_{FIX} . Im Bereich der Bewölkung im nordöstlichen Teil des Simulationsgebiets treten jedoch auch niedrigere Werte von q_c^{int} auf. Durch die Differenzen der q_c^{int} ergeben sich Änderungen im Strahlungshaushalt der Atmosphäre, da die Wolkentropfen maßgeblich zur Extinktion von Strahlung in der Atmosphäre beitragen. Die Extinktion der Wolkentropfen wird in COSMO-ART unabhängig von N_c nur in Abhängigkeit von q_c parametrisiert (Ritter und Geleyn, 1992). In Abbildung 5.14(d) ist die relative Abweichung der Globalstrahlung K^\downarrow zwischen den beiden Simu-

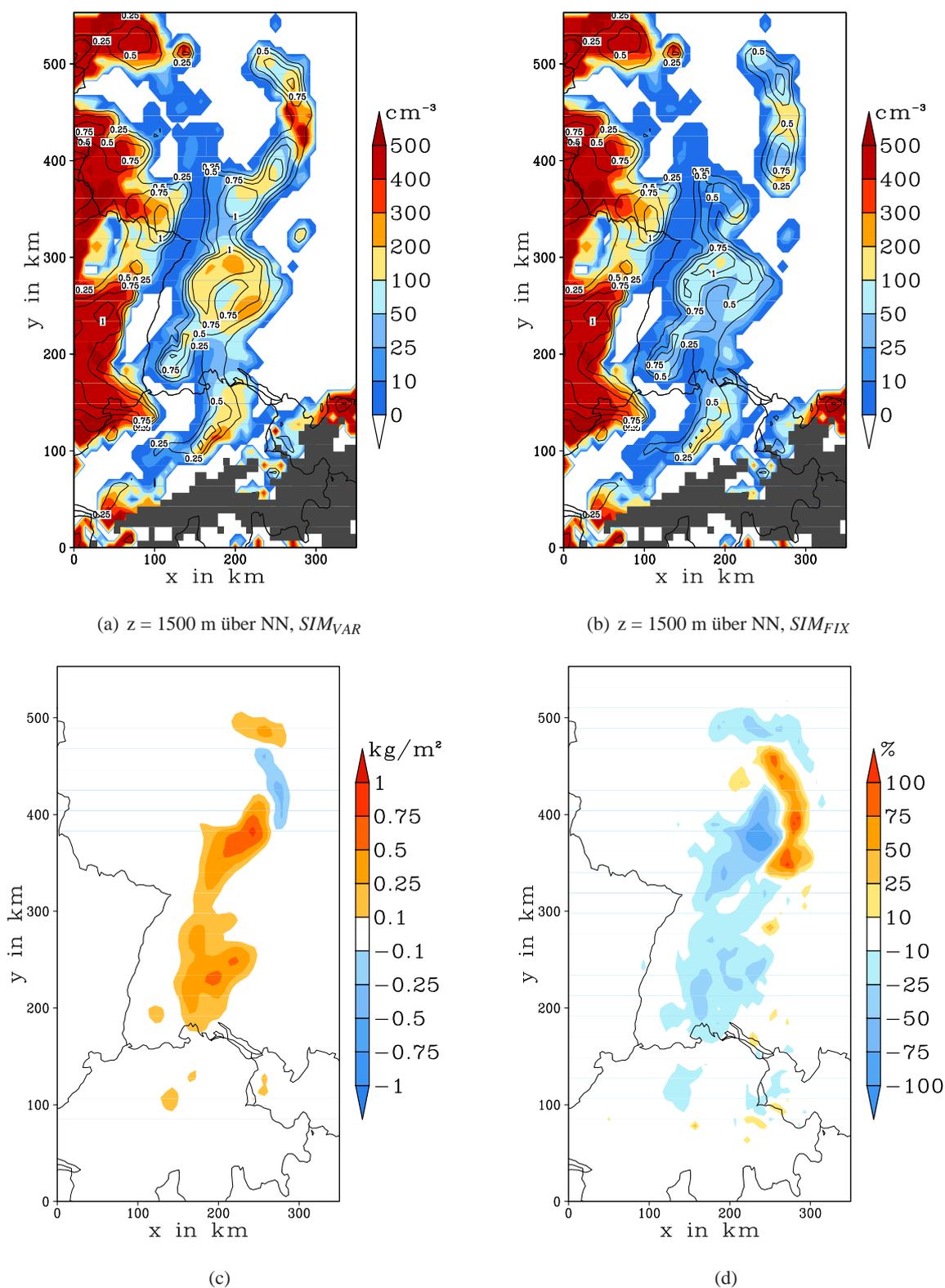


Abb. 5.14.: (a) und (b) Anzahldichte der Wolkentropfen N_c in cm^{-3} in Farben und Wolkenwassergehalt q_c in g/kg mit Isolinien; (c) Differenz des vertikal integrierten Wolkenwassergehalts q_c^{int} in kg/m^2 ; (d) relative Änderung der Globalstrahlung K^{\downarrow} in %; (a)-(d) am 20. August 2005, 5:00 UTC.

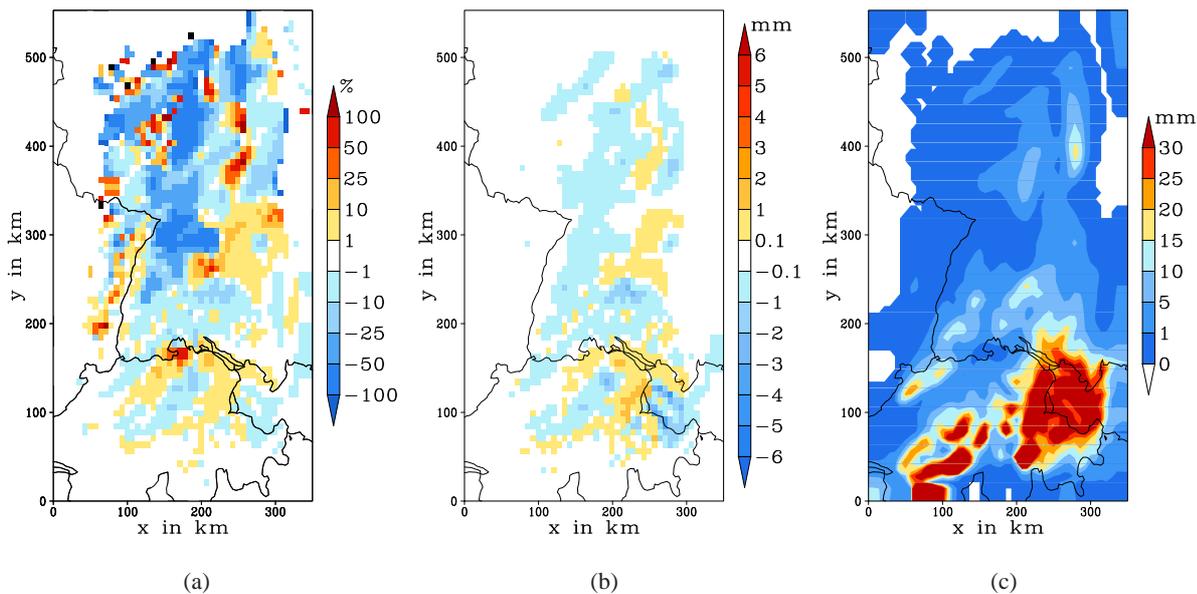


Abb. 5.15.: (a) Relative Abweichung des akkumulierten Niederschlags von SIM_{VAR} zu SIM_{VAR} in %; (b) absolute Abweichung des akkumulierten Niederschlags zwischen SIM_{VAR} und SIM_{FIX} in mm; (c) akkumulierter Niederschlag in SIM_{FIX} in mm; (a)-(c) beziehen sich auf den Zeitraum vom 19. August 2005, 0:00 UTC bis 20. August 2005, 12:00 UTC.

lationen dargestellt. Die Sonne ist ca. eine Stunde vor dem betrachteten Zeitpunkt aufgegangen. In der Mitte des Simulationsgebiets ergeben sich über 25 % niedrigere Werte für K^\downarrow in SIM_{VAR} . Die größten Differenzen von K^\downarrow treten im nordöstlichen Teil des Simulationsgebiets auf. Im Bereich der in SIM_{FIX} schon aufgelösten Bewölkung ergeben sich Abweichungen von über 75 % zwischen den Simulationen. Im benachbarten Bereich mit niedrigerem q_c^{int} in SIM_{VAR} treten um bis zu 100 % höhere Werte für K^\downarrow in SIM_{VAR} auf.

Wie gezeigt werden konnte, treten in SIM_{VAR} erhöhte $N_{CCN}(s)$ im Bereich der Bewölkung auf. Hierdurch kommt es zu höheren N_c als in SIM_{FIX} und als Folge dessen zu einer Unterdrückung schwacher Niederschläge und einer Verzögerung der Niederschlagsmaxima in SIM_{VAR} innerhalb von warmen Wolken. In den Abbildungen 5.15(a) und 5.15(b) sind die relative bzw. absolute Änderung des akkumulierten Niederschlags für den Zeitraum vom 19. August, 0:00 UTC bis 20. August, 12:00 UTC dargestellt. Zusätzlich ist in Abbildung 5.15(c) die Verteilung des akkumulierten Niederschlags in SIM_{FIX} dargestellt. Während des betrachteten Zeitraums kam es nahezu im gesamten Simulationsgebiet zu Niederschlag. Die größten Niederschlagsmengen für den betrachteten Zeitraum wurden im Bereich der Alpen mit über 30 mm erreicht. Im Bereich des Schwarzwalds und der Schwäbischen Alb wurden Niederschlagsmengen von ca. 15 mm erreicht. Im Nord-Osten des Simulationsgebiets erreichen die Niederschlagsmengen maximal 10 bis 15 mm. Die Niederschlagsmengen sind in SIM_{VAR} im Vergleich zu SIM_{FIX} räumlich verschoben. Da sich das Simulationsgebiet im betrachteten Zeitraum in einer westlichen Anströmung befindet, kommt es in Folge der verzögerten Niederschlagsbildung in SIM_{VAR} in der westlichen Hälfte des Simulationsgebiets vermehrt zu niedrigeren Niederschlagsmengen und in der östlichen Hälfte ver-

mehrt zu höheren Niederschlagsmengen in SIM_{VAR} . Insbesondere in den Bereichen mit allgemein wenig Niederschlag sind die Niederschlagsmengen in SIM_{VAR} gegenüber SIM_{FIX} um 25 % bis 100 % reduziert (Abb. 5.15(a)). In den Bereichen mit hohen Niederschlagsmengen im Südosten des Simulationsgebiets betragen die relativen Abweichungen weniger als 10 %. Hier treten jedoch die höchsten absoluten Differenzen in den Niederschlagsmengen von + 2 mm bis - 3 mm zwischen den beiden Simulationen auf. Im restlichen Simulationsgebiet betragen die Differenzen +1 mm bis -2 mm.

Die Bereiche mit niedrigen Niederschlagsmengen sind im Modell sehr sensitiv für Variationen der Aerosol- bzw. der $N_{CCN}(s)$ -Verteilung. In den Bereichen mit hohen Niederschlagsmengen treten ebenfalls Sensitivitäten in der Niederschlagsverteilung auf. Die relativen Änderungen sind in diesen Bereichen jedoch geringer, da insbesondere die stärkeren Niederschlagsereignisse meist mit einer bestehenden Eisphase in der Wolke verbunden sind. In den Simulationen wird jedoch nur der Niederschlag, welcher sich aufgrund der Koagulation der Wolkentropfen entwickelt, in Abhängigkeit von N_c berechnet. Die größten Änderungen in der Niederschlagsverteilung sind aufgrund dessen auch in den Bereichen mit warmen Wolken zu erwarten, in denen keine Eisphase bei der Niederschlagsbildung beteiligt ist.

5.5. Vergleich zur Standardversion von COSMO-ART

In Kapitel 5.4 konnte der Einfluss der Aerosolverteilung auf die Eigenschaften der Wolken, auf den Niederschlag und auf den Strahlungshaushalt mit Hilfe des erweiterten Wolkenschemas von COSMO-ART gezeigt werden. Durch die prognostische Behandlung der Wolkentropfenanzahldichte N_c sind zusätzliche Änderungen im Vergleich zum standardmäßig verwendeten Wolkenschema des COSMO-Modells, in welchem ein konstantes $N_{c,konst} = 500 \text{ cm}^{-3}$ verwendet wird, zu erwarten. Gründe hierfür sind zum Beispiel die vertikale Verteilung von N_c und q_c innerhalb einer Wolke (Kap. 5.3, Abb. 5.8(d) und 5.9(d)) und die zeitliche Entwicklung der Wolkentropfenanzahldichte während der Lebensdauer einer Wolke im erweiterten Modell, welche zu zusätzlichen Sensitivitäten in der Niederschlagsbildung führen können.

Im Folgenden wird die Simulation SIM_{VAR} mit der Simulation SIM_{STD} , welche mit dem Standardwolkenschema des COSMO-Modells (Kap. 3.2) durchgeführt wurde, verglichen. SIM_{STD} enthält somit keinerlei Wechselwirkung mit dem Aerosol. Hierdurch kann der Einfluss der zugefügten Erweiterungen im Vergleich zur bisher verwendeten Modellversion abgeschätzt werden.

Wie in Kapitel 5.3 und 5.4 gezeigt wurde, ergeben sich in SIM_{VAR} für N_c Werte im Bereich von wenigen 10 cm^{-3} bis maximal um die 500 cm^{-3} . Im Allgemeinen ist N_c in SIM_{VAR} somit unterhalb der konstanten $N_{c,konst} = 500 \text{ cm}^{-3}$ von SIM_{STD} . In den Abbildungen 5.16(c) und 5.16(f) sind analog zu Kapitel 5.4 die stündlichen Niederschlagsmengen für den Zeitraum vom 20. August 2005, 0:00 UTC bis 20. August 2005, 12:00 UTC dargestellt. In SIM_{STD} kommt es bei $y = 350 \text{ km}$ in den ersten sieben Stunden zu keinem Niederschlag, während in SIM_{VAR} leichter Niederschlag vorhanden ist. Dies lässt sich direkt auf das relativ hohe und konstante $N_{c,konst} = 500 \text{ cm}^{-3}$ in SIM_{STD} zurückführen, welches die Bildung von leichten Niederschlägen innerhalb der warmen Wolken unterdrückt, da die zugehörigen Durchmesser der Wolkentropfen zu klein für ein effektives Wachstum der Tropfen durch Koagulation

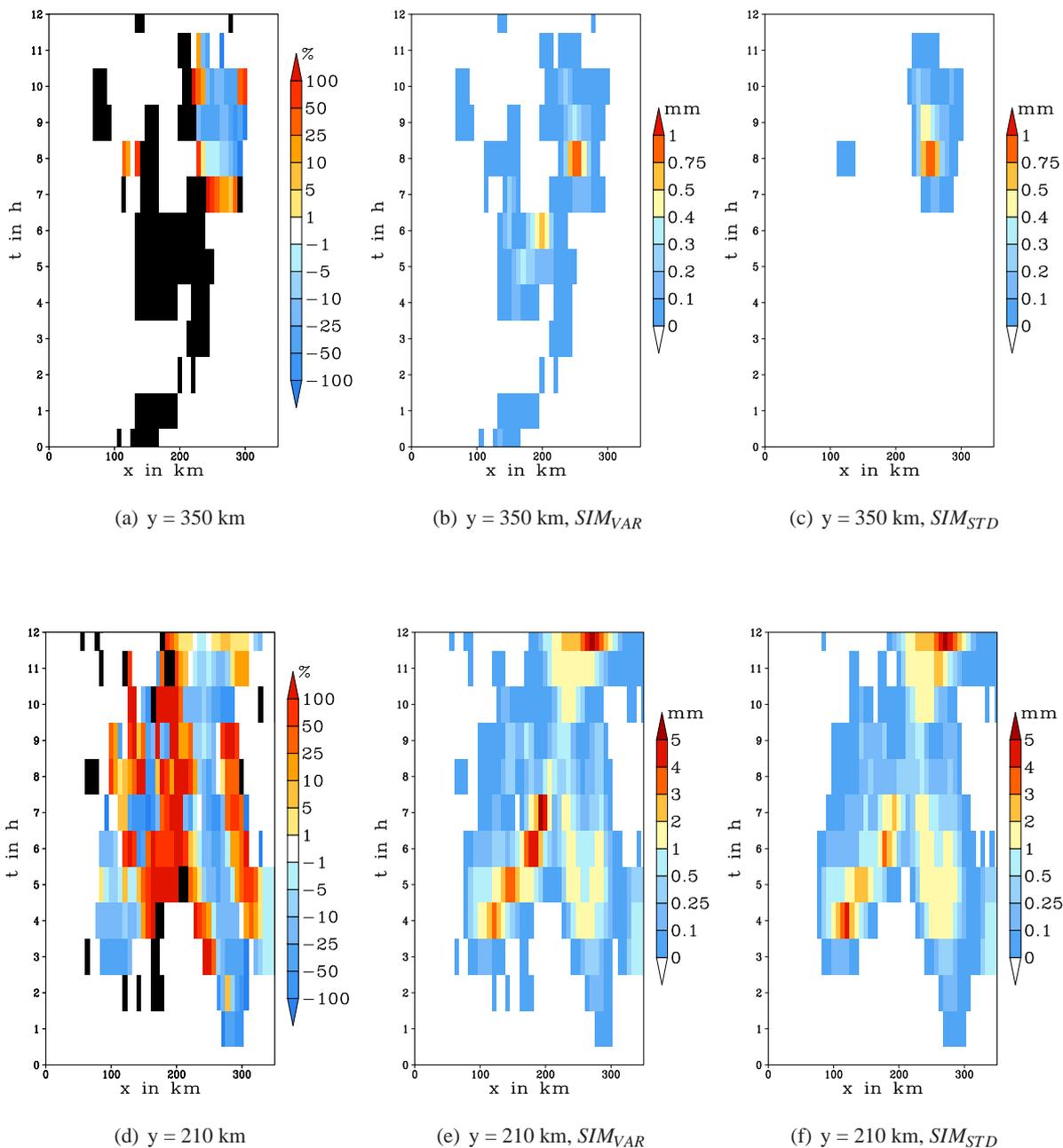


Abb. 5.16.: (a) und (d) relative Abweichung der stündlichen Niederschlagsmengen von SIM_{VAR} zu SIM_{STD} in %, an schwarzen Feldern ist kein Niederschlag in SIM_{STD} vorhanden; (b), (c), (e) und (f) stündliche Niederschlagsmengen in SIM_{VAR} und SIM_{STD} in mm für den Zeitraum vom 20. August 2005, 0:00 UTC bis 20. August 2005, 12:00 UTC.

sind. Erst ab der siebten Stunde kommt es in beiden Simulationen zu Niederschlag. Dieser ist in SIM_{VAR} in der siebten Stunde noch leicht höher, dann jedoch niedriger als in SIM_{STD} . Bei $y = 210$ km kommt es in beiden Simulationen ab der dritten Stunde zu Niederschlag im Bereich des Schwarzwalds ($x \approx 100$ km). Die Niederschlagsmengen sind in SIM_{VAR} in Stunde drei und vier zunächst niedriger als in SIM_{STD} . Während sich das Niederschlagsmaximum in den folgenden Stunden nach Westen verlagert, überschreiten die Niederschläge in SIM_{VAR} die Niederschläge in SIM_{STD} deutlich (Abb. 5.16(d)). Es kommt somit trotz der niedrigeren N_c in SIM_{VAR} zu einer Abschwächung des Niederschlags über dem Schwarzwald und zu einer Verschiebung des maximalen Niederschlags nach Westen. Hieran lässt sich erkennen, dass durch das Mitwirken der Eisphase bei der Niederschlagsbildung keine unmittelbare Korrelation mehr zwischen niedrigerem N_c und höheren Niederschlagsmengen besteht. Vielmehr ergeben sich zusätzliche Wechselwirkungen und Rückkopplungen zwischen Eisphase und Flüssigwasserphase der Wolke, die zu einer Modifikation des Niederschlags führen.

Infolge der Unterschiede im Niederschlag in SIM_{VAR} und SIM_{STD} ergeben sich Differenzen im Flüssigwassergehalt der Wolken. Die größten Unterschiede von q_c ergeben sich am 20. August, 6:00 UTC, eine Stunde später als in den in Kapitel 5.4 betrachteten Simulationen. In Abbildung 5.17(a) und 5.17(b) ist q_c in 1500 m über NN für SIM_{VAR} und SIM_{STD} dargestellt. Zwischen beiden Simulationen treten nur minimale Differenzen in der Wolkenbedeckung im Randbereich der Bewölkung auf. Es kommt jedoch zu großen Unterschieden von q_c zwischen beiden Simulationen. Speziell im Bereich um $y = 350$ km, wo es zuvor in SIM_{STD} im Gegensatz zu SIM_{VAR} zu keinem Niederschlag kam, und östlich des Schwarzwalds, wo es zu diesem Zeitpunkt zu stärkerem Niederschlag in SIM_{VAR} (Abb. 5.16(d)) kommt, ist der vertikal integrierte Wolkenwassergehalt q_c^{int} in SIM_{VAR} deutlich niedriger (Abb. 5.17(c)). Auch in der Schweiz und an der Grenze zu Österreich, im Gebiet mit den höchsten absoluten Niederschlagssummen während des betrachteten Zeitraums, treten Unterschiede in q_c^{int} auf. Im nordöstlichen Teil des Simulationsgebiets ergeben sich in einem kleinen Bereich höhere Werte für q_c^{int} in SIM_{VAR} . Durch die Differenzen im Flüssigwassergehalt ergeben sich als direkte Folge Unterschiede im Strahlungshaushalt zwischen den beiden Simulationen. In den Bereichen mit niedrigerem q_c^{int} in SIM_{VAR} ergibt sich eine Erhöhung der Globalstrahlung K^\downarrow von über 100 % zu diesem Zeitpunkt (Abb. 5.17(d)). In den Bereichen mit höherem q_c^{int} ist K^\downarrow in SIM_{VAR} um über 50 % niedriger.

Die Unterschiede im Strahlungshaushalt in beiden Simulationen beeinflussen auch die dynamischen Prozesse in der Atmosphäre. Da es sich bei COSMO-ART um ein voll gekoppeltes Modellsystem handelt, führt dies zu Änderungen im Transport des Aerosols und somit auch zu Änderungen der Verteilung der $N_{CCN}(s)$. Diese modifizieren wiederum die Eigenschaften der Wolken. Mit dem erweiterten Modellsystem, wie es in SIM_{VAR} verwendet wurde, lassen sich somit Wechselwirkungen und Rückkopplungen zwischen dem Aerosol, den Wolken, dem Niederschlag, der Strahlung und der Dynamik der Atmosphäre simulieren.

In Folge der Unterdrückung der schwachen Niederschläge in SIM_{STD} kommt es im gesamten nordwestlichen Teil des Simulationsgebiets zu großen Differenzen des vom 19. August, 0:00 UTC bis 20. Au-

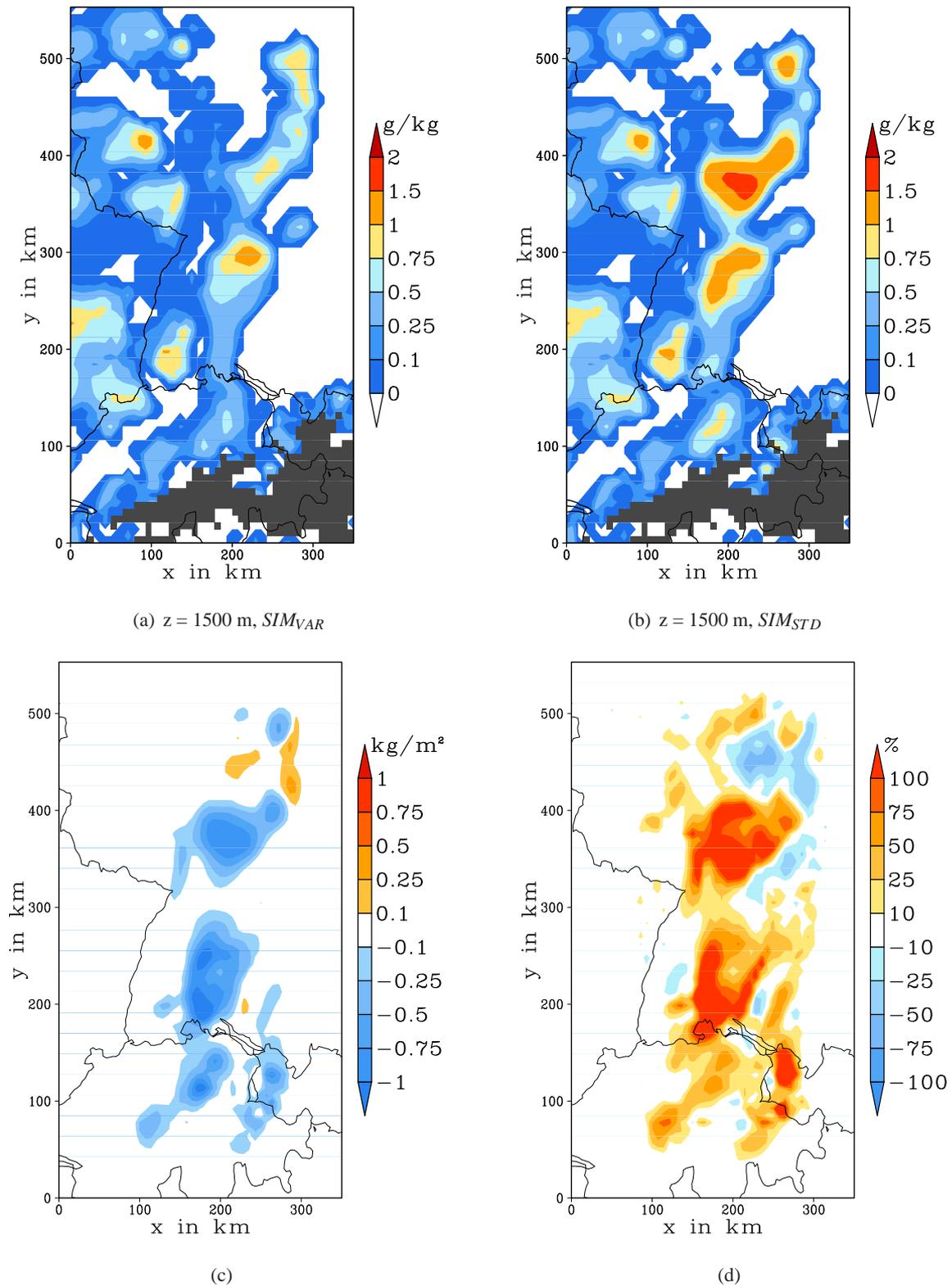


Abb. 5.17.: (a) und (b) Wolkenwassergehalt q_c in g/kg; (c) Differenz des vertikal integrierten Wolkenwassergehalts q_c^{int} in kg/m^2 zwischen SIM_{VAR} und SIM_{STD} ; (d) relative Abweichung der Globalstrahlung K^\downarrow in % zwischen SIM_{VAR} und SIM_{STD} ; (a)-(d) am 20. August 2005, 6:00 UTC.

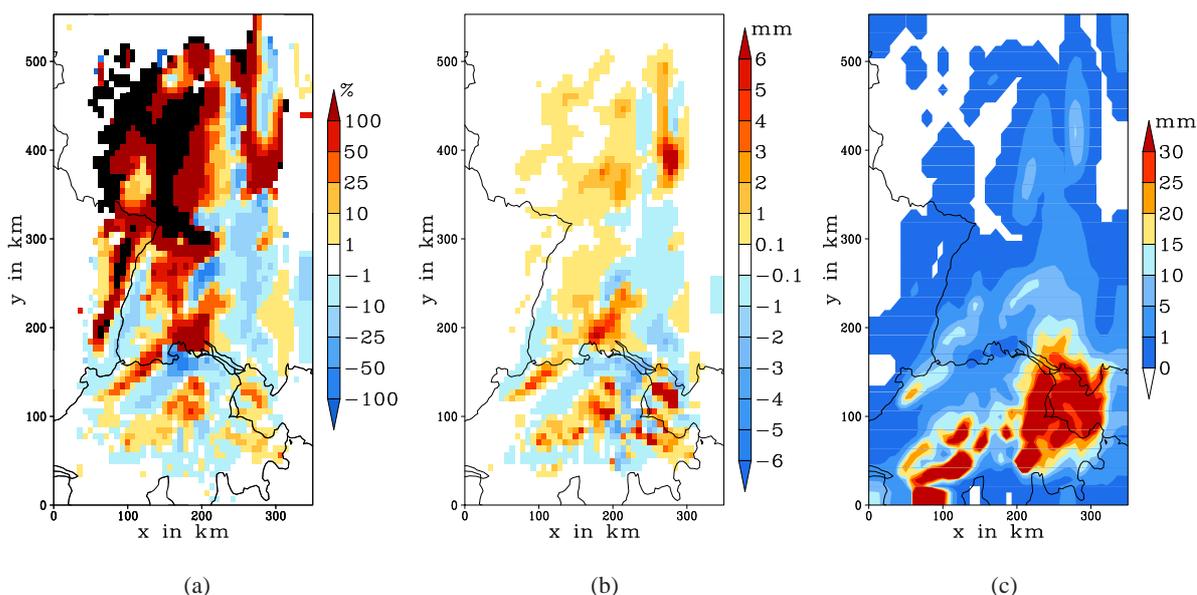


Abb. 5.18.: (a) Relative Abweichung der akkumulierten Niederschlagsmengen von SIM_{VAR} zu SIM_{STD} in %; (b) absolute Abweichung der akkumulierten Niederschlagsmengen zwischen SIM_{VAR} und SIM_{STD} in mm; (c) akkumulierter Niederschlag in SIM_{STD} in mm; (a)-(c) beziehen sich auf den Zeitraum vom 19. August 2005, 0:00 UTC bis 20. August 2005, 12:00 UTC.

gust, 12:00 UTC akkumulierten Niederschlags (Abb. 5.18(a)). Die relativen Abweichungen von SIM_{VAR} zu SIM_{STD} betragen in diesem Bereich über 100 %, sofern es in SIM_{STD} überhaupt zu Niederschlag gekommen ist (Abb. 5.18(a) und Abb. 5.18(c)). Die Niederschlagsmengen sind in diesem Bereich in SIM_{VAR} zum Teil über 3 mm höher als in SIM_{STD} (Abb. 5.18(b)). Auffällig sind die niedrigeren Niederschlagsmengen im Luv des Schwarzwalds in SIM_{VAR} , welche, wenn man die Eisphase der Bewölkung außer Acht lässt, zunächst widersprüchlich erscheinen, da N_c in SIM_{VAR} niedriger als das verwendete $N_{c,konst} = 500 \text{ cm}^{-3}$ in SIM_{STD} ist und somit in SIM_{VAR} von einer effizienteren Niederschlagsbildung im warmen Teil der Wolke auszugehen ist. Östlich des Schwarzwalds kommt es im Bereich der Schwäbischen Alb zu erhöhten Niederschlagsmengen in SIM_{VAR} von über 100 %, wobei absolute Differenzen von über 6 mm erreicht werden. Im mittleren östlichen Teil des Simulationsgebiets sind die Niederschlagsmengen großflächig um ca. 10 % niedriger in SIM_{VAR} . Im Bereich der starken Niederschläge treten die größten absoluten Differenzen im Bereich von -4 mm bis ca. + 10 mm auf. In SIM_{VAR} kommt es insgesamt zu größeren Niederschlagsmengen als in SIM_{STD} . Gemittelt über das gesamte Simulationsgebiet sind die Niederschlagsmengen in SIM_{VAR} ca. 0,2 mm höher als in SIM_{STD} .

Die Differenzen im Niederschlag sind deutlich größer als die in Kap. 5.4 dargestellten Differenzen zwischen SIM_{VAR} und SIM_{FIX} . Da die Differenzen der N_c , bzw. die Differenzen zwischen N_c und $N_{c,konst}$, in beiden Fällen in einer ähnlichen Größenordnung sind, ist dies auf zusätzliche Sensitivitäten in Folge der prognostischen Behandlung der N_c zurückzuführen.

6. Zusammenfassung

Die Wechselwirkung zwischen dem atmosphärischen Aerosol und den Wolken ist eine der größten Unsicherheiten in der modernen Klima- und Wettervorhersage. Aerosolpartikel dienen in der Atmosphäre als Kondensationskerne bei der Bildung von Wolken und bestimmen dadurch die Größenverteilung der Wolkentropfen. Als Folge dessen ergeben sich Wechselwirkungen zwischen Aerosol, Wolken, Niederschlag und Strahlung in der Atmosphäre. Aufgrund der Komplexität der Zusammenhänge sind numerische Modelle ein wichtiges Werkzeug zur Quantifizierung der beteiligten Prozesse.

In dieser Arbeit wurde das gekoppelte mesoskalige Atmosphären- und Chemie-Transport-Modell COSMO-ART um eine Berechnung der Aerosolaktivierung und der Wolkentropfenanzahldichten erweitert und Simulationen des Aerosoleinflusses auf die Verfügbarkeit von Wolkenkondensationskernen, auf die Wolkentropfenanzahldichte und auf den Niederschlag durchgeführt.

Bei der Erweiterung des Modellsystems wurde darauf Wert gelegt, dass sie möglichst konsistent zur bisherigen Behandlung des Aerosols und der Wolken ist. Zunächst wurde mit Hilfe der Köhlertheorie und der Parametrisierung von Abdul-Razzak und Ghan (2000) die Berechnung der Aktivierung des Aerosols und der verfügbaren Wolkenkondensationskerne in Abhängigkeit der Größenverteilung und der chemischen Zusammensetzung des Aerosols implementiert und die Aerosolbilanzgleichungen um die Aktivierung ergänzt. Als nächster Schritt wurde die Wolkentropfenanzahldichte als neue prognostische Größe im Modell eingeführt und das Wolkenschema mit Hilfe der Parametrisierungen von Seifert und Beheng (2001) entsprechend erweitert.

Mit den Erweiterungen kann zum Einen der Einfluss des Aerosols auf die Wolkentropfenanzahldichte und auf die damit verbundene Niederschlagsbildung durch Autokonversion berechnet werden, zum Anderen wurde eine Grundlage für die Behandlung weiterer Wechselwirkungen, wie zum Beispiel die Prozessierung des Aerosols innerhalb von Wolken und die Berechnung der optischen Eigenschaften der Wolkentropfen, in COSMO-ART geschaffen. Diese Arbeit stellt somit den ersten Schritt zu einer umfassenden Behandlung der Wechselwirkungen zwischen Aerosol und Wolken in COSMO-ART dar.

Es wurden mehrere Simulationen für den Zeitraum vom 16. bis 20. August 2005 für ein Simulationsgebiet, welches Südwestdeutschland und die Schweiz umfasst, durchgeführt. Anhand der ersten Simulation, bei der die Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne für eine feste vorgeschriebene Übersättigung berechnet wurde, konnte gezeigt werden, dass die Anzahldichte der verfügbaren Wolkenkondensationskerne, neben der Anzahldichte des Aerosols auch stark von dessen Größenverteilung abhängt. Die Anzahldichte der verfügbaren Wolkenkondensationskerne entspricht dabei den zu erwarteten Anzahldichten für eine kontinentale Luftmasse. Die Variabilität des Aerosols und seiner Eigenschaften hat

eine starke Variabilität der verfügbaren Wolkenkondensationskerne während des betrachteten Simulationszeitraums zur Folge. Eine Front, welche am 19. August das Simulationsgebiet erreicht, ist mit einer signifikanten Erhöhung der verfügbaren Wolkenkondensationskerne im Speziellen im Bereich der sich entwickelten Wolken verbunden.

Mit einer Simulation, welche die Aktivierung der Aerosolpartikel als Senke des Aerosols berücksichtigt, konnte gezeigt werden, dass der Großteil der vorhandenen Aerosolpartikel während des betrachteten Zeitraums aktiviert wird. Da die Freisetzung des Aerosols durch die Evaporation der Wolkentropfen noch nicht im Modellsystem enthalten ist, wurde in den restlichen Studien auf das Scavenging der Aerosolpartikel bei der Aktivierung verzichtet.

In einer weiteren Simulation wurde die Anzahldichte der Wolkentropfen als zusätzliche prognostische Größe in Abhängigkeit des Aerosols berechnet. Es konnte gezeigt werden, dass die simulierten Anzahldichten und die Durchmesser der Wolkentropfen in einer realistischen Größenordnung liegen. Die Aktivierung der Aerosolpartikel und folglich die Nukleation von Wolkentropfen findet hierbei primär unterhalb von 1500 m über NN statt und weist eine starke Korrelation mit der Orografie auf.

Im Vergleich mit einer Simulation, bei der eine räumlich und zeitlich konstante Aerosolverteilung vorgegeben wurde, konnte gezeigt werden, dass das Aerosol großen Einfluss auf die Anzahldichte der Wolkentropfen hat. Im Speziellen im Bereich der Front kommt es infolge der erhöhten Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne zu deutlich erhöhten Anzahldichten der Wolkentropfen.

Es konnte gezeigt werden, dass die Bildung von Niederschlag im Speziellen in warmen Wolken stark von der Anzahldichte der simulierten Wolkenkondensationskerne abhängt. Durch die erhöhten Wolkentropfenanzahldichten kommt es zu einer Abschwächung bis hin zur Unterdrückung der leichten Niederschlagsereignisse und zu einer Verzögerung der Niederschlagsmaxima. Als Folge dessen ergeben sich große Unterschiede im Flüssigwassergehalt der Wolken, welche die Lebenszeit der Wolken und den Strahlungshaushalt der Atmosphäre beeinflussen.

Der Vergleich mit der Standardversion von COSMO-ART hat gezeigt, dass es in der erweiterten Modell-Version zu mehr leichten Niederschlägen kommt, da die simulierten Anzahldichten der Wolkentropfen im Mittel deutlich kleiner als die in der Standardversion verwendete Anzahldichte von 500 cm^{-3} sind. Im Luv des Schwarzwalds konnte jedoch auch eine leichte Verminderung der Niederschlagsmengen im Vergleich zur Standardversion festgestellt werden. Aufgrund der eingeführten Erweiterungen und der Variabilität des Aerosols kommt es allgemein zu räumlichen und zeitlichen Verschiebungen des Niederschlags.

Mit dem erweiterten Modell-System COSMO-ART ist nun eine konsistente Berechnung der Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne und der Anzahldichte der Wolkentropfen anhand der simulierten Aerosolverteilungen möglich. Hierdurch kann der Einfluss des Aerosols auf warme Wolken und auf den damit verbundenen Niederschlag auf einer regionalen und kontinentalen Skala mit COSMO-ART simuliert werden.

A. Literaturverzeichnis

- Abdul-Razzak, H. und Ghan (2000). A parameterization of aerosol activation, 2. multiple aerosol types. *J. Geophys. Res.* 105, 6837–6844.
- Abdul-Razzak, H. und S. J. Ghan (2002). A parameterization of aerosol activation, 3. sectional representation. *J. Geophys. Res.* 107(D3), 4026.
- Abdul-Razzak, H., S. J. Ghan und C. Rivera-Carpio (1998). A parameterization of aerosol activation, 1. single aerosol type. *J. Geophys. Res.* 103, 6123–6131.
- Ackermann, I., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F. Binkowski und U. Shankar (1998). Modal aerosol dynamics model for europe: Development and first applications. *Atmos. Environ.* 32, 2981–2999.
- Albrecht, B. A. (1989). Aerosols, cloud microphysics and fractional cloudiness. *Science* 245, 1227–1230.
- Bangert, M. (2006). *Eine Parametrisierung für die Berechnung von Photolysefrequenzen in Chemie-Transport-Modellen*. Seminararbeit, Universität Karlsruhe (TH). Institut für Meteorologie und Klimaforschung.
- Beheng, K. (1994). A parameterization of warm cloud microphysical conversion processes. *Atmos. Res.* 33, 193–206.
- Boucher, O. und U. Lohmann (1995). The sulfate-CCN-cloud albedo effect: A sensitivity study with two general circulation models. *Tellus* 24B, 281–300.
- Bäumer, D. und B. Vogel (2007). An unexpected pattern of distinct weekly periodicities in climatological variables in germany. *Geophys. Res. Lett.* 34, L03819.
- Bäumer, D., B. Vogel und C. Kottmeier (2004). Parameterizing optical properties of sootcontaining aerosols. European Aerosol Conference, Budapest, 1195–1196.
- Bäumer, D., B. Vogel, H. Vogel, R. Rinke und C. Kottmeier (2008). Klimawirksamkeit von Rußpartikeln in Baden-Württemberg. BWPlus-Statuskolloquium 05./06.03.2008, Stuttgart.
- Cohard, J.-M., J.-P. Pinty und C. Bedos (1998). Extending twomeys analytical estimate of nucleated cloud droplet concentrations from CCN spectra. *J. Atmos. Sci.* 55, 3348–3357.

- Doms, G., J. Förstner, E. Heise, H.-J. Herzog, M. Raschendorfer, R. Schrodin, T. Rheinhardt und G. Vogel (2005). A description of the non-hydrostatic regional model LM. part II: physical parameterisation. Techn. Ber., Deutscher Wetterdienst, Offenbach. Available at: www.cosmomodel.org.
- Doms, G. und U. Schättler (2002). A description of the nonhydrostatic regional model LM part I: Dynamics and numerics. *COSMO Newsletter* 2, 225–235.
- Feingold, G. und A. Heymsfield (1992). Parameterisation of condensational growth of droplets for use in general circulation models. *J. Atmos. Sci.* 49, 2325–2342.
- Ferek, R. J., D. A. Hegg, P. Hobbs, P. Durkee und K. Nielsen (1998). Measurements of ship-induced tracks in clouds of the washington coast. *J. Geophys. Res.* 103, 23199–23206.
- Flossmann, A. I. (1998). Interaction of aerosol particles and clouds. *J. Atmos. Sci.* 55, 879–887.
- Flossmann, A. I., W. Hall und P. H.R. (1985). A theoretical study of the wet removal of atmospheric pollutants. part I: The redistribution of aerosol particles captured through nucleation and impaction scavenging by growing cloud drops. *J. Atmos. Sci.* 42, 583–606.
- Fountoukis, C. und A. Nenes (2005). Continued development of a cloud droplet formation parameterization for global climate models. *J. Geophys. Res.* 110, D11212.
- Ghan, S. und H. Abdul-Razzak (1997). Prediction of cloud droplet number in a general circulation model. *J. Geophys. Res.* 102, 21,777–21,794.
- Ghan, S. J., C. C. Chuang und J. E. Penner (1993). A parameterization of cloud droplet nucleation. I: Single aerosol type. *Atmos. Res.* 30, 198–221.
- Ghan, S. J., G. Guzman und H. Abdul-Razzak (1998). Competition between sea salt and sulfate particles as cloud condensation nuclei. *J. Atmos. Sci.* 55, 3340–3347.
- Givati, A. und D. Rosenfeld (2004). Quantifying precipitation suppression due to air pollution. *J. Appl. Met.* 43, 1038–1056.
- Hegg, D. A. und P. V. Hobbs (1992). Cloud condensation nuclei in the marine atmosphere: A review. *Nucleation and Atmospheric Aerosols*. Deepak Publishing, Hampton, VA, zweite Aufl., 181–192.
- Hänel, G. (1976). The properties of atmospheric aerosol particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with the surrounding moist air. *Adv. in Geophys.* 19, 73–188.
- Hobbs, P. (1993). *Aerosol-Cloud-Climate Interactions*. Academic Press. International Geophysics Series, Band 54.
- Hoose, C. (2004). *Numerische Simulationen zur Ausbreitung von Mineralstaub auf der regionalen Skala*. Diplomarbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe (TH).

- IPCC (2007). *Climate Change 2007: Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, New York.
- Ivanova, I. T. und H. G. Leighton (2008). Aerosol-cloud interactions in a mesoscale model. part I: Sensitivity to activation and collision-coalescence. *J. Atmos. Sci.* 65, 289–307.
- Jacobson, M. Z. (1999). *Fundamentals of Atmospheric Modeling*. Cambridge University Press, Cambridge, New York, Melbourne, erste Aufl.
- Jones, A., D. Roberts und A. Slingo (1994). A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic sulphate aerosols. *Nature* 370, 450–453.
- Junge, C. (1952). Gesetzmäßigkeiten in der Größenverteilung atmosphärischer Aerosole über dem Kontinent. Berichte des Deutschen Wetterdiensts US-Zone.
- Khain, A., H. Noppel, K. D. Beheng und A. Pokrovsky (2008). Modification of precipitation location by natural and artificial cloud seeding. Mexiko. International Conference on Clouds and Precipitation.
- Khain, A., A. Pokrovsky, M. Pinsky, A. Seifert und V. Phillips (2004). Simulation of effects of atmospheric aerosols on deep turbulent convective clouds using a spectral microphysics mixed-phase cumulus cloud model. *J. Atmos. Sci.* 61, 2963–2982.
- Köhler, H. (1936). The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets. *Trans. Faraday Soc.* 32, 1152–1161.
- Levin, Z., A. Teller und E. Ganor (2005). On the interactions of mineral dust, sea-salt particles, and clouds: A measurement and modeling study from the mediterranean israeli dust experiment campaign. *J. Geophys. Res.* 110, D20202.
- Lin, H. und W. R. Leaitch (1997). Development of an in-cloud aerosol activation parameterization for climate modelling. *Proceedings of the WMO Workshop on Measurement of Cloud Properties for Forecasts of Weather, Air Quality and Climate*. WMO, Mexico City, 328–335.
- Lohmann, U. (2008). Global anthropogenic aerosol effects on convective clouds in ECHAM5-HAM. *Atmos. Chem. Phys.* 8, 2115–2131.
- Lohmann, U. und J. Feichter (2005). Global indirect aerosol effects: a review. *Atmos. Chem. Phys.* 5, 715–737.
- Lohmann, U., J. Feichter, C. C. Chuang und J. E. Penner (1999a). Predicting the number of cloud droplets in the ECHAM GCM. *J. Geophys. Res.* 104, 9169–9198.

- Lohmann, U., N. McFarlane, L. Levkov, K. Abdella und F. Albers (1999b). Comparing different cloud schemes of a single column model by using mesoscale forcing and nudging technique. *Journal of Climate* 12, 438–461.
- Lundgren, K. (2006). *Numerical Simulation of the Spatial and Temporal Distribution of Sea Salt Particles on the Regional Scale*. Diplomarbeit, Department of Meteorology Stockholm University.
- Madronich, S. (1987). Photodissociation in the atmosphere 1. actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. *J. Geophys. Res.* 92, 9740–9752.
- McFiggans, G., P. Artaxo, U. Baltensperger, H. Coe, M. C. Facchini, G. Feingold, S. Fuzzi, M. Gysel, A. Laaksonen, U. Lohmann, T. F. Mentel, D. M. Murphy, C. D. O’Dowd, J. R. Snider und E. Weingartner (2006). The effect of physical and chemical aerosol properties on warm cloud droplet activation. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 2593–2649.
- Nenes, A., S. Ghan, H. Abdul-Razzak, P. Y. Chuang und J. Seinfeld (2001). Kinetic limitations on cloud droplet formation and impact on cloud albedo. *Tellus B* 53, 133–149.
- Nenes, A. und J. H. Seinfeld (2003). Parameterization of cloud droplet formation in global climate models. *J. Geophys. Res.* 108(D14), 4415.
- Noppel, H., U. Blahak, A. Seifert und K. D. Beheng (2008). Simulations of a severe hail storm using an advanced 2-moment cloud-microphysikal scheme. Mexiko. International Conference on Clouds and Precipitation.
- Penner, J. E., J. Quaas, T. Storelvmo, T. Takemura, O. Boucher, H. Guo, A. Kirkevåg, J. E. Kristjánsson und O. Seland (2006). Model intercomparison of indirect aerosol effects. *Atmospheric Chemistry and Physics* 6, 3391–3405.
- Pregger, B., Th. (2007). Ermittlung von Emissionsdaten zur Untersuchung der Klimawirksamkeit von Rußpartikeln in Baden-Württemberg. Schlussbericht im Auftrag des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums Karlsruhe, IER Universität Stuttgart.
- Pruppacher, H. R. und J. D. Klett (1997). *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London, zweite Aufl.
- Radke, L. und P. Hobbs (1990). Humidity and particle fields around some small cumulus clouds. *J. Atmos. Sci.* 48, 1190–1193.
- Riemer, N. (2002). Numerische Simulationen zur Wirkung des Aerosols auf die troposphärische Chemie und die Sichtweite. Wissenschaftliche Berichte des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe 29, Universität Karlsruhe (TH).

- Rinke, R. (2008). *Parametrisierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln durch Niederschlag*. Dissertation, Universität Karlsruhe.
- Ritter, B. und J.-F. Geleyn (1992). A comprehensive radiation scheme for numerical weather prediction models with potential applications in climate simulations. *Monthly Weather Review* 120, 303–325.
- Roedel, W. (1994). *Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre*. Springer, Berlin, zweite Aufl.
- Rogers, R. R. und M. K. Yau (1989). *A Short Course in Cloud Physics*. Pergamon Press, Oxford, New York, Frankfurt, dritte Aufl.
- Rosenfeld, D. (2000). Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution. *Science* 287, 1793–1796.
- Segal, Y. und A. Khain (2006). Dependence of droplet concentration on aerosol conditions in different cloud types: Application to droplet concentration parameterization of aerosol conditions. *J. Geophys. Res.* 111, D15204.
- Seifert, A. (2008). A revised cloud microphysical parameterization for COSMO-LME. COSMO News Letter 7, Deutscher Wetterdienst, Offenbach.
- Seifert, A. und K. D. Beheng (2001). A double-moment parameterization for simulating autoconversion, accretion and selfcollection. *Atmos. Res.* 59-60, 265–281.
- Seifert, A. und K. D. Beheng (2006a). A two-moment cloud microphysics parameterization for mixed-phase clouds. part 1: Model description. *Meteorol. Atmos. Phys.* 92, 45–66.
- Seifert, A. und K. D. Beheng (2006b). A two-moment cloud microphysics parameterization for mixed-phase clouds. part 2: Maritime vs. continental deep convective storms. *Meteorol. Atmos. Phys.* 92, 67–82.
- Seinfeld, J. H. und S. N. Pandis (2006). *Atmospheric Chemistry and Physics*. John Wiley & Sons, Inc, Hoboken, zweite Aufl.
- Slinn, W. G. N. (1977). Some approximations for the wet and dry removal of particles and gases from the atmosphere. *Water, Air, and Soil Pollut.* 7, 513–543.
- Squires, P. (1958). The microstructure and colloidal stability of warm clouds. part I. the relation between structure and stability. *Tellus* 10, 256–261.
- Stockwell, W., P. Middleton und J. S. Chang (1990). The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modelling. *J. Geophys. Res.* 95, 16343–16367.
- Tröndle, T. (2008). *Parametrisierung der subskaligen Konvektion für Spurenstoffe mittels des Tiedtke-Schemas in COSMO-ART*. Diplomarbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe (TH).

- Twomey, S. (1959). The nuclei of natural clouds formation. part II: The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration. *Geofis. Pura Appl* , 243–249.
- Vogel, B., F. Fiedler und H. Vogel (1995). Influence of topography and biogenic volatile organic compounds emission in the state of Baden-Württemberg on ozone concentrations during episodes of high air temperatures. *J. Geophys. Res.* 100, 22907–22928.
- Vogel, B., C. Hoose, H. Vogel und C. Kottmeier (2006a). A model of dust transport applied to the dead sea area. *Meteorol. Z.* 14, 611–624.
- Vogel, H., B. Vogel und C. Kottmeier (2006b). Modelling of pollen dispersion with a weather forecast modelsystem. *Proceedings of 28th NATO/CCMS Int. Meeting on Air Pollution Modelling and its Application*. Leipzig.
- Wacker, U. und K. D. Beheng (1993). Schlagwortverzeichnis zur Wolkenphysik und Wolkendynamik. *Promet* 3, 92–95.
- Whitby, E., P. McMurray, U. Shankar und F. Binkowski (1991). Modal aerosol dynamics modeling. Technical report 600/3-91/020, (NTIS PB91-161729/AS natl. tech. inf. serv., springfield, VA), Atmos. Res. and Exposure Assess. Lab., U.S. Environ. Prot. Agency.
- Whitby, K. (1978). The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmos. Environ.* 12, 135–159.
- Whitby, K. und G. Sverdrup (1973). California aerosols: Their physical and chemical characteristics. *Adv. Environ. Sci. Technol.* 10, 477.
- www.dwd.de (2008). URL www.dwd.de.
- www.Wetter3.de (2008). URL www.wetter3.de.
- www.Wetterzentrale.de (2008). URL www.wetterzentrale.de.
- Zhiqiang, C., K. S. Carslaw, Y. Yin und S. Davies (2006). A numerical study of aerosol effects on the dynamics and microphysics of a deep convective cloud in a continental environment. *J. Geophys. Res.* 111, D05201.

B. Symbolverzeichnis

A	Hilfsvariable der Köhlergleichung im Krümmungsterm
a_w	Aktivität von Wasser
a_1, a_2	Koeffizienten der Anzahldichtenverteilung der Wolkentropfen
$B, B', B'_{l,intern}$	Hilfsvariablen der Köhlergleichung im Lösungsterm
b	Konstante in Ghan et al. (1993)
C	empirische Konstante
c	Konstante in Lohmann et al. (1999b)
c_{au}	Ratenkoeffizient der Autokonversion
c_p	spezifische Wärmekapazität der Luft
D	feuchter Partikeldurchmesser / Tropfendurchmesser
\bar{D}	mittlerer Tropfendurchmesser
D_c	kritischer Durchmesser eines Lösungsströpfchens
D_d	trockener Partikeldurchmesser
D_d°	minimaler trockener Durchmesser zur Aktivierung
$D_d^*, D_{d,l}^*$	minimale trockene Durchmesser zur Aktivierung bei s_{max}
$D_{d,big}, D_{d,low}$	Integrationsgrenzen in Fountoukis und Nenes (2005)
$\bar{D}_l, \bar{D}_l^{ini}, \bar{D}_{m,l}$	Mediandurchmesser
D_{mittel}	arithmetisches Mittel der mittleren Tropfendurchmesser
D_v	Diffusivität von Wasserdampf in Luft
D'_v, \bar{D}'_v	modifizierte Diffusivitäten von Wasserdampf in Luft
D_1	beliebiger Durchmesser kleiner D_c
D_2	beliebiger Durchmesser größer D_c
e	Wasserdampfpartialdruck
e°	Wasserdampfpartialdruck im Gleichgewicht über einer ebenen Wasserfläche / Sättigungsdampfdruck
e_{eq}	Wasserdampfpartialdruck im Gleichgewicht
e_s°	Wasserdampfpartialdruck im Gleichgewicht über einer ebenen Lösung
$F_N^*, F_{N,l}^*, F_{m,l}^*$	Flüsse von aktivierten Partikeln in eine Wolke
f_l	dimensionloser Parameter in Abdul-Razzak und Ghan (2000)
G	Hilfsvariable für Tröpfchenwachstum
g	Schwerebeschleunigung der Erde

gl	dimensionloser Parameter in Abdul-Razzak und Ghan (2000)
K	turbulenter Diffusionskoeffizient
K^\downarrow	Globalstrahlung
k	empirische Konstante
k_a	thermische Leitfähigkeit der Luft
k'_a	modifizierte thermische Leitfähigkeit der Luft
k_c, k_{cr}	Koeffizienten der Koagulationsfunktionen in Seifert und Beheng (2001)
l_{wv}	massenspezifische Verdampfungswärme
M_j, M_0, M_1, M_2, M_3	Momente einer Verteilungsfunktion
M_w, M_s, M_f, M_a	Molmassen
m_c	Masse eines einzelnen Wolkentropfens
m_c^*	Trennmasse zwischen Wolken- und Regentropfen in Seifert und Beheng (2001)
$m_f, m_a, m_{so_4}, m_p, m_s, m_{s,i}, m_i$	Massen
m_l	Massendichte
m_l^*	Massendichte der maximal aktivierten Partikel
N, N_l	Anzahldichten der Aerosolpartikel
N°	Anzahldichte der aktivierten Partikel
N^*, N_l^*	Anzahldichten der maximal aktivierten Partikel $N^* = N^\circ(s_{max})$
N_A	Anzahldichte der hydrophilen Aerosolpartikel
$N_{CCN}(s)$	Anzahldichte der Wolkenkondensationskerne bei s
N_{CCN}^*	Anzahldichte der verfügbaren Wolkenkondensationskerne $N_{CCN}^* = N_{CCN}(s_{max})$
$N_c, N_{c,konst}$	Anzahldichten der Wolkentropfen
$N_{i,0}$	Anzahldichte der Eispartikel für 0 K
N_{tot}^*	kumulative Anzahl dichte der aktivierten Partikel
n, n_v, n_w, n_s	Molenanzahlen
$n(D_d), n(\ln D_d), n(s_c), n_l(D)$	Anzahldichtenverteilungsfunktionen des Aerosols
$n_c(m_c)$	Anzahldichteverteilungsfunktion der Wolkentropfen
$n_{l,m}(D_d)$	Massendichteverteilungsfunktionen
O_l	Oberflächendichte
p, p_v, p_w	Drücke
Q	Hilfsvariable
q_c°	Wolkenwasser (Massenanteil) im Sättigungsgleichgewicht
q_c^{int}	vertikal integrierter Wolkenwassergehalt
q_v, q_c, q_i, q_s, q_x	Massenanteile
$q_{c,0}$	Grenzwert von q_c für Autokonversion
R	universelle Gaskonstante
R_v, R_w	Gaskonstanten

RH	relative Feuchte
RH_{eq}	relative Feuchte im Gleichgewicht
r_i	Massenanteil einer Partikelkomponente
S, S_v, S_w, S_o	Entropien
s	Übersättigung
s_c	kritische Übersättigung eines Lösungströpfchens
s_{eq}	Übersättigung im Gleichgewicht
s_{fix}	konstante Übersättigung größer Null
\bar{s}_l	kritische Übersättigung des Mediandurchmessers
s_{max}	maximale Übersättigung
s_w, s_v	mittlere molare Entropien
T, T_v, T_w, T_o, T_0	Temperaturen
TKE	turbulente kinetische Energie
t	Zeit
U, U_v, U_w, U_o	innere Energien
u'	subgridskalige u-Komponente der Geschwindigkeit
V, V_v, V_w	Volumina
V_l	Volumendichte
v'	subgridskalige v-Komponente der Geschwindigkeit
w	Vertikalgeschwindigkeit
w'	subgridskalige Vertikalgeschwindigkeit
w_{cl}	Vertikalgeschwindigkeit an der Wolkenbasis
x_w	Molenbruch
X_v	Massenmischungsverhältnis
y	Hilfsvariable
α	Koeffizient der Übersättigungsgleichung
α_c	Akkommodationskoeffizient
β_1, β_2	Konstanten in Cohard et al. (1998)
γ	Koeffizient der Übersättigungsgleichung
$\varepsilon_p, \varepsilon_i$	lösliche Massenanteile
η_l	dimensionloser Parameter in Abdul-Razzak und Ghan (2000)
μ, μ_v, μ_w	chemische Potentiale
μ_w^\bullet	chemisches Potential für reines Wasser
μ_v^*	chemisches Potential bei Standardbedingungen
ν	Koeffizient der Anzahldichtenverteilung der Wolkentropfen
$\nu_s, \nu_{s,k}$	Molenanzahlen der Ionen pro Mol eines Stoffes nach erfolgter Dissoziation

$\rho_w, \rho_p, \rho_a, \rho_h$	Dichten
σ	Oberflächenspannung
$\sigma_l, \sigma_{l,m}$	geometrische Standardabweichungen
ζ	dimensionloser Parameter in Abdul-Razzak und Ghan (2000)
τ	dimensionslose Zeitskala in Seifert und Beheng (2001)
τ_{akt}	Zeitpunkt der Aktivierung eines Partikels
ν_w, ν_v, ν_s	Molvolumina
Φ_{au}, Φ_{ac}	universelle Funktionen in Seifert und Beheng (2001)
Ψ	Hilfsvariable in Fountoukis und Nenes (2005)
Ω	Oberfläche

Danksagung

Ich bedanke mich herzlich bei meinem Referenten Herrn Prof. Dr. Ch. Kottmeier für die Ermöglichung dieser Diplomarbeit und bei Herrn Prof. Dr. T. Leisner für die Übernahme des Korreferats.

Bei Herrn Dr. Axel Seifert möchte ich mich für die allgemeine Unterstützung, die Korrekturen und die vielen hilfreichen Anregungen bedanken. Herrn Dr. Axel Lauer danke ich für die hilfreichen Tipps.

Ein besonderer Dank gilt meinem Betreuer Herrn Dr. Bernhard Vogel, welcher mich während meiner Diplomarbeit und auch in den Jahren als HIWI stets gut betreut und unterstützt hat. Ebenso danke ich Frau Dr. Heike Vogel für die zahlreichen wissenschaftlichen und nichtwissenschaftlichen Diskussionen und die Hilfe mit dem Modellsystem. Desweiteren danke ich meiner ganzen Arbeitsgruppe und im Speziellen meinem Zimmergenossen Herrn Tobias Tröndle für die angenehme Zeit und die anregenden Diskussionen. Frau Gabi Klinck danke ich für die schnelle Hilfe bei Rechnerproblemen.

Danke an alle Freunde und Kommilitonen, die mich durch mein Studium begleitet haben.

Bei meinem Onkel Rudi möchte ich mich herzlich für die finanzielle Unterstützung meines Studiums bedanken. Ein großes Danke an meine Eltern, die mir mein Studium durch ihre Unterstützung erst ermöglicht haben und an meinen Bruder Lukas. Für die moralische Unterstützung und das zahlreiche Korrekturlesen danke ich meiner Freundin Julika.

Zum Schluss möchte ich noch einmal allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Erklärung

Ich versichere, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und die verwendeten Hilfsmittel vollständig angegeben habe.

Ich erkläre mich damit einverstanden, dass diese Arbeit in die Bibliothek eingestellt wird und vervielfältigt werden darf.

Karlsruhe, den 11. September 2008

Max Bangert