

# **Modellstudien zum Ferntransport von Waldbrandaerosolen und deren Einfluss auf die Wolkeneisbildung**

**Model studies on long-range transport of biomass burning aerosols and their  
influence on cloud ice formation**

Masterarbeit im Fach Meteorologie  
von

**Jonas Straub**

Januar 2019



INSTITUT FÜR METEOROLOGIE UND KLIMAFORSCHUNG  
KARLSRUHER INSTITUT FÜR TECHNOLOGIE (KIT)

Referent:

Prof. Dr. Ch. Kottmeier

Korreferent:

Prof. Dr. M. Kunz



*This document is licenced under the Creative Commons  
Attribution-ShareAlike 4.0 International Licence.*

## Abstract

Biomass burning has been a main part of the ecosystem in many regions of the entire world for million of years. In 2017 strong wildfire activities produced huge amounts of gases and particles that were lifted into the lower stratosphere. Due to atmospheric transport, those biomass burning aerosols were detected as a unprecedented thin stratospheric aerosol layer by many LIDAR stations over Europe in 14 – 20km height. The first model study treats this long range transport process of biomass burning aerosols from Canada to Europe as well as the formation of a thin layer in the lower stratosphere. Therefore an emission parametrization for wildfires (Walter et al., 2016) releasing soot as biomass burning aerosol is implemented in the global atmospheric modelling system ICON-ART. Simulation results show a soot layer in Europe after 17 days with maximum concentrations in the troposphere between 5km and 10km and reaching up to 15km. However, the simulated soot plume doesn't form a distinctly lifted stratospheric layer.

According to Petters et al. (2009b) biomass burning particles are potential ice nuclei. A convective systems can provide necessary atmospheric conditions for cloud ice formation on soot particles due to strong updrafts. In June 2017, a large convective system developed over the Iberian Peninsula igniting wildfires and and moved across active wildfires, resulting in suitable conditions for ice nuclei. In ICON-ART, cloud microphysics are represented by the two-moment scheme of Seifert und Beheng (2006). The soot impact on ice nucleation is parameterized according to Phillips et al. (2013). Mineral dust is regarded as another ice forming aerosol with a constant background concentration, whereas the optical properties of soot are neglected. Simulations are performed on a convection permitting LAM-grid over two days simulation time. The model run including biomass burning emissions represents cloud top heights and the evolution and track of the convective system are in a good agreement to satellite observations. Further simulations are analysed on two subdomains. Compared to a reference simulation without biomass burning, averaged cloud ice mass influenced by biomass burning aerosols is 3.6% lower over land and 0.7% higher over ocean. Additionally, anomalies in the vertical profile of ice water content, cloud water content and vertical velocities are recognized. However, an increased soot number in ice nucleation parameterization by the factor of 1000 doesn't lead to a systematic effect on the averaged vertical profile of those parameters. The main differences between the simulations appear during the second day, however they alter amplitude and sign. Therefore, a statistical significance could not be determined using these methods and simulation setup.



## Kurzzusammenfassung

Das Verbrennen von vegetativem Bestand ist in vielen Regionen der Erde seit Jahrmillionen Bestandteil des Ökosystems. Im Jahr 2017 traten starke Waldbrandaktivitäten auf, welche für einen Eintrag der freigesetzten Verbrennungsprodukte in Form von Gasen und Partikel bis in die untere Stratosphäre sorgten. Bodengebundene Lidare detektierten daraufhin erstmals eine stratosphärische dünne Aerosolschicht in Europa, deren Ursprung in den kanadischen Waldbrandgebieten lag. Das Ziel der ersten Modellstudie in dieser Arbeit liegt im Darstellen sowohl des Ferntransports der Vegetationsbrandaerosole von Kanada nach Europa, als auch der dünnen stratosphärischen Schicht in 14 – 20 km Höhe, bestehend aus jenen Aerosolen. Hierfür wird das Wetter- und Klimamodell ICON-ART zunächst um eine Emissionsroutine für das Vegetationsbrandaerosol Ruß nach Walter et al. (2016) erweitert. Die Ergebnisse einer globalen Simulation mit zweitägiger Reinitialisierung geben den Ferntransport der Rußaerosole bis nach Europa wieder. Die Rußfahne erreicht zwar Höhen bis 15 km jedoch nicht in Form einer abgegrenzten stratosphärischen Schicht, sondern einer vorwiegend troposphärischen Schicht mit einem Konzentrationsmaximum zwischen 5 und 10 km. Vegetationsbrandaerosole weisen nach Petters et al. (2009b) die Fähigkeit auf als Eiskeim in der Atmosphäre zu wirken, wobei ein konvektives System durch starke Aufwinde für die notwendigen Umgebungsbedingungen sorgen kann. Eine solche Situation lag im Juni 2017 auf der Iberischen Halbinsel vor, als ein konvektives System über ein Waldbrandgebiet zog. Daher untersucht die zweite Modellstudie den Einfluss der Rußaerosole auf die Bildung von Wolkeneis. Mit der Verwendung des Zwei-Momenten-Schemas nach Seifert und Beheng (2006) und der Behandlung von Ruß als Eiskeim in der Nukleationsparametrisierung nach Phillips et al. (2013) ermöglicht es ICON-ART die Wolkenmikrophysik unter Einfluss von Ruß abzubilden. Vorhandener Staub wird als konstante Hintergrundkonzentration in der Nukleation berücksichtigt, wohingegen die optischen Eigenschaften der Rußaerosole keine Berücksichtigung finden. Während der zweitägigen Simulationszeit wird die Konvektion explizit berechnet. Die Simulation mit der Freisetzung von Vegetationsbrandaerosolen zeigt verglichen zu Satellitenbeobachtungen eine übereinstimmende zeitliche und räumliche Darstellung und Entwicklung der Konvektion, wie auch eine übereinstimmende Höhe der Wolkenoberseite. Im Vergleich zu einem Referenzlauf ohne Vegetationsbrandaerosole ergibt anhand sich unter Hinzunahme von Ruß in die Wolkeneisbildung über Land einen Rückgang des Wolkeneisgehalts um 3.6% und über dem Ozean eine Zunahme um 0.7%. Eine Erhöhung der Anzahl an Rußeiskeimen um den Faktor 1000 zeigt allerdings keine systematischen Einflüsse auf die Vertikalprofile von Wolkeneis und Wolkenwasser, wie auch auf die Vertikalgeschwindigkeiten in den Untersuchungsgebieten. Die wesentlichen Unterschiede zwischen den Simulationsläufen treten vor allem im Laufe des zweiten Simulationstages auf, jedoch mit wechselndem Vorzeichen und Amplitude. Ein statistisch signifikanter Einfluss kann jedoch mit diesen verwendeten Methoden aufgrund unzureichender Abschätzung der interne Modellvariabilität nicht getroffen werden.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Interaktion von Vegetationsbrandaerosolen mit der Atmosphäre</b>	<b>3</b>
2.1	Vegetationsbrandaerosole . . . . .	3
2.2	Wolkenmikrophysik . . . . .	5
2.2.1	Aktivierung in warmen Wolken . . . . .	6
2.2.2	Nukleation in Eiswolken . . . . .	8
2.3	Aerosol-Strahlungswechselwirkung . . . . .	9
2.4	Aerosol-Wolkenwechselwirkung . . . . .	11
<b>3</b>	<b>Das Modellsystem ICON-ART</b>	<b>15</b>
3.1	Meteorologisches Modell ICON . . . . .	15
3.2	Modellerweiterung ART . . . . .	17
3.2.1	Advektion . . . . .	19
3.2.2	Sedimentation . . . . .	19
3.2.3	Turbulente Diffusion mit trockener Deposition . . . . .	20
3.2.4	Nasse Deposition . . . . .	21
3.2.5	Konvektion . . . . .	21
3.3	Zwei-Momenten-Schema . . . . .	22
3.3.1	Mikrophysik . . . . .	22
3.3.2	Temperaturanpassung . . . . .	29
3.3.3	Sedimentation der Hydrometeore . . . . .	30
3.3.4	Relaxierung der Eispartikelanzahl . . . . .	30
3.4	Behandlung von Vegetationsbränden . . . . .	30
3.4.1	Die Bestimmung der offline Parameter . . . . .	31
3.4.2	online Rauchfahnenmodell . . . . .	32
<b>4</b>	<b>Ferntransport kanadischer Waldbrandaerosole nach Deutschland</b>	<b>35</b>
4.1	Einführung und synoptische Situation . . . . .	35
4.2	Messungen . . . . .	36
4.3	Simulation . . . . .	39
4.3.1	Modell-Setup . . . . .	39
4.3.2	Modell-Ergebnisse . . . . .	40
4.4	Diskussion . . . . .	42

<b>5 Einfluss von Waldbrandaerosolen auf die Eisbildung in Wolken</b>	<b>45</b>
5.1 Einführung und synoptische Situation . . . . .	45
5.2 Methodik . . . . .	49
5.2.1 Modell-Setup . . . . .	49
5.2.2 Analysegrößen . . . . .	52
5.3 Validierung der Modellergebnisse . . . . .	53
5.3.1 Wolkenkondensat . . . . .	54
5.3.2 Temperatur an der Wolkenoberseite . . . . .	59
5.3.3 Vegetationsbrandaerosole . . . . .	60
5.4 Wirkung von Ruß auf Wolkeneis . . . . .	65
5.4.1 Wolkenkondensat in Untersuchungsgebieten . . . . .	66
5.4.2 Einfluss von Ruß anhand von Sensitivitätsläufen . . . . .	72
<b>6 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>79</b>
<b>A Anhang</b>	<b>83</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>104</b>
<b>B Danksagung</b>	<b>105</b>

# 1 Einleitung

Das Verbrennen von vegetativem Bestand oder dessen abgestorbener Überreste ist seit Jahrtausenden Teil des Ökosystems. Es stellt einen natürlichen Rodungsvorgang dar, welcher anschließend die Lichtdurchflutung am Boden erhöht und für das Entfernen von Totholz sorgt. Die Flora und Fauna in Regionen mit wiederkehrenden Waldbrandereignissen haben sich im Laufe der Zeit an Brände angepasst und profitieren sogar davon (Natural Resources Canada, 2018). Aus den Ablagerungen von Holzkohle in Sedimentbohrkernen erschließt sich eine variierende Intensität der Vegetationsbrände auf großen Zeitskalen, welche durch klimatologische oder biologische Veränderungen bedingt sind (Marlon et al., 2008).

Das Jahr 2017 steht für eine starke Waldbrandaktivität, welche in der kanadischen Provinz British Columbia als stärkste Saison seit 1958 bezeichnet wird (McLean, 2017). In Verbindung mit Vegetationsbränden entstehen und verstärken sich Gewitter, wodurch große Mengen an Verbrennungsgasen und Partikeln bis in die untere Stratosphäre transportiert werden (Andreae et al., 2001; Fromm und Servranckx, 2003; Luderer et al., 2006; Rosenfeld et al., 2008; Peterson et al., 2016). Allein ein Waldbrand im August 2017 beförderte eine vergleichbare Masse an Aerosolen in die untere Stratosphäre, wie ein mittlere Vulkanausbruch (Peterson et al., 2018). Diese so eingebrachten stratosphärischen Aerosolpartikel verbreiten sich durch großräumige Transportprozesse über die gesamte Hemisphäre. Über Europa konnte erstmals eine Aerosolschicht in der Stratosphäre nachgewiesen werden, welche aus den starken Waldbränden in Kanada entstammt (Ansmann et al., 2018; Haarig et al., 2018; Khaykin et al., 2018). Die dabei angewendete Rückverfolgung zum Ursprungsgebiet der Aerosolschicht basiert hauptsächlich auf Satellitenbeobachtungen und der Berechnung von Rückwärtstrajektorien mittels des Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT, Stein et al., 2015) Modells. In dieser Arbeit findet daher zunächst eine nähere Untersuchung des Ferntransports von den kanadischen Waldbrandaerosolen nach Europa statt. Mit Hilfe eines gekoppelten Globalmodells soll folgenden Fragen nachgegangen werden:

1. Gelangen in Kanada freigesetzte Vegetationsbrandaerosole bis nach Europa?
2. Bildet sich eine abgetrennte stratosphärische Aerosolschicht aus?

Die weltweit gut dokumentierte Ausbreitung der Waldbrandaerosole im Jahr 2017 dienen als Validierungsdatensatz für diese Modellstudie (Ansmann et al., 2018). Darauf aufbauend können weitere Untersuchungen über die Wechselwirkungen der Vegetationsbrandaerosole in der Stratosphäre und deren Auswirkungen auf das Wetter und das Klima angegangen werden.

Die Untersuchung der Rauchzusammensetzung zeigt eine Vielzahl an festen Partikeln und Gasen. Ein Hauptbestandteil der festen Partikel sind Kohlenstoffverbindungen, insbesondere elementarer Ruß und organischer Kohlenstoff. Zusätzlich kommen geringe Mengen anorganischer Materialien hinzu (Andreae und Merlet, 2001; Andreae und Rosenfeld, 2008). Aufgrund der chemischen und

## 1 Einleitung

morphologischen Eigenschaften kann elementarer Ruß in der Atmosphäre als Eiskeim dienen, was zur Bildung von Wolkeneis führt (Hoose und Möhler, 2012). In Labormessungen weisen Petters et al. (2009b) insbesondere den aus der Verbrennung von Biomasse freigesetzten Aerosolen eine Eiskaktivität zu. Twohy et al. (2010) finden eine hohe Korrelation ( $r^2 > 0.91$ ) zwischen der Anzahl an Vegetationsbrandaerosolen und Wolkeneispartikeln durch Flugzeugmessungen nahe der Rocky Mountains. Aus Satellitenmessungen ermitteln Rosenfeld et al. (2011) allerdings keinen statistisch signifikanten Einfluss von Vegetationsbrandaerosolen auf die Gefriertemperatur der Wolkeneispartikeln an der Oberseite von konvektiven Wolken. Es liegen somit noch wesentliche Unsicherheiten in der Kenntnis über das Zusammenspiel zwischen Vegetationsbrandaerosolen und der Wolkeneisbildung vor.

Anhand eines konvektives System in Portugal im Juni 2017 soll in dieser Arbeit der Einfluss von freigesetzten Vegetationsbrandaerosolen näher untersucht werden. Hier liegt der Fokus auf der Nukleation von Ruß, um den direkten Einfluss auf die Wolkeneisbildung zu quantifizieren. Daraus ergeben sich folgende Fragen:

3. Findet im Modell eine vergleichbare Entwicklung der Konvektion, wie in den Beobachtungen, statt?
4. Verändern Rußaerosole die Wolkeneiskonzentration und ist diese abhängig von der Anzahl an nukleierenden Rußpartikel?

Nach Pósfai et al. (2003) zeigen die organischen Partikel mit anorganischen Einschlüssen eine bessere Hygroskopizität, als der reine Ruß. Durch den weiteren Alterungsprozess lagern sich mehr wasserlösliche Substanzen auf dem Partikel an, was mit einem zusätzlichen Größenwachstum zu der Fähigkeit führt, dass vermehrt Wasserdampf darauf kondensiert. Somit wirken die Vegetationsbrandaerosole ebenfalls als Kondensationskeime (Crutzen und Andreae, 1990; Reid et al., 2005). Bereits durchgeführte Modellstudien konzentrieren sich ausschließlich auf die Wirkung von Vegetationsbrandaerosolen als Kondensationskeim im Zusammenhang mit einem konvektiven System (Hodzic und Duvel, 2017; Camponogara et al., 2018), was in dieser Arbeit jedoch nicht berücksichtigt wird.

Die oben genannten Fragestellungen werden mit dem numerischen Wetter- und Klimamodell ICON (ICOsahedric Non-hydrostatic, Zängl et al., 2015) und der Erweiterung ART (Aerosol and Reactive Tracegases, Rieger et al., 2015) untersucht. Hierfür wird zunächst eine Emissionsparametrisierung nach Freitas et al. (2006) für Vegetationsbrände implementiert, welches bereits in dem mesoskalige Modell COSMO (Consortium for Small-scale Modeling, Baldauf et al., 2011) und dessen Erweiterung ART (Vogel et al., 2009) Anwendung findet (Walter et al., 2016).

In Kapitel 2 wird zunächst eine Charakterisierung der Vegetationsbrandaerosole durchgeführt. Darüber hinaus finden die grundsätzlichen Betrachtungen der Entstehung von Wolkenwassertropfen und Wolkeneispartikel sowie deren Wechselwirkung mit der Atmosphäre statt. In Kapitel 3 folgt eine Beschreibung des verwendeten Modells ICON-ART. Hierbei wird sowohl die Behandlung der Wolkenmikrophysik durch ein sogenanntes Zwei-Momenten-Schema, als auch die neu implementierte Emissionsparametrisierung für Vegetationsbrände erläutert. Die Kapitel 4 und 5

arbeiten anschließend die betrachteten Fälle auf, um eine Antwort auf die Fragen 1. bis 4. zu finden. Abschließend liefert Kapitel 6 eine Zusammenfassung sowie einen Ausblick.



## 2 Interaktion von Vegetationsbrandaerosolen mit der Atmosphäre

Durch einen Verbrennungsprozess in die Atmosphäre eingetragene Aerosole stehen im wechselseitigen Austausch mit ihrer unmittelbaren Umgebung. Die auftretenden Wechselwirkungen mit der Strahlung, Thermodynamik oder durch chemischen Reaktionen finden direkt an oder auch in den Aerosolpartikeln statt. Sie stellen einen Anpassungsvorgang dar, welcher durch ein energetisches Ungleichgewicht angetrieben wird. Eine Wechselwirkung bedingt, dass ihre beteiligten Komponenten sowohl eine Veränderung erwirken, als auch der Anpassung unterworfen sind. Diese Anpassungsvorgänge können intern ohne Beteiligung von anderen Substanzen ablaufen. Bei den Vegetationsbrandaerosolen und der Atmosphäre laufen die Anpassungsvorgänge auch extern ab, wodurch das Aerosol Auswirkungen auf die Atmosphäre hat und gleichzeitig die Atmosphäre das Aerosol beeinflusst. Zusätzlich besteht eine mögliche Wechselwirkung nur zwischen den beteiligten Aerosolen. Die beschriebenen Prozesse laufen zunächst auf einer kleinen Skala ab, deren Einflussbereich sich durch ständige Austauschprozesse in die freie Atmosphäre deutlich vergrößert.

Der einfacheren Beschreibung und grundlegendem Verständnis halber findet eine getrennte Beschreibung der auftretenden physikalischen Vorgänge statt, aufgeteilt in die sogenannte Wolkenmikrophysik und Strahlung.

Insgesamt zeigen die beobachteten Prozesse auf lokaler Ebene und isoliert betrachtet meist einen eindeutigen Effekt. Erfolgt eine Gesamtbetrachtung aller Prozesse über eine größere Raum- und Zeitskala können aufgrund der Komplexität der Vorgänge und deren Wechselwirkungen meist nur bedingt Aussagen über deren Auswirkungen getroffen werden. Daher stellt eine numerische Beschreibung der wirkenden Vorgänge eine wirkungsvolle Methode dar, um die Komplexität qualitativ und quantitativ abzubilden.

### 2.1 Vegetationsbrandaerosole

Die Verbrennung von Biomasse hängt von vielen Faktoren ab, was sich auf die Entstehung verschiedenster Verbrennungsstoffe auswirkt. Bei Vegetationsbränden ist davon auszugehen, dass viele Verbrennungsprozesse zur selben Zeit in unmittelbarer Nähe unter verschiedenen Bedingungen ablaufen, woraus eine Inhomogenität entsteht. Eine isoliert betrachtete Verbrennung hängt von dem brennenden Material, dem verfügbaren Sauerstoff, einer anhaltenden chemischen Reaktionskette und schließlich der Verbrennungstemperatur ab. Dabei tritt nahezu jede beliebige Kombination dieser Faktoren auf, woraus ein anderer Verbrennungsvorgang abläuft und eine unterschiedliche Zusammensetzung der Verbrennungsprodukte resultiert. Sobald einer der vier

Faktoren nicht mehr in ausreichendem Maße verfügbar ist, kommt der Verbrennungsprozess zum Erliegen.

Die Erkenntnis über die Stoffe, welche tatsächlich durch Vegetationsbrände in die Atmosphäre gelangen, leiten sich aus verschiedenen Ansätzen ab. Der theoretische Ansatz setzt das Wissen über die Zusammensetzung der beteiligten Biomasse, Annahmen über die Verbrennungstemperatur und das Vorhandensein von Sauerstoff und bekannte chemischen Reaktionen voraus. Jedes organische Material besteht im wesentlichen aus Kohlenstoffverbindungen, welche während einer Verbrennung mit Sauerstoff reagieren und in der einfachsten Form als Kohlenstoffdioxid ( $\text{CO}_2$ ) oder Kohlenstoffmonoxid ( $\text{CO}$ ) gasförmig freigesetzt werden. Falls der Kohlenstoff nicht vollständig aus dem Brennstoff freigesetzt wird, bleibt dieser Rest in Form von Kohle oder Ruß zurück. Die Reaktionsketten können beliebig komplex werden, weshalb Messexperimente genutzt werden um die theoretischen Betrachtungen zu überprüfen und das Prozessverständnis zu verbessern. Sowohl Labormessungen als auch in situ-Messungen von realen Rauchfahnen finden Anwendung. Unter Laborbedingungen besteht die Möglichkeit gezielt die Einflussfaktoren während der Verbrennung zu regulieren, um spezifische Erkenntnisse über den Zusammenhang von Einflussfaktoren auf die freigesetzten Stoffe zu erlangen. Darüber hinaus schließen Flugzeugmessungen die Lücke zwischen idealisierten Laborbedingungen und den tatsächlich vorherrschenden Realbedingungen innerhalb der Rauchfahnen von Vegetationsbränden. Zusätzlich unterstützen immer mehr Fernerkundungsprodukte die Untersuchung der freigesetzten Stoffe. Solche Messungen zeigen die Freisetzung von vielen gasförmigen Verbindungen, wie Methan ( $\text{CH}_4$ ), Stickoxide ( $\text{NO}_x$ ), Lachgas ( $\text{N}_2\text{O}$ ) und schnellflüchtigen organischen Verbindungen (VOC). Aus den sich daran anschließenden chemischen Reaktionen entstehen weitere Komponenten. (Andreae und Rosenfeld, 2008; Akagi et al., 2011; Gilman et al., 2015)

Neben den gasförmigen Substanzen werden ebenfalls große Mengen an festen Partikeln emittiert. Sie treten in vielfältiger Form und Zusammensetzung auf, bei welchen Ruß (engl. black carbon) ein Hauptbestandteil bildet. Dieser kann in reiner Form auftreten, wie auch als Gemisch aus reinem Ruß mit organischen Verbindungen, dem sogenannten organischen Kohlenstoff (engl. organic carbon) oder gemischt mit geringen Anteilen an anorganischen Substanzen, wie Staub und löslichen Salzen. Die Einlagerung und Mischung verschiedener Substanzen innerhalb eines Aerosols wird als interne Mischung bezeichnet. Lagern sich die Substanzen lediglich aneinander an, so bilden diese ein extern gemischtes Aerosol. Aus Messungen geht hervor, dass die intern gemischten Partikel mit dem Faktor 5-6 häufiger auftreten, als die reinen Kohlenstoffpartikel. Die festen Bestandteile treten in verschiedenen Formen und Zusammensetzungen auf, welche Pósfai et al. (2003) anhand von Messproben in drei Typen unterscheidet, 1. organische Partikel mit anorganischem Einschluss, 2. „tar balls“ und 3. Ruß. Diese Typen unterliegen allerdings einem ständigen Veränderungsprozess, welcher durch chemische Reaktionen mit den vorhandenen Gasen oder Partikeln abläuft. Diese verändern die chemischen und physikalischen Eigenschaften der Partikel. (Capes et al., 2008; Andreae und Rosenfeld, 2008).

Als Maß für die Stärke von Feuer dienen mehrere Kenngrößen, welche aus Messdaten abgeleitet werden. Der Emissionsfaktor gibt den mengenmäßigen Anteil an freigesetzten Partikeln zur gesamt verbrannten Biomasse an. Die Verbrennungseffizienz (combustion efficiency (CE)) be-

schreibt den Anteil an freigesetztem  $\text{CO}_2$  zu der gesamt freigesetzten Kohlenstoffmenge, welche als Summe von  $\text{CO}_2$  und  $\text{CO}$  angenähert wird:

$$CE = \frac{CO_2}{C} \approx \frac{CO_2}{CO_2 + CO} \quad (2.1)$$

Nach Janhäll et al. (2010) hängt der Massenfluss der Emission stark von der Art der brennenden Biomasse ab. Auf die Anzahl der freigesetzten Partikel hat die Art der Biomasse demnach keinen direkten Einfluss. Daher findet bei Vegetationsbrandaerosolen eine Beschreibung der freigesetzten Partikelanzahl über die freigesetzte Masse und über den Partikeldurchmesser statt. Als geeignete Verteilung dient eine Gausssche Normalverteilung mit einem Anzahlmediandurchmesser von  $d_m = 0.12 \mu\text{m}$ . Andere Messungen weisen ähnliche Werte zwischen  $d_m = 0.1 \mu\text{m}$  und  $d_m = 0.2 \mu\text{m}$  auf. Die Partikel bleiben jedoch nicht unverändert, sondern unterliegen nach ihrer Freisetzung einem Alterungsprozess, bei welchem weitere organische Komponenten auf ihnen kondensieren. Dies führt neben einer chemischen Veränderung zu einem weiteren Anwachsen des Durchmessers. (Andreae und Rosenfeld, 2008; Hays et al., 2005)

Die starke Hitzeentwicklung der Waldbrände erzeugt bodennahe Turbulenzen, was weitere Partikel wie Asche, Staub und Erde aufwirbelt und ebenfalls in die Atmosphäre freisetzt. Diese sind zwar keine aus dem Verbrennungsprozess entstehende Partikel, jedoch ist deren Emission eine direkte Folge des Waldbrands und wirken entsprechend in der Atmosphäre (Wagner et al., 2018). In der weiteren Betrachtung dieser Arbeit werden die co-emittierten Partikel nicht als Vegetationsbrandaerosole gesehen.

## 2.2 Wolkenmikrophysik

Wolken bestehen aus einer Ansammlung an kleinen flüssigen Wassertröpfchen und festen Eispartikeln. Bei der Entstehung von Wolkentropfen und Eispartikeln spielen in der freien Atmosphäre Aerosole als kleine Verunreinigungen eine entscheidende Rolle und dienen als Keim zur Tropfen- und Eisbildung. Die Bezeichnung der beteiligten Keime richtet sich nach dem auftretenden Phasenübergang:

- An Wolkenkondensationskeimen (engl. cloud condensation nuclei, CCN) entstehen aus der Dampfphase flüssige Tropfen und bilden sogenannte warme Wolken.
- Eiskeime (engl. ice nuclei, IN) erleichtern den Phasenübergang zur festen Phase, woraus sogenannte Eiswolken oder kalte Wolken in der Eisphase entstehen.

Die so entstandenen Wolken weisen ebenfalls unterschiedliche Eigenschaften und Rückkopplungseffekte auf die Atmosphäre auf, weshalb eine separate Betrachtung folgt.

Die Eisphase und Flüssigphase der Wolkentropfen bzw. Eispartikel sind nicht strikt voneinander getrennt, sondern sie stehen in engem Zusammenhang durch Phasenübergänge. Je nach veränderten Umgebungsbedingungen schmelzen Eispartikel zu Wolken- bzw. Niederschlagstropfen und Flüssigtropfen gefrieren zu Eispartikeln. Somit kann sich eine veränderte Konzentration oder Eigenschaften der Eispartikel auf die Flüssigphasenwolken auswirken und auch andersherum. Mit diesen Phasenübergängen geht ebenfalls ein Energie- und somit Wärmeaustausch mit der Umgebung einher. Wodurch ebenfalls die Umgebungsbedingungen die Wolkenprozesse beeinflussen

und die ablaufenden Wolkenprozesse wiederum ihre Umgebung verändern. In sogenannten Mischphasenwolken treten diese Übergangsprozesse häufig und vermehrt auf, weshalb die Beschreibung der darin stattfindenden Prozesse und deren Auswirkungen auf die Atmosphäre und Strahlung komplex ist.

### 2.2.1 Aktivierung in warmen Wolken

Die Bildung von homogenen, reinen Wassertropfchen aus der Dampfphase heraus findet in der freien Erdatmosphäre nicht statt. Kondensation tritt ein, sobald der Wasserdampfdruck  $e_w$  den Sättigungsdampfdruck  $e_{\text{sat}}$  überschreitet.

$$S = \frac{e_w}{e_{\text{sat}}} \quad (2.2)$$

Daraus definiert sich die Übersättigung  $s_{\text{sup}}$  als Maß für das Überschreiten der erforderlichen Sättigung  $S$ .

$$s_{\text{sup}} = S - 1 \quad (2.3)$$

Bei kleiner werdendem Tropfenradius steigt die Krümmung der Tropfenoberfläche. An der so stärker gekrümmten Oberfläche steigt der erforderliche Wasserdampfdruck an, um den Tropfen im Sättigungsgleichgewicht mit seiner Umgebung zu halten. Dieses Verhalten wird als Kelvin-Effekt bezeichnet. Bei einem notwendigen initialen Tropfenradius auf Molekülebene, sogenannte Embryos, liegt dieser erforderliche Gleichgewichtsdampfdruck beim 3.5- bis 8-Fachen des Sättigungsdampfdrucks. Während in der Theorie und im Labor solch große Übersättigungen berücksichtigt werden können, treten diese Übersättigungswerte in der realen Atmosphäre nicht auf. Daher wird das homogene Kondensieren zur Wolkentropfenbildung in der realen Atmosphäre vernachlässigt. Neben der homogenen Kondensation tritt die Kondensation an Aerosolen bereits bei deutlichen geringeren Übersättigungen auf, weshalb dies als heterogene Kondensation bezeichnet wird. Sowohl auf diesen Partikeln als auch auf den daraus entstehenden Wassertropfen liegt der benötigte Gleichgewichtsdampfdruck aufgrund der geringeren Krümmung an der Oberfläche deutlich niedriger, als beim homogenen Kondensieren auf Molekülskala. Besteht das Aerosol aus löslichen Substanzen, so geht diese mit dem kondensierten Wasserdampf eine Lösung ein. Über einer Lösung liegt der Gleichgewichtsdampfdruck niedriger, als über reinem Wasser, was als Raoult-Effekt bezeichnet wird. Das resultierende Gleichgewicht aus dem Zusammenwirken von Kelvin-Effekt (starker Oberflächenkrümmung erhöht den Gleichgewichtsdampfdruck) und des Raoult-Effekt (Reduzierung des Gleichgewichtsdampfdrucks über einer Lösung) fasst die Köhler-Theorie für lösliche trockene Aerosole zusammen. Angenommen werden gleichbleibenden Umgebungsbedingungen wie die Temperatur  $T$ , die Wasserdichte  $\rho_w$ , die Molekularmasse von Wasser  $M_w$ , die Oberflächenspannung von Wasser  $\sigma_w$ , der Molenanteil des Lösungstoffs  $n_s$  und der initialen Tropfenradius  $d_D$ :

$$s_{\text{eq}} = \frac{A_K}{d_D} - \frac{B_K}{d_D^3} \quad , \quad (2.4)$$

mit

$$A_K = \frac{4 M_w \sigma_w}{R T \rho_w} \quad \text{und} \quad B_K = \frac{6 n_{\text{sol}} M_w}{\pi \rho_w} \quad . \quad (2.5)$$

Dieser Theorie zu Folge hängt der Kondensationsverlauf an einem Aerosol hauptsächlich von der Übersättigung der Umgebung bzw. Atmosphäre und vom aktuellen Tropfenradius ab. Demnach überwiegt bei der Tropfeninitialisierung der Raoult-Effekt und ermöglicht das Kondensieren bereits bei Übersättigungen  $<1$ . Allerdings reduziert dieser Kondensationsprozess gleichzeitig die Übersättigung der Umgebung, da Wasser von der Dampf- in die Flüssigphase übergeht. Sobald der Tropfen bei entsprechender vorherrschender Übersättigung einen gewissen Radius überschreitet (kritischer Radius), wächst dieser stetig an, da die weitere Zunahme des Radius (Verringerung der Krümmung) den Verdünnungseffekt überwiegt. Der kritische Radius definiert den Zustand, an welchem der maximale Unterschied zwischen Kelvin- und Raoult-Effekt vorliegt und die sogenannte kritische Übersättigung vorliegt. Die Lage dieser kritischen Übersättigung ist abhängig von der chemischen Partikelzusammensetzung.

Neben löslichen Partikeln findet Kondensation ebenfalls auf unlöslichen Partikeln statt. Allein die geringere Krümmung der Partikeloberfläche, im Vergleich zu einem Embryo, reduziert den erforderlichen Sättigungsdampfdruck an der Partikeloberfläche. Ob jedoch auf unlöslichen Partikeln Kondensation von Wasser stattfindet, hängt hauptsächlich von der chemischen Zusammensetzung der Partikel ab. Nach Cassie (1948) stellt sich im Gleichgewichtszustand bei der Oberflächenbenetzung mit Wasser ein Kontaktwinkel zwischen der Flüssigphase und der festen Partikeloberfläche ein. Bei hydrophoben Oberflächen wölbt sich die Wasseroberfläche an der Kontaktstelle zur Oberfläche stärker auf, was einen großen Kontaktwinkel bedeutet. Je besser benetzbar die Oberfläche ist, desto weiter verteilt sich der Wassertropfen über die Partikeloberfläche und der Kontaktwinkel nimmt ab. Dieser Kontaktwinkel stellt ein Maß für die Hygroskopie eines Partikels dar. Liu et al. (2011) geben für ein weiteres Maß, den Hygroskopie-Parameter  $\kappa$ , eine Klassifizierung in drei Hygroskopiebereiche an:

- nahezu hydrophob:  $\kappa \leq 0.1$
- wenig hygroskop:  $\kappa = 0.10 - 0.20$
- stark hygroskop:  $\kappa > 0.20$  .

Etliche Feld- und Labormessungen weisen auf eine große Variation hinsichtlich der Hygroskopie von Vegetationsbrandaerosolen hin (Rissler et al., 2006; Petters et al., 2009b; Psychoudaki et al., 2018). Dies resultiert sowohl aus der unterschiedlichen chemischen Zusammensetzung dieser Aerosole, wie auch aus den Veränderungen durch chemische Prozesse. Die Größenverteilung der Aerosole scheint dabei einen schwachen Einfluss auf die Hygroskopie zu haben. Rose et al. (2010) stufen einen Werte von  $\kappa = 0.2$  als charakteristisch für frisch freigesetzte Aerosole aus Verbrennung landwirtschaftlicher Reststoffe ein. Aus Flugzeugmessungen mehrerer Waldbrandaerosole geben Petters et al. (2009a) die Hygroskopie in einem Bereich von  $0.1 < \kappa < 0.4$  an. Mit der Klassifizierung von Liu et al. (2011) besitzen somit die Vegetationsbrandaerosole die generelle Eigenschaft hygroskop zu sein, variierend in der Stärke. Daraus besitzen die Vegetationsbrandaerosole eine sofortigen Fähigkeit zur CCN-Aktivierung unmittelbar nach deren Freisetzung. Die sich daran anschließenden Alterungsprozesse vergrößern zwar den Anteil an organischen Bestandteilen, was die Hygroskopie vermindert. Jedoch scheint die Verringerung der Oberflächenkrümmung den Effekt zu dominieren, was schließlich zu einer Steigerung der Hygroskopie durch die Alterung führt.

Bei einem Gemisch aus löslichen und unlöslichen Stoffen prägen die jeweiligen Massenanteile die Kondensationseigenschaft des Partikels. Darüber hinaus bedingen auftretende chemische Prozesse die Kondensationskeimaktivität, woraus die Komplexität der Beschreibung steigt.

### 2.2.2 Nukleation in Eiswolken

In der Atmosphäre bestehen Wolken nicht nur aus Wassertropfen, sondern auch aus Eiskristallen. Ab Temperaturen unter 235 K beginnt Wasser bei entsprechender Übersättigung homogenen Eiskristalle zu bilden. Die hierfür erforderliche Übersättigung über Eis  $s_i > 0.4$  liegt eine Größenordnung unter der erforderlichen Übersättigung bei homogener Bildung von Wassertropfen  $s_w \approx 3.5 - 8$ . Handelt es sich nicht um reines Wasser, sondern um eine Lösung, liegt die erforderliche Temperatur noch niedriger bzw. die Übersättigung höher. Homogenes Gefrieren bezeichnet den Prozess der Eisbildung aus reiner Flüssigkeit, was reinem Wasser oder einer Lösung entspricht. Nach Knopf und Rigg (2011) dienen die bei Vegetationsbränden emittierten Gase als einer dieser Vorläufersubstanzen für homogene Eisbildung.

Bei einem weiteren Eisbildungsprozess stoßen nichtlösliche Aerosole den Eisbildungsprozess an. Die Eiskristallbildung setzt bevorzugt an günstigen Oberflächenstrukturen ein, da hier für die Bildung eine geringere Energie aufgewendet werden muss und der Gleichgewichtssättigungsdampfdruck ebenfalls niedriger ist. Je größer die Partikeloberfläche, desto mehr solcher bevorzugten Stellen bestehen und das Aerosol ist eisaktiver. Bestimmte Aerosole weisen solche Stellen für die Aktivierung der Eisnukleation auf, weshalb diese Aerosole als Eiskeime bezeichnet werden und die dabei entstehende Eisbildung als heterogene Eisnukleation. Dabei gibt es vier Prozesse zu unterscheiden, welche der Primäreisbildung zugeordnet werden:

- Depositionsgefrieren: Wasserdampf gefriert direkt auf dem Aerosol
- Kondensationsgefrieren: Unterkühltes Wasser kondensiert zunächst in der Flüssigphase auf dem Aerosol. Falls dieses in dem Temperaturregime als IN aktiv ist, gefriert das Wasser anschließend.
- Immersionsgefrieren: Flüssiges Wasser lagert sich an dem Aerosol an, wie in der warmen Phase der CCN-Aktivierung. Unterschreitet nun die Temperatur die Aktivierungstemperatur, so setzt der Gefrierprozess ein.
- Kontaktgefrieren: Ein IN berührt die Oberfläche eines unterkühlten Wassertropfens, dessen Temperatur unter der kritischen Gefriertemperatur liegt. Dieser Kontakt löst einen Gefrierprozess aus. Dabei kann der Eiskeim entweder von außen die Tropfen berühren oder von innen, falls er sich schon innerhalb des Tropfens befindet.

Ein zusätzlicher Sekundäreisprozess entsteht, wenn unterkühlte Wassertropfen mit einem Eiskristall kollidieren. Läuft dieser Prozess in dem kritischen Temperaturbereich zwischen  $-8$  und  $-3^\circ\text{C}$  ab, so besteht die Möglichkeit eines teilweisen Abprallens des Tropfens bei welchem dieser instantan gefriert. Genauer hängt dieser Prozess von der jeweiligen Temperatur der Eispartikel und Wassertropfen ab, wie auch von der Kollisionsgeschwindigkeit. (Hallett und Mossop, 1974; Saunders und Hosseini, 2001)

Der Anteil von Eiskeimen an der Gesamtpartikelanzahl liegt meist deutlich unter dem Anteil von

Kondensationskeimen. Petters et al. (2009b) setzen das kritische Eiskeim zu Partikelverhältnis auf  $1:10^5$ . Sobald dieses kritische Verhältnis überschritten wird, stellt die Nukleation einen signifikanten Effekt auf die Atmosphäre dar. Hoose und Möhler (2012) nennen Pilze, Bakterien, Sporen, Pollen und Staub als effektivste Eiskeime, welche schon bei relativ hohen Temperaturen  $< -5^\circ\text{C}$  eisaktiv sind. Die Eisaktivität von Ruß liegt bei deutlich niedrigeren Temperaturen, was einer schlechteren Eignung als Eiskeim entspricht. Die Resultate der darin hinzugezogenen Studien weisen jedoch eine hohe Unsicherheit für die generelle Eisaktivität für Ruß auf. Die Bandbreite reicht von keiner Eisaktivität hinzu einer signifikanten Abschwächung der Eisaktivität, bei gesteigertem organischen Anteil. In dem gefundenen Temperaturregime tritt vorwiegend Kondensations- und Immersionsgefrieren auf. In gesammelten Wolkentropfen, welche aus Eispartikeln geschmolzen sind, finden Rosenfeld et al. (2011) jedoch keinen Nachweis, dass Ruß aus Vegetationsbränden eine Eisaktivität bei Temperaturen über  $-33^\circ\text{C}$  besitzt. Sie sehen daher Ruß als vernachlässigbarer Eiskeim in der Wolkenbildung an. DeMott et al. (2009) versuchen direkt unter Bedingungen zu messen, wie sie bei der Bildung von Zirren auftreten, also in einem Temperaturbereich von  $-45$  bis  $-60^\circ\text{C}$ . Der heterogene Gefrierereffekt, ausgelöst durch kleine Verbrennungsaerosole, bleibt jedoch innerhalb der Messfehler und kann so nicht vom homogenen Gefrierprozess signifikanten unterschieden werden.

Petters et al. (2009b) untersuchen im Labor das Gefrierverhalten nicht von reinem Ruß, sondern von Partikeln aus Biomassenverbrennungen bei einer Temperatur von  $-30^\circ\text{C}$ . Bestimmte Biomassen weisen hier eine deutliche Eisaktivität auf. Der Anteil an organischem Material hängt von der Art des Brandes ab. Offene Flammen erzeugen einen geringeren organischen Anteil in den freigesetzten Partikel, wohingegen bei glimmenden Bränden höhere organische Anteile produzieren. Prenni et al. (2012) unterstützen die These der generellen Eignung von Brandaerosole aus offenen Feuern als Eiskeime in der Atmosphäre bei  $-30^\circ\text{C}$  durch Messungen innerhalb von Rauchfahnen und durch Laborversuche. Schwelbrände weisen hingegen einen deutlichen geringere Eiskeimanteil an der gesamten Aerosolanzahl auf, weshalb dieser Brandart eine vernachlässigbare Rolle bei der Eiskeimgenerierung zukommt. Selbst nach einem nach einem Transport über  $\sim 1600\text{km}$  zeigen Messungen ebenfalls eine anhaltende Eiskeimaktivität der Vegetationsbrandaerosole. Daraus folgt die Erkenntnis, dass der Einfluss von offenen Vegetationsbränden auf die Eispartikelbildung nicht nur lokal im Emissionsgebiet auftritt, sondern auch durch Ferntransport in abgelegenen Gebieten wirksam werden kann.

Nach McCluskey et al. (2012) bedarf es jedoch einer genauen Untersuchung der Partikelzusammensetzung, da andere ebenfalls eisaktive Aerosole die Messungen beeinträchtigen können. Die freigesetzten Partikel aus Vegetationsbränden zeigen in einem weit größeren Temperaturbereich von  $-32^\circ\text{C}$  bis  $-12^\circ\text{C}$  signifikante Eisaktivität, wobei dieser Effekt nicht ausschließlich auf Rußpartikel zurück zuführen ist. Vielmehr tragen andere mitemittierte oder über Ferntransport herangetragene Aerosole, wie Sand oder Mineralstaub, zu einem Gefrierprozess in wärmeren Temperaturbereichen bei. Durch Entfernen des Rußanteils in den Aerosolen halbiert sich jedoch die Eiskeimanzahl, was einen eindeutigen Einfluss des Rußes auf die Eisaktivität darstellt.

## 2.3 Aerosol-Strahlungswechselwirkung

Neben den sogenannten mikrophysikalischen Effekten von Vegetationsbrandaerosole interagieren diese ebenfalls mit elektromagnetischer Strahlung. Aerosol-Strahlungseffekte bezeichnen die Wechselwirkung, welche sich bei wolkenfreien Bedingungen zwischen der Atmosphäre und den Aerosolen ergeben. Die zusätzlichen Auswirkungen in Interaktion mit der Wasserphase behandelt Abschnitt 2.4.

Bei der Betrachtung von atmosphärischer Strahlung werden meist zwei Spektralbereiche unterschieden, bei denen mehr als 99% des Energieumsatzes geschieht: kurzwellig ( $\Delta\lambda_S = 0.1 - 4 \mu\text{m}$ ) und langwellig ( $\Delta\lambda_L = 4 - 100 \mu\text{m}$ ). Die kurzwellige Strahlung stammt von der Sonne, wohingegen im langwelligen Bereich die thermische Ausstrahlung aller Bestandteile des Erdsystems als Quelle dienen. Bei der Interaktion mit Materie wird die Strahlung entweder reflektiert, gestreut oder absorbiert. Jeder dieser Effekte zeigt unterschiedliche Auswirkungen sowohl auf die Materie, als auch auf die Strahlungseigenschaften. Elementarer Ruß stellt einen Hauptbestandteil der Vegetationsbrandaerosole dar, welcher im kurzwelligen Bereich und im langwelligen Bereich einen hohen Absorptionskoeffizienten aufweist. Trifft kurzwellige Strahlung auf ein Rußpartikel, so absorbiert dieser die Strahlung aufgrund seiner Oberflächenbeschaffenheit und chemischen Zusammensetzung sehr effektiv. Die absorbierte Strahlung wird in thermische Energie im Partikel umgewandelt. Die Absorption wirkt wie eine Abschattung, da die kurzwellige solare Strahlung nicht weiter durch die Atmosphäre bis zum Erdboden gelangen kann. Somit entsteht durch das Vorhandensein von Ruß ein netto Energietransfer vom Erdboden in die Atmosphäre. Im Vergleich zu anderen atmosphärischen Aerosolen erweist sich Ruß als einer der effektivsten Absorber, weshalb vorhandener Ruß eine beachtliche Albedoänderung hervorruft. Sowohl in der Atmosphäre durch Verdunklung von hellen Wolken oder direkt an der Erdoberfläche, wenn Ruß auf Schnee oder Eisflächen deponiert. (Andreae und Gelencsér, 2006; Schuster et al., 2016)

Sowohl die frisch emittierten primär organischen Aerosole aus Verbrennungsexperimenten, als auch die nach einer photochemischen Alterung entstandenen sekundär organischen Aerosole weisen hohe Absorptionsfähigkeiten auf (Saleh et al., 2013). Allerdings weisen die Intensität und deren spektralen Abhängigkeit eine große Varianz auf. Saleh et al. (2014) bezeichnen den organischen Rußanteil als braunen Kohlenstoff. Mit dem braunen Kohlenstoff verändern sich die Absorptionseigenschaften des Rußgemischs enorm im Vergleich zu reinem Ruß. Da die Zusammensetzung des organischen Materials schwer zu bestimmen ist, folgen daraus auch große Unsicherheiten in dessen Absorptionsvermögen. Lack et al. (2012) schätzen den Bias auf die Massenabsorptionseffizienz von Ruß ohne Berücksichtigung des organischen Anteil auf 50 %.

Daraus schließt sich einerseits eine qualitativ starke Beeinflussung der Strahlungsverhältnisse durch Vegetationsbrandaerosole, andererseits weist die quantitative Abschätzung hohe Unsicherheiten auf bedingt durch eine hohe Variabilität der Partikelzusammensetzung und deren Wellenlängenabhängigkeit.

Aus der Strahlungsabsorption und Umwandlung in Wärme erfährt die Atmosphäre durch die Anwesenheit von Vegetationsbrandaerosolen eine lokale Temperaturerhöhung. Dies führt zu einer Veränderung der vertikalen Temperaturverteilung und folglich zu einer veränderten Stabilität, was

sich wiederum auf die Feuchtigkeitsverteilung und somit Wolkenbildung auswirken kann. Zeitlich laufen diese Anpassungseffekte auf die veränderten Strahlungsverhältnisse schnell ab, daher die Bezeichnung „rapid adjustment“ bzw. schnelle Anpassung anstatt des „semidirekter Effekts“ (Boucher, 2015b).

Eine Veränderung in den Strahlungseigenschaften in der vertikalen Atmosphäre beeinflusst ebenfalls die Strahlungsbilanz an der Oberseite der Atmosphäre. Wie sich diese Strahlungsbilanz und somit auch der Effekt der schnellen Anpassung auswirkt hängt von mehreren Faktoren ab. Die Präsenz von Wolken spielt hierbei eine entscheidende Rolle, genauer die vertikale Position dieser Wolken und die Lage relativ zu der vorhandenen Aerosolschicht: oberhalb, innerhalb oder unterhalb. Je nach Situation verändert sich sowohl der Betrag als auch das Vorzeichen des Einflusses auf die Strahlungsbilanz.

In den Modellstudien dieser Arbeit werden die Strahlungswechselwirkung mit Vegetationsbrand-aerosolen nicht berücksichtigt. Die Kenntnis über diesen Effekt kann jedoch zur Interpretation der Ergebnisse und weiteren Schritte behilflich sein.

## 2.4 Aerosol-Wolkenwechselwirkung

Die Abhängigkeit zwischen Aerosolen und Wolken besteht nicht nur durch die Wirkung der Aerosole als Nukleationskeime. Vielmehr sorgen weiter wachsende Wolkentropfen hin zu Niederschlagstropfen für ein effektives Auswaschen der vorhandenen Aerosole. Sowohl innerhalb der Wolken, als auch unterhalb der Wolke binden Niederschlagstropfen durch Einsammelprozesse während des Fallens Aerosole und befördern diese in niedere Schichten bis auf die Erdoberfläche. Allein dieser Prozess zeigt qualitativ eine gegenseitige Beeinflussung, was die quantitative Bestimmung wiederum erschwert.

Um eine Beschreibung der im Allgemeinen gleichzeitig stattfindenden und sich gegenseitig bedingenden Prozesse jedoch zu erleichtern, bietet sich zunächst eine isolierte und teilweise vereinfachte Betrachtung dieser Prozesse an, welche im Folgenden unter dem Begriff der „Aerosol-Wolken-Wechselwirkung“ zusammengefasst sind.

In warmen Wolken vergrößert eine erhöhte Anzahl CCN-aktiver Aerosole die Anzahl der gebildeten Wolkentropfen. Da die selbe Menge an verfügbarem Wasser auf eine größere Tropfenanzahl verteilt wird, besitzen die Wolkentropfen einen geringeren Durchmesser. Kleinere Wassertropfen streuen einfallendes kurzwelliges Licht stärker, wodurch die Menge an rückgestreuter Strahlung ansteigt. Konsistenter halber sinkt der Anteil an absorbierter Strahlung, was zu einer Abkühlung der Atmosphäre führt. (Twomey Effekt; (Lohmann, 2006))

Wasser besitzt im infraroten Spektrum ein hohes Absorptionsvermögen. Eine vorhandene Wolke nimmt die von der Erde oder anderen Wolken ausgestrahlte langwellige Strahlung auf und erwärmt sich. Unterstützt wird diese Erwärmung ebenfalls durch den kleinen Anteil der absorbierten kurzwelligen Strahlung, welcher nicht gestreut wird. Lokal erfolgt so ebenfalls eine Erwärmung. Mit der Idee eines schwarzen Körpers strahlt ein Wolkentropfen entsprechend seiner Temperatur in alle Richtungen Energie ab, was an der Oberseite i.A. zu einer Abkühlung führt. Dies beeinflusst zusätzlich die dynamischen Prozesse innerhalb einer Wolke.

Die erhöhte Anzahl und verringerte Größe der aerosolbeeinflussten Wolkentropfen verändern nicht nur den Strahlungshaushalt, sondern weisen mehrere mögliche mikrophysikalische Effekte auf. Ein ineffizienteres Tropfenwachstum kombiniert mit einer reduzierten Sedimentationsgeschwindigkeit erhöht die Aufenthaltsdauer der Wolkentropfen in der Atmosphäre. Folglich bildet sich daraus weniger Niederschlag und der Wolkenwassergehalt steigt an. Nach Rosenfeld et al. (2008) besteht eine Verstärkung der Konvektion (engl. convective inhibition), wenn diese veränderten Wolkentropfen durch konvektiven Transport in die Gefrierzone gelangen. Diese Wolkentropfen unterkühlen und gefrieren dort verstärkt an vorhandenen Eisparkeln, da mehr unterkühlt Wassertröpfchen zur Verfügung stehen. Gefrieren mehr und kleinere Wolkentropfen mit einem insgesamt höheren Wolkenwassergehalt wird dabei mehr latente Wärme freigesetzt, woraus mehr Auftrieb und somit eine Verstärkung der Konvektion innerhalb der Wolke folgt. Aus einer stärkeren Abkühlung unterhalb der Wolken resultiert indirekt eine zusätzliche Konvektionsverstärkung. Bei der Evaporation des erhöhten Wassergehalts in den Abwinden kühlen diese stärker ab und erzeugen stärkere Coldpools, welche wiederum neue Konvektionszellen anstoßen. Die Nettoerwärmung der oberen Schichten führt zu einer verstärkten atmosphärischen Zirkulation. Allerdings unterliegen diesen Prozessen einige Idealisierungen, weshalb die Quantität dieses Effekts schwer zu bestimmen ist. (Camponogara et al., 2018)

Aus der möglichen Konvektionsverstärkung folgt ebenfalls eine Veränderung im Niederschlagsmuster, welche entsprechend dem konvektiven Charakter eher zu stärkeren Intensitäten und kürzerer Dauer tendieren (Rosenfeld et al., 2008).

Innerhalb der Wolke setzt sich die Entwicklung der Wolkentropfen nach der Köhlertheorie fort, wobei Kondensation zu einem weiteren Wachstum führt oder Verdampfen zum Auflösen. Neben der Kondensation wächst der Wolkentropfen ebenfalls durch Kollision mit anderen Wolkentropfen an. Die Koaleszenz bezeichnet das Zusammenfließen zweier Wolkentropfen nach der Kollision aufgrund unterschiedlicher Geschwindigkeiten, verursacht durch Gravitation oder Turbulenz. Ein Abprallen oder Aufplatzen der Wolkentropfen nach der Kollision ist ebenfalls möglich, abhängig von den Durchmessern der beteiligten Tropfen. Zusammengefasst verschieben die Kollisionsprozesse, insbesondere die Koaleszenz, die Größenverteilung der Wolkentropfen hin zu größeren Tropfen. Nach Erreichen eines gewissen Durchmessers ( $\sim 100 \mu\text{m}$ ) entwickeln sich Wolkentropfen zu Niederschlagstropfen. Dabei können die herrschenden Aufwinde in der Wolke die Sedimentationsgeschwindigkeit der Wolkentropfen nicht mehr ausgleichen und diese fallen als Niederschlagstropfen aus. Während des Ausfallens können weiterhin kleinere Wolken- oder Niederschlagstropfen eingesammelt werden (Akkretion). Auch hier zeigt der Einfluss von zusätzlichen Aerosolen (z.B. aus Vegetationsbränden) keinen klaren verstärkenden oder abschwächenden Effekt. Zum Beispiel dauert der Wachstumsprozess von kleinen Tropfen zu ausfallbaren Niederschlagstropfen länger, andererseits kann dieser Effekt durch eine Dominierung des Einsammelprozesses von Niederschlagstropfen, welche sich weiter oben gebildet haben, ausgeglichen werden. Lokal und isoliert vermag der Einfluss klar sein, jedoch in Kombination mit allen anderen Effekten und auf einer größeren Skala bleibt der Aerosoleffekt schwer einzuschätzen.

In der Eisphase besteht ebenfalls die Möglichkeit einer Vielzahl an Interaktionen mit allen Wasserphasen. Dabei können grundsätzlich ähnliche Prozesse wie bei Flüssigtropfen betrachtet werden. Bei der Kollision zweier Eiskristalle prallen diese oft ab und verbinden sich selten, ganz im Gegensatz zu Flüssigtropfen. In Mischphasenwolken treten Eisparkel und unterkühlte Was-

sertropfen gleichzeitig auf und können so miteinander auf interagieren. Eine weitere Anlagerung von Wasserdampf führt ebenso zu einem Wachstum, wie das Anlagern von unterkühlten Wassertropfen durch Verreifung, falls Eispartikel durch eine Zone unterkühlten Wassers fallen. Sobald unterkühlte Wassertropfen beginnen zu gefrieren, kann es zu einem Platzen des halbgefrorenen Eis-Wasserpartikels kommen, da die beiden Aggregatzustände unterschiedliche Dichten aufweisen. Diese Splitterprodukte dienen wiederum als Eiskeime, was bei Temperaturen über  $-10^{\circ}\text{C}$  vorwiegend auftritt, also im Regime von Mischphasenwolken. Über Eis ist der Sättigungsdampfdruck bei den selben Umgebungsbedingungen geringer als über Wasser. In Mischphasenwolken vermag eine Übersättigung bezüglich Eis vorliegen und eine Untersättigung bezüglich Wasser, was zur Folge hat, dass Wasserdampf vornehmlich auf vorhanden Eispartikel deponiert und diese wachsen. Gleichzeitig verlieren anwesende unterkühlte Wassertropfen durch Evaporation Wasser, da die Umgebung weiter untersättigt ist. Dieses Wachsen der Eispartikel auf Kosten der Wassertropfen, auch bekannt als Wegener-Bergeron-Findeisenprozess (WBF), fördert das Eispartikelwachstum und sorgt für das Auflösen von unterkühlte Flüssigtropfen. Fallen diese angewachsenen Eispartikel aus, vergleichbar zu flüssigen Niederschlagstropfen, so bildet sich Niederschlag ohne vorausgegangenen Koaleszenzeffekt in der Flüssigphase. Das Auflösen von Flüssigtropfen und Ausfallen der Eispartikel verursacht ein Auflösen der Mischphasenwolke, falls es zu keinem Nachschub von Flüssigwasser oder Wasserdampf durch konvektiven Transport gibt.

Die Zeitskalen dieser Prozesse und entsprechenden effektiven Einflüsse auf das Gesamtsystem der Wolke sind unterschiedlich und schwer zu quantifizieren. Sie unterscheiden sich je nach Gegebenheiten von Anzahl und Eigenschaften der vorhandenen Partikel, von den Umgebungsbedingungen, des verfügbaren Wassergehalts oder von der Vertikalgeschwindigkeiten. Die homogenen und heterogenen Gefrierprozesse können ebenfalls gleichzeitig auftreten und konkurrieren um den vorhandenen Wasserdampf. Eine nähere Beschreibung dieses Prozesses und der Einfluss von Aerosolen folgt in Abschnitt 3.3. (Boucher, 2015a)



## 3 Das Modellsystem ICON-ART

Nach den Grundlagen über die theoretischen mikrophysikalischen Vorgänge aus dem vorigen Kapitel, folgt nun die genauere Betrachtung des verwendeten meteorologischen Modells. Die grundlegende Physik und Meteorologie aus diesem Kapitel ergeben ein vollfunktionsfähiges numerisches Modell zur Simulation der Ausbreitung und vor allem Einfluss von Vegetationsbränden auf die Atmosphäre.

### 3.1 Meteorologisches Modell ICON

Ein ideales Modell umfasst alle räumlich und zeitlich auftretenden Prozesse. Die räumliche Skala erstreckt sich von der Atomebene ( $L_{\text{atom}} \approx 10 \times 10^{-10} \text{ m}$ ) über die Mikrometeorologie ( $L_{\text{mikro}} \approx 10 \times 10^{-1} \text{ m}$ ) bis hin zu den globalen Größenordnungen ( $L_{\text{glob}} \approx 10 \times 10^7 \text{ m}$ ), sowohl in horizontaler als auch vertikaler Richtung. Die zeitliche Skala beginnt bei Bruchteilen von Sekunden von atomaren Prozessen ( $T_{\text{atom}} < 10 \times 10^{-10} \text{ s}$ ) über die mikrometeorologischen Zeitskala ( $T_{\text{mikro}} \approx 10 \times 10^{-1} \text{ s}$ ) bis in die Klimatologie ( $T_{\text{klima}} > 10 \times 10^9 \text{ s}$ ). Unter Anwendung physikalischer Gesetze und meteorologischen Approximationen wird ein Satz von Gleichungen abgeleitet. Die Entwicklung immer leistungsfähigerer Großrechner ermöglicht ein numerisches Lösen dieses Gleichungssatzes, was im Idealfall für jeden Zeitpunkt an jedem Ort geschieht. Mit der Integration der zeitabhängigen (prognostischen) Gleichungen im aktuellen Zustand folgt die Kenntnis über die zeitliche Entwicklung der Atmosphäre, sowohl in die Vergangenheit, als auch in die Zukunft. Somit ist ein Modell in der Lage den Zustand der Atmosphäre in Raum und Zeit abzubilden. Allerdings schränken viele Faktoren diesen Idealzustand ein, wie Unkenntnisse in meteorologischen und physikalischen Prozessen, unvollständige Informationen über den aktuellen Zustand der Atmosphäre, Näherungen, beschränkte Rechenkapazität oder numerische Fehler. In allen meteorologischen Modellen liefern verschiedene Vereinfachungen eine möglichst gute Annäherung an das Idealmodell unter Einhaltung der limitierenden Einflüsse.

Der Deutsche Wetterdienst (DWD) und das Max Planck Institut für Meteorologie in Hamburg (MPI-M) verfolgen mit der Entwicklung des meteorologischen Modells ICON mehrere Ziele, um Verbesserungen im Vergleich zu bestehenden Modellen zu erreichen. Ein Hauptaugenmerk liegt auf der Erhaltung der Masse an einem Ort und des massenbehafteten Transports, was zu einem massenerhaltenden Transport führt. Dies ist bei der Ausbreitungsrechnung von Spurengasen und Spurenstoffen ein essentieller Vorteil. Des Weiteren ist ICON für die parallele Datenverarbeitung optimiert, welche immer mehr Einzug in die Großrechnerstruktur nimmt. Durch die Umsetzung des sogenannten „nesting“ (deutsch: verschachteln) in eine und zwei Richtungen, findet ein verbesserter Informationsaustausch zwischen verschiedenskalierten Prozessen statt. Durch die Verwendung von feingliedrigeren Nests, entsteht die Möglichkeit in einem gewünschten Gebiet die räumliche Auflösung zu erhöhen. Die umgebenden Gebiete bleiben von dieser lokalen Feinauf-

lösung bei einem Einwege-Nesting unbeeinflusst, da die Informationen nur von dem größeren Gebiet in die feineren Nests fließen. ICON bietet auch die Möglichkeit des Zweibege-Nestings, wobei die in den Nests berechneten Ergebnisse wieder zurück an das umgebende Gebiet geleitet werden. Auf diesem Wege beeinflussen kleinskalige Ereignisse, welche in den Nests aufgelöst sind, Vorgänge in dem umgebenden Gebiet.

Bei ICON unterteilt ein Gitternetz den kontinuierlichen Raum der Atmosphäre in mehrere geometrische Körper mit möglichst identischen Seitenflächen. Alle Gittereckpunkte, Gitterkanten, Gitterflächen oder Volumenkörper stehen dabei repräsentativ für das umgebende Gebiet. Je feinmaschiger dieses Gitter in der Horizontalen und Vertikalen ausfällt, desto mehr gleicht es der Beschreibung des kontinuierlichen Raums. Die Aufteilung basiert auf einem Ikosaheder, was einen platonischer Körper mit zwanzig kongruenten Dreiecken darstellt. Ausgehend von diesen Dreiecksflächen liefert eine weitere Unterteilung und anschließendes Projizieren auf die Kugeloberfläche ein feinmaschigeres Gitternetz, welches sich immer mehr der Form der Erdkugel annähert. Der vertikale Aufbau des Raumgitters entsteht durch ein vertikales Anordnen weiterer horizontaler Flächen. Die vertikale Position der horizontalen Flächen ist abhängig von der Höhe über dem Erdboden. Damit folgen die unteren horizontalen Gitterflächen stark der Orographie. Eine Glättungsfunktion minimiert diesen orographischen Einfluss auf die Gitterstruktur mit zunehmender Höhe, sodass ab einer Höhe von 16km die Horizontalflächen parallel zueinander verlaufen. (Reinert et al., 2016)

Der in ICON verwendete Gleichungssatz basiert auf Gassmann und Herzog (2008), den Zängl (2013) modifiziert zu:

$$\frac{\partial v_n}{\partial t} + \frac{\partial K_h}{\partial n} + (\zeta + f)v_t + w \frac{\partial v_n}{\partial z} = -c_{pd}\Theta_v \frac{\partial \pi}{\partial n} + F(v_n) \quad (3.1)$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} + \vec{v}_h \cdot \nabla w + w \frac{\partial w}{\partial z} = -c_{pd}\Theta_v \frac{\partial \pi}{\partial z} - g \quad (3.2)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\vec{v} \rho) = 0 \quad (3.3)$$

$$\frac{\partial \pi}{\partial t} + \frac{R_d}{c_{vd}} \frac{\pi}{\rho \Theta_v} \nabla \cdot (\vec{v} \rho \Theta_v) = \hat{Q} \quad (3.4)$$

Die Gleichungen (3.1) und (3.2) beschreiben die Impulsbilanzgleichungen in allen drei Raumrichtungen, Gleichung (3.3) entspricht der Kontinuitätsgleichung und (3.4) beschreibt den thermodynamischen Einfluss. Die mit diesem Gleichungssatz berechneten prognostischen Variablen sind die Geschwindigkeitskomponente  $v_n$ , die Vertikalgeschwindigkeit  $w$ , die Dichte  $\rho$  und die virtuelle Temperatur  $\Theta_v$ . Die Windkomponente  $v_n$  in Normalenrichtung zur Dreieckskante ergibt zusammen mit der Komponente  $v_t$  parallel zur Dreieckskante den Horizontalwind. Zusätzlich mit der Vertikalkomponente  $w$  bilden diese den dreidimensionalen Windvektor  $\vec{v} = (v_t, v_n, w)$ . Der Operator  $\frac{\partial}{\partial t}$  weist auf eine lokalzeitliche Ableitung hin und  $\frac{\partial}{\partial z}$  auf eine lokalräumliche Ableitung in vertikaler Richtung hin. Zusätzlich beschreibt  $\frac{\partial}{\partial n}$  die lokalräumliche Ableitung normal zu den Dreieckskanten. Die skalaren Größen sind in den jeweiligen räumlichen Zentren definiert. Die vertikale absolute Vorticity beschreibt hier die Summe aus der vertikalen relativen Vorticity  $\zeta$  und dem Coriolisparameter  $f$ . Die horizontale kinetische Energie  $K_h = \frac{1}{2}(v_t^2 + v_n^2)$ , die Exnerfunktion  $\pi$ , die spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck  $c_{pd}$  und bei konstantem Volumen  $c_{vd}$ , die

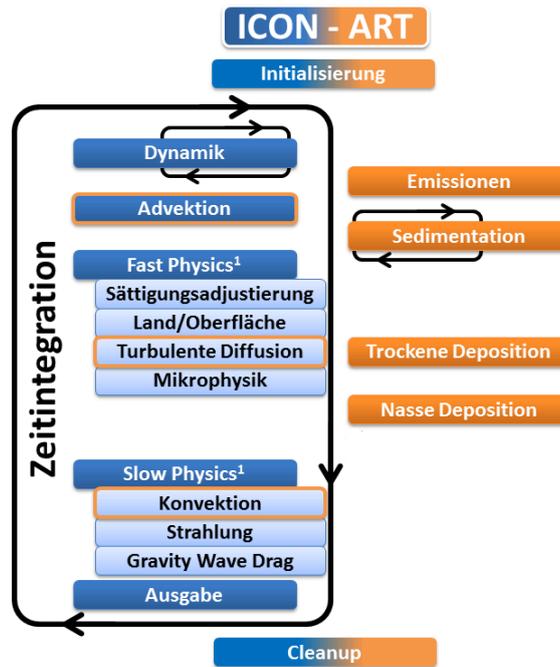


Abbildung 3.1: **Kopplung von ICON mit ART.** blau: Module von ICON, orange: Module von ART. Die orange umrandeten ICON-Module führen Berechnungen für ART durch. (modifiziert nach Rieger et al., 2015)

Erdbeschleunigung  $g$ , die Gaskonstante für trockene Luft  $R$ , wie auch der Heizterm  $\widehat{Q}$  sind weitere verwendete skalare Größen. Zusätzliche Horizontalbeschleunigungen, welche z.B. physikalische Parametrisierungen generiert werden, fließen über den Quellterm  $F(v_n)$  in ICON ein. Durch die Wahl des Dreiecks als Grundform entstehen weniger Inkonsistenzen zwischen benachbarten Dreiecksflächen oder an den polaren Gebieten, im Vergleich zu der Rechtecksform (z.B. COSMO). Aus der Konzeption als Global- bis Regionalmodell benötigt ICON einen nicht-hydrostatischen dynamischen Kern. Die Gültigkeit der hydrostatischen Approximation trifft bei kleinräumigen (regionalen) Prozessen nicht zu und findet in ICON daher keine Anwendung. Das Lösen der dadurch aufwändigeren Grundgleichungen erfordert zwar mehr Rechenaufwand, ermöglicht aber eine konsistent skalenübergreifende Berechnung der Prozesse innerhalb eines einzigen Modells.

## 3.2 Modellerweiterung ART

Um den Einfluss von Spurengasen und Aerosolen auf die atmosphärischen Prozesse abzubilden, benötigt ein entsprechendes Modell die Funktionalität der räumlichen und zeitlichen Verteilungsberechnung jener Stoffe. Mit dem Ziel eine entsprechende Funktionalität bereitzustellen, entwickelt das Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK) am Karlsruher Institut für Technologie (KIT) in Kooperation mit dem DWD die Modellerweiterung ART (Rieger et al., 2015). Diese Erweiterung basiert auf dem Modell COSMO-ART.

Die Anbindung von ART an das meteorologische Modell ICON findet über eine Schnittstelle statt, welche die ART-Module aufruft und den Datenaustausch steuert. Selbst mit der Erweiterung zu ICON-ART kann das Modell ICON unabhängig von ART betrieben werden. Im Folgenden wird

die Funktionsweise von ICON-ART nach Rieger et al. (2015) erläutert (Abb. 3.1).

Die Initialisierung läuft sowohl in ICON und ART nur zu Beginn der Simulation einmal durch. Danach befindet sich die Atmosphäre des meteorologischen Modells im Anfangszustand. Nun folgt die numerische Zeitintegration des Gleichungssatzes (3.1) - (3.4) über den gewünschten Simulationszeitraum. Innerhalb eines Integrationsschritts findet die Berechnung von mehreren meteorologischen Prozessen statt, welche sowohl in ICON als auch in ART eingebaut sind. Die Reihenfolge der Abarbeitung gibt den natürlichen Ablauf bestmöglich wieder.

Als Vegetationsbrandaerosol fließt hier reiner Kohlenstoff (black carbon) bzw. Ruß als Hauptbestandteil in das Modell ein. Dieses Aerosol wird sowohl über eine prognostische Anzahlkonzentration, als auch über eine prognostische Massenkonzentration beschrieben, welche als Normalverteilungen angenommen sind. Über die jeweiligen Mediandurchmesser für die Anzahlkonzentration  $\overline{D}_{0,1}$  und  $\overline{D}_{3,1}$  für die Massenkonzentration, sowie der selben Standardabweichung  $\sigma_1$  definiert der Anwender die Aerosolmode „soot“, wobei als Index „bc“ Verwendung findet.

Die weitere Verbreitungsrechnung der Rußkonzentration  $\Psi_{bc}$  als Spurenstoff führt ICON-ART als massenspezifische Größe durch. Die Größe  $\Psi$  wird allgemein mit einer Reynoldsmittelung dargestellt:

$$\Psi = \widehat{\Psi} + \Psi'' \quad , \quad (3.5)$$

wobei  $\widehat{\Psi}$  das baryzentrische Mittel von der Größe  $\Psi$  darstellt, mit der Dichte als Gewichtungsfaktor:

$$\widehat{\Psi} = \frac{\overline{\rho\Psi}}{\overline{\rho}} \quad . \quad (3.6)$$

Der Querstrich symbolisiert das Reynoldsmittel ( $\overline{\rho}$ ) und die doppelt gestrichene Größe ( $\Psi''$ ) eine Abweichung davon im betrachteten Zeitschritt. Für Ruß ergibt sich  $\Psi_{bc}$  aus dem Verhältnis zwischen der Anzahl- bzw. Massenkonzentration  $N_{bc}$ ,  $M_{bc}$  und der Luftdichte  $\rho$ . Dies eingesetzt in Gleichung (3.6) liefert

$$\widehat{\Psi}_{bc,0} = \frac{\overline{\rho \frac{N_{bc}}{\rho}}}{\overline{\rho}} = \frac{\overline{N_{bc}}}{\overline{\rho}} \quad , \quad (3.7)$$

$$\widehat{\Psi}_{bc,3} = \frac{\overline{\rho \frac{M_{bc}}{\rho}}}{\overline{\rho}} = \frac{\overline{M_{bc}}}{\overline{\rho}} \quad , \quad (3.8)$$

was der baryzentrisch gemittelten Anzahl- und Massenkonzentration entspricht. Die Anzahl- und Massenkonzentration sind proportional zum nullten und dritten Moment der Größenverteilung, wofür der Index  $k = 0, 3$  eingeführt wird.

Das Erstellen einer Flussbilanzgleichung für Konzentrationen  $\widehat{\Psi}_{bc,k}$  enthält alle räumlich und zeitlich darauf einwirkenden Flussgrößen:

$$\frac{\partial (\widehat{\rho\Psi}_{bc,k})}{\partial t} = \underbrace{-\nabla \cdot (\widehat{v}\widehat{\rho\Psi}_{bc,k})}_{(A)} - \underbrace{\nabla \cdot (\overline{\rho v''\Psi_{bc,k}''})}_{(B)} - \underbrace{\frac{\partial}{\partial z} (v_{sed,bc,k}\widehat{\rho\Psi}_{bc,k})}_{(C)} - \underbrace{\Lambda_{bc,k}\widehat{\rho\Psi}_{bc,k}}_{(D)} + E_{bc,k} (+K). \quad (3.9)$$

Dabei stellt  $v_{\text{sed,bc,k}}$  die Sedimentationsgeschwindigkeit der Rußpartikel dar,  $\Lambda_{\text{bc}}$  den Koeffizient für die Auswaschung.  $E_{\text{bc}}$  beschreibt den Emissionsfluss, welcher aus der Emissionsparametrisierung in Abschnitt 3.4 folgt und für einen Rußeintrag in die verschiedene Atmosphärenschichten sorgt. Der Term  $K$  beschreibt allgemein die zeitliche Änderung, die durch subskalige konvektive Prozesse entstehen. (Abschnitt 3.2.5).

### 3.2.1 Advektion

Der Term (A) in Gleichung (3.9) beschreibt die zeitliche Änderung der Rußkonzentration durch Advektion. Eine effektive und genaue numerische Lösung dieses dreidimensionalen Transports erweist sich als schwierig. Eine Verbesserung erzielt das Aufteilen in einen horizontalen und in einen vertikalen Transport:

$$(A) = -\nabla \cdot (\widehat{v} \widehat{\rho} \widehat{\Psi}_{\text{bc}}) = - \left( \nabla_{\text{H}} \cdot (\widehat{\rho} \widehat{\Psi}_{\text{bc}} \widehat{v}_{\text{H}}) + \frac{\partial}{\partial z} (\widehat{\rho} \widehat{\Psi}_{\text{bc}} \widehat{w}) \right) \quad , \quad (3.10)$$

worin  $v_{\text{H}} = (v_{\text{t}}, v_{\text{n}})$  der horizontalen Windvektor ist und  $\nabla_{\text{H}} = (\partial_{\text{tan}}, \partial_{\text{n}})$  die partiellen Ableitungen in tangentialer und normaler Richtung beschreiben. Die diskrete Berechnung der jeweiligen Advektionskomponenten pro Zeitschritt erfolgt mit unterschiedlichen Verfahren. Die Gleichung für die horizontale Advektion löst ICON mit einem Finite-Volumen Flussform Semi-Lagrange Schema. Dieses integriert alle horizontalen Flüsse über das gesamte Zellvolumen, wobei es durch Rückwärtstrajektorie die Herkunft eines finiten Volumens bestimmt und so auf dessen ursprüngliche Anzahlkonzentration schließt. Die vertikale Massenverteilung innerhalb einer Gitterzelle nähert die Methode (Piecewise Parabolic Method) nach Colella und Woodward (1984) mit einer Parabel an. Anhand dieser Verteilungen und mittels Rückwärtstrajektorie erfolgt die Bestimmung der vertikalen Advektion über die räumliche Integration aller Massenflüsse durch eine Zelle. Dieses Schema weist auch bei Courant-Zahlen größer als eins eine hohe Stabilität auf.

### 3.2.2 Sedimentation

Ein Vergleich zwischen dem Term (C) aus Gleichung (3.9) und dem vertikalen Advektionsteil in Gleichung (3.10) zeigt eine große Übereinstimmung. Sie unterscheiden sich lediglich in der verwendeten Geschwindigkeitskomponente. Somit bietet sich aufgrund dieser Ähnlichkeit eine gleiche Behandlung der Sedimentation, wie die der vertikalen Advektion an. Einziger Unterschied bei der Sedimentationsberechnung besteht in der Verwendung einer charakteristischen Sedimentationsgeschwindigkeit  $v_{\text{sed,bc}}$  anstatt der vertikalen Windkomponente  $w$ . Nach Binkowski und Shankar (1995) berechnet sich diese Sedimentationsgeschwindigkeit für polydisperse Aerosole basierend auf

$$v_{\text{sed,bc}} = \left[ \frac{g}{18\nu} \left( \frac{\rho_{\text{bc}}}{\rho_{\text{air}}} \cdot D_{\text{bc}}^2 \right) \right] \cdot C_{\text{c,bc}} \quad . \quad (3.11)$$

Die verwendeten Größen stellen die Dichte eines Rußpartikel  $\rho_{\text{bc}}$  dar, die Luftdichte  $\rho_{\text{air}}$ , der Rußpartikeldurchmesser  $D_{\text{bc}}$ , die Erdbeschleunigung  $g$  und die Viskosität von Luft  $\nu$ . Der dimensi-

onslose Cunningham Korrekturfaktor  $C_{c,bc}$  hängt von der mittleren freien Weglänge von Luft  $\lambda_{air}$  und vom Partikel- bzw. Rußpartikeldurchmesser  $D_{bc}$  wie folgt ab (Rieger et al., 2015):

$$C_{c,bc} = 1 + 1.246 \cdot \left( \frac{2 \cdot \lambda_{air}}{D_{bc}} \right) \quad . \quad (3.12)$$

Das Gemisch aus Aerosolen und Luftmolekülen wird als reines Gas aus Luftmolekülen angenähert. Die entsprechende mittlere freie Weglänge  $\lambda_{air}$  ist abhängig von dem Stoßquerschnitt  $\sigma_{air}$  der beteiligten Luftmoleküle und von der Dichte  $\rho_{air}$  des Gases. Die Luft als ideales Gas genähert zeigt die Abhängigkeit der Dichte vom Luftdruck  $p$  und der Temperatur  $T$ , mit  $R$  als ideale Gaskonstante für trockene Luft :

$$\lambda_{air} = \frac{1}{\sigma_{air} \cdot \rho_{air}} = \frac{R \cdot T}{\sigma_{air} \cdot p} \quad \text{mit} \quad \rho_{air} = \frac{RT}{p} \quad . \quad (3.13)$$

Das Einsetzen von typischen Werten für die Atmosphäre von  $T = 293.15\text{K}$  und  $p = 1013\text{hPa}$  in die Gleichung (3.13) ergibt eine Referenzweglänge  $\lambda_0$ . Die Normierung der freien Weglänge mit dieser Referenzweglänge unter der Annahme, dass die Luftmoleküle als monodisperse Partikel konstante und gleiche Stoßquerschnitte besitzen ( $\sigma_{air} = \sigma_0$ ), liefert

$$\frac{\lambda_{air}}{\lambda_0} = \frac{RT}{\sigma_{air} p} \cdot \frac{\sigma_0 p_0}{RT_0} = \frac{p_0 T}{p T_0} \quad \Rightarrow \quad \lambda_{air} = \lambda_0 \cdot \frac{p_0 T}{p T_0} \quad . \quad (3.14)$$

Hierbei nehmen  $p$  und  $T$  die aktuellen Werte des Luftpakets an, was dem Luftdruck und der Temperatur der betrachteten Gitterzelle entspricht.

Über den Durchmesser  $D_{bc}$  findet die Betrachtung als Größenverteilung für die Anzahl und Masse statt, woraus zwei momentenabhängige Zusatzterme entstehen.

Mit der Sedimentationsgeschwindigkeit ergibt sich ein Konzentrationsfluss, wessen vertikale Konvergenz (negative Divergenz) Term (C) in Gleichung (3.9) beschreibt.

### 3.2.3 Turbulente Diffusion mit trockener Deposition

Turbulente Durchmischung sorgen für subskalige Änderungen von Spurenstoffen, welcher in die Flussbilanzgleichung im Term (B) als dreidimensionaler Stofffluss eingeht. Das in ICON eingesetzte Turbulenzschema nach Raschendorfer (2001) verwendet die Vertikalkomponente der turbulent kinetischen Energie (TKE):

$$-\overline{w''\Psi''} = C_h^d |\vec{v}_h| \left( \widehat{\Psi}_a - \widehat{\Psi}_s \right) \quad . \quad (3.15)$$

Dieser Term beschreibt einen Oberflächenfluss von Spurenstoffen, welcher beeinflusst wird von dem turbulenten Wärmeübertragungskoeffizienten  $C_h^d$ , dem Betrag des horizontalen Windfelds  $|\vec{v}|$  und einem vertikalen Gradienten der Massenkonzentration. Jener Gradient wird angenähert über die Massenkonzentration  $\widehat{\Psi}_s$  an der Oberfläche und der Konzentration  $\widehat{\Psi}_a$  in der untersten Atmosphärenschicht, welche im Zentrum der Gitterzelle definiert ist. Den Wert für  $\widehat{\Psi}_a$  berechnet ICON-ART bereits aus der Behandlung von Ruß als Spurenstoff. Mit der Parametrisierung der

trockenen Deposition über die Depositionsgeschwindigkeit  $v_{\text{dep}}$  und die Rauheitslänge  $z_0$  stellt sich der Oberflächenfluss für Partikel aus Gleichung (3.15) auch dar als

$$-\overline{w''\Psi''} = v_{\text{dep}} \cdot \widehat{\Psi}(z_R) \quad \text{mit} \quad z_R = 10 \cdot z_0 \quad . \quad (3.16)$$

Die Depositionsgeschwindigkeit  $v_{\text{dep}}$  berechnet sich nach Binkowski und Shankar (1995). Durch Gleichsetzen der Gleichungen (3.15) und (3.16) ergibt sich die gesuchte Oberflächenkonzentration aus den bekannten Größen zu

$$\widehat{\Psi}_s = \widehat{\Psi}_a \cdot \left( \frac{1 - \frac{v_{\text{dep}}}{C_h^d |\overline{v_H}|} \frac{2z_R}{\Delta z}}{1 + \frac{v_{\text{dep}}}{C_h^d |\overline{v_H}|} \left(1 - \frac{2z_R}{\Delta z}\right)} \right) \quad . \quad (3.17)$$

Dabei beschreibt  $\Delta z$  die Höhe der unteren Modellschicht. Diese Anzahlkonzentration an der Erdoberfläche eingesetzt in Gleichung (3.15) ermöglicht die Berechnung des Oberflächenflusses  $-\overline{w''\Psi''}$ , welcher dadurch für die Turbulenzberechnung zur Verfügung steht.

### 3.2.4 Nasse Deposition

Einer der effektivsten Senkprozesse für Rußpartikel stellt die nasse Deposition (engl. washout) durch Niederschlag dar. In der Bilanzgleichung (3.9) taucht dieser Prozess in Flussform in Term (D) auf:

$$(D) = -\Lambda_{bc} \cdot \bar{\rho} \cdot \widehat{\Psi}_{bc} \quad . \quad (3.18)$$

Der daraus resultierende Fluss ist ein mit dem Auswaschkoeffizienten  $\Lambda_{bc}$  gewichteter Anteil der bestehenden spezifischen Rußpartikelkonzentration  $\Psi_{bc}$ . Dabei weist der Auswaschkoeffizient im Allgemeinen unterschiedliche Werte bei verschiedenen Aerosolen auf. In dieser Parametrisierung wird für den Niederschlag nur Regen angenommen. Treffen fallende Regentropfen mit dem Durchmesser  $D_r$  auf Vegetationsbrandaerosole mit dem Durchmesser  $D_{bc}$ , so beschreibt die Kollisions-effektivität  $E(D_r, D_{bc})$  den Anteil der Aerosole, welcher mit den Regentropfen kollidiert. Mit den zusätzlichen Näherungen, dass Regentropfen monodispers sind und dass sowohl die Durchmesser als auch die Endfallgeschwindigkeit  $w(D_r)$  der Regentropfen wesentlich größer sind, als die der Aerosole, folgt

$$\Lambda_{bc} = \frac{3}{2} \frac{E(D_r, D_{bc}) \cdot R}{\rho_w \cdot D_r} \quad . \quad (3.19)$$

Hierbei bezeichnet  $\rho_w$  die Dichte von Wasser und  $R$  die Regenintensität:

$$R = \frac{\pi}{6} D_r^3 w(D_r) N_r \rho_w \quad . \quad (3.20)$$

Der Faktor  $N_r$  beschreibt die totale Anzahlkonzentration der Regentropfen mit der Näherung, dass alle einen konstanten Durchmesser von  $D_r = 5 \times 10^{-4} \text{ m}$  besitzen. Für die Vegetationsbrandaerosole werden Durchmesser von  $D_{bc} > 1 \mu\text{m}$  angenommen. Die Kollisionseffektivität solcher Regentropfen und Aerosole ergibt  $E(D_r, D_{bc}) \approx 1$ . Das bedeutet, dass ein Regentropfen mit nahezu allen Vegetationsbrandaerosolen in seiner Falllinie kollidiert. All diese Annahmen vereinfachen Gleichung (3.19) zu

$$\Lambda_{bc} \approx 3 \cdot R \quad . \quad (3.21)$$

Die Regenintensität für konvektive und skalige Niederschlagsereignisse berechnet ICON als diagnostische Größen. Die Summe daraus ergibt die hier gewünschte gesamte Regenintensität  $R$ . Der Auswaschkoeffizient aus Gleichung (3.21) in die Gleichung (3.18) eingesetzt liefert den gesuchten Massenfluss durch Auswaschungsprozesse.

### 3.2.5 Konvektion

Die Konvektion als zusätzlicher Antrieb regt eine vertikale Durchmischung oder weitere Transportprozesse der Rußkonzentrationen bzw. Hydrometeore an (Term  $K$  in Glg. (3.9)). Bei horizontalen Gitterpunktabständen von  $\Delta x \lesssim 1$  km verfügt das Modell über die nötige Auflösung, um die konvektiven Prozesse mit typischer Skalenweite von  $\Delta x_{\text{conv}} \approx 1$  km direkt abzubilden. Der Term  $K$  taucht dann in Gleichung (3.9) nicht auf. Bei größeren Gitterpunktabständen  $\Delta x \gg 1$  km löst das Modell die konvektiven Prozesse nicht auf, da diese dann subskalige Prozesse darstellen. Der Einfluss der kleinräumigen Bewegungen auf die Rußkonzentration ist über die Zeit jedoch nicht vernachlässigbar. Daher stellt eine Konvektionsparametrisierung nach Bechtold et al. (2008) für diese Fälle den zusätzlichen Advektionsterm bereit. Bei der Betrachtung von Spurenstoffen wird als Auslöser von Konvektion nur die hochreichende und flache Konvektion betrachtet.

## 3.3 Zwei-Momenten-Schema

In dieser Arbeit wird ein erweitertes Mikrophysikschema verwendet, um die Wolkenmikrophysik darzustellen. Die Reihenfolge der Berechnung erfolgt in ICON-ART in vier Schritten, welche im Folgenden näher erläutert werden (vgl. dazu 3.2).

### 3.3.1 Mikrophysik

Für die Beschreibung der mikrophysikalischen Prozesse und den daran beteiligten Hydrometeoren stehen sogenannte Momenten-Schemas zur Verfügung. Das in diesem Modellsetup eingesetzte Zwei-Momenten-Schema erweitert das dritte Moment der Größenverteilung  $f(D)$  um das nullte Moment:

$$N = \int_0^{\infty} f(D) dD \quad , \quad (3.22)$$

$$L = \frac{\pi \rho_w}{6} \int_0^{\infty} f(D^3) dD \quad . \quad (3.23)$$

$N$  entspricht der Anzahlkonzentration und  $L$  der Massenkonzentration aller Hydrometeore. Über die zusätzliche Information der Anzahl können die Prozesse der Hydrometeore explizit berechnet werden, sowohl Flüssigphase als auch die Eisphase und ihre Übergänge. ICON-ART verwendet dieses Zwei-Momenten-Schema ebenfalls für die Darstellung der Spurenstoffe und deren Interaktion mit den Hydrometeoren. Das darin umgesetzte Schema basiert auf Seifert und Beheng (2006) und Noppel et al. (2010). Es berücksichtigt sechs Hydrometeorarten: Regentropfen, Wolkentropfen, Eispartikel, Schnee, Graupel und Hagel. Mit der jeweiligen Massen- und Anzahlkonzentration ergeben sich 12 zusätzliche prognostische Modellvariablen.

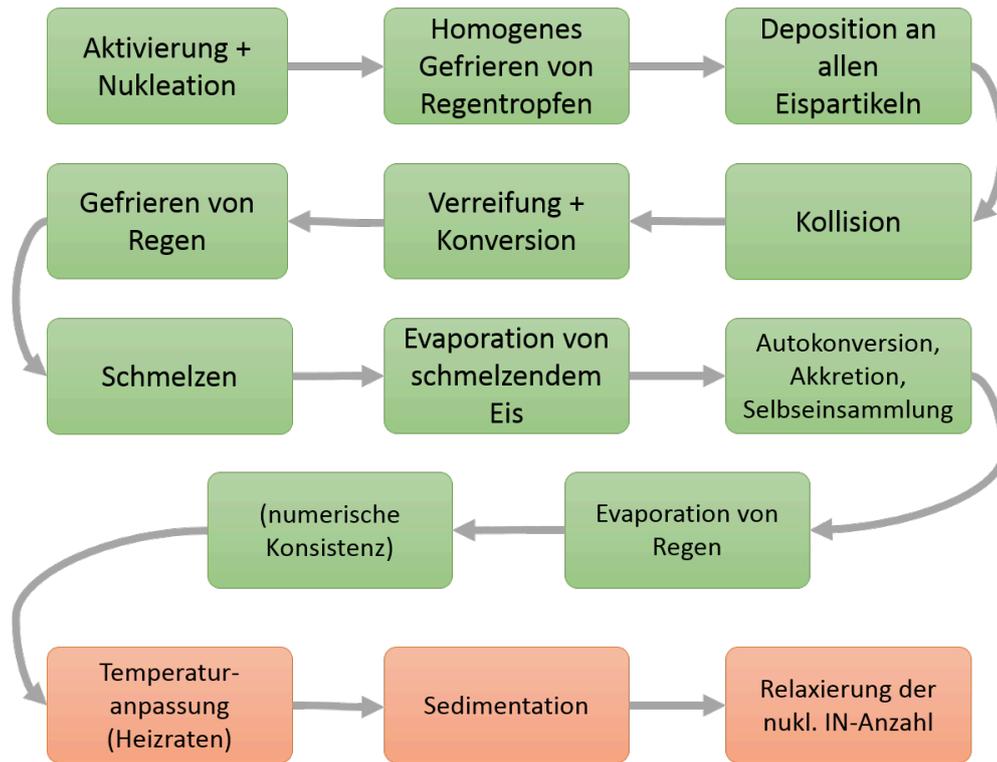


Abbildung 3.2: **Zwei-Momenten-Schema in ICON-ART.** Ablauf der Berechnungen unterteilt in den Hauptteil Mikrophysik (grün) und drei nachgelagerten Prozessen (orange).

Aus der Anzahlkonzentration und Massenkonzentration folgt eine mittlere Masse  $\bar{x}$  der betrachteten Partikel aus

$$\bar{x} = \frac{L}{N} \quad . \quad (3.24)$$

Bei ungünstiger Konstellation von  $N$  und  $L$  ergäben sich unrealistische Massen, was durch die Definition von Grenzwerten unterbunden wird.

Nach allen mikrophysikalischen Prozessparametrisierungen findet eine Plausibilitätsprüfung der berechneten Hydrometeoranzahlen statt, damit keine unphysikalisch kleinen und großen Hydrometeore entstehen. Hierfür werden Minimal- und Maximalpartikelmassen  $x_{\min}$  bzw.  $x_{\max}$  definiert und über die Massenkonzentration  $q$  eine Minimal- und Maximalanzahlkonzentration  $n_{\min}$  bzw.  $n_{\max}$  gesetzt: z.B. für Regentropfen:

$$n_{\text{rain},\min} = \min\left(n_{\text{rain}}, \frac{q_{\text{rain}}}{x_{\text{rain},\min}}\right) \quad \text{mit} \quad x_{\text{rain},\min} = 4.2 \times 10^{-15} \text{ kg} \quad (3.25)$$

$$n_{\text{rain},\max} = \max\left(n_{\text{rain}}, \frac{q_{\text{rain}}}{x_{\text{rain},\max}}\right) \quad \text{mit} \quad x_{\text{rain},\max} = 4.2 \text{ kg} \quad (3.26)$$

### Warmphase

Nach Seifert und Beheng (2006) erfolgt zum besseren Verständnis eine Darstellung der Formeln in Form von Dichten anstatt in Massenmischungsverhältnissen.

Zu der Warmphase zählen zwei Hydrometeorarten: Wolkentropfen (Index  $i = c$ ) und Regentropfen (Index  $i = r$ ). Eine abgeleitete fest definierte Tropfenmasse  $x^* = 2.6 \times 10^{-10} \text{ kg}$  bzw. ein entsprechender Radius  $r^* = 40 \mu\text{m}$  trennt das kontinuierliche Flüssigwasserspektrum  $f_w$  in ein Wolken-

tropfenspektrum  $f_c$  und Regentropfenspektrum  $f_r$ . Für die Momente der Anzahldichte  $k = 0$  und Massendichte  $k = 1$  teilt sich das Spektrum der Größenverteilung abhängig der Masse auf in:

$$\text{Wolken:} \quad M_c^k = \int_0^{x^*} x^k f_w(x) dx = \int_0^\infty x^k f_c(x) dx \quad , \quad (3.27)$$

$$\text{Regen:} \quad M_r^k = \int_{x^*}^\infty x^k f_w(x) dx = \int_0^\infty x^k f_r(x) dx \quad . \quad (3.28)$$

Das Budget der absolut zeitlichen Änderung dieser partiellen Momente ergeben alle Quell- und Senkenprozesse  $S_i^k$ , welche im Falle von reiner Warmphase die Nukleation, Kondensation, Evaporation, Kollision, Koaleszenz und Aufplatzen sind. Da es sich um kein lagrangesches Modell, sondern um ein eulersches Modell mit festem Raumgitter handelt, teilt sich  $\frac{dM_i^k}{dt}$  in mehrere Terme auf:

$$\frac{dM_i^k}{dt} = S_i^k = \frac{\partial M_i^k}{\partial t} + \underbrace{\Delta_H \cdot (\vec{v}_H M_i^k)}_{\text{Advektion}} - \underbrace{\Delta_H \cdot (K_h \Delta M_i^k)}_{\text{turbulenter Fluss}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_{\text{sed},i,k} M_i^k)}_{\text{Sedimentation}} \quad . \quad (3.29)$$

Dabei bezeichnet  $\vec{v}_H$  den mittleren Horizontalwind,  $\bar{v}_{\text{sed},i,k}$  die mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit der Hydrometeore  $\bar{v}_{\text{sed},i,k}$ ,  $\Delta_H = (\partial_x, \partial_y)$  und  $K_h$  den turbulent Diffusionskoeffizient für Wärme, welcher hier als Näherung für die Bewegung der Hydrometeore gilt. Alle Terme ergeben sich aus anderen Modellvariablen, bis auf die lokal zeitliche Änderungen der Momente und die Sedimentationsgeschwindigkeit. Diese werden über die einzelnen mikrophysikalischen Prozesse explizit als Raten berechnet.

Die Aktivierung, als Entstehung von Wolkentropfen aus Wasserdampf und vorhandenen löslichen Aerosolen (hier: Meersalz), stellt einen wesentlichen Prozess in dem Zweimomentenschema dar, welcher in Nenes und Seinfeld (2003); Fountoukis und Nenes (2005) auf der Köhlertheorie aufbaut. Sobald der Tropfendurchmesser den kritischen Durchmesser überschreitet und bei ausreichender Übersättigung weiter anwächst, ist er aktiviert. Die Anzahl an aktivierten Aerosolen  $N_d$ , welche als neue Wolkenkondensationskeime dienen, folgt im Grunde aus einem sogenannten CCN-Spektrum  $F^s$  und der maximalen Übersättigung  $s_{\text{max}}$ :

$$N_d = F^s(s_{\text{max}}) \quad . \quad (3.30)$$

Das CCN-Spektrum stellt eine Verbindung zwischen der Anzahlverteilung der Aerosole und der entsprechenden kritischen Übersättigung nach der Köhlertheorie dar. Angenommen der Prozess läuft in einem aufsteigenden Luftpaket ab, folgt aus der Vertikalgeschwindigkeit eine Kühlrate, welche die maximal mögliche Übersättigung steuert. Wolkentropfenbildung findet entweder in einer (neuen) Wolke statt oder an der Wolkenbasis, wo durch Konvektion und Turbulenz die Wolkentropfen eingetragen werden. Nach Bangert (2012) wird je nach Fall eine unterschiedliche Nukleationsrate berechnet, welche in die weitere Mikrophysik einfließt. Erst beim Vorliegen des benötigten Temperaturbereichs von  $223\text{K} < T < 323\text{K}$ , von vorhandenem Wolkenwasser und einem Aufsteigen an der Wolkenbasis läuft der Aktivierungsprozess ab. Sobald eine dieser Umgebungsbedingungen nicht zu trifft, wird eine konstante Wolkentropfenanzahl von  $200 \times 10^6 \# \text{m}^{-3}$  vorgegeben.

Das Aktivieren von unlöslichen Aerosolen findet durch Adsorption statt, welche durch die FHH-Theorie nach Kumar et al. (2009) parametrisiert ist und für die Wasseraktivität  $\alpha_w$  folgt

$$\alpha_w = \exp\left(-A_{\text{FHH}} \cdot \Theta^{-B_{\text{FHH}}}\right) \quad , \quad (3.31)$$

wobei  $A_{\text{FHH}}$  und  $B_{\text{FHH}}$  empirisch bestimmte Parameter darstellen.  $\Theta$  ist ein Maß für die Menge an angelagertem Wasser und hängt vom Partikeldurchmesser ab. Je größer der Durchmesser, desto größer ist die Wasseraktivität des Aerosols. Aus der Wasseraktivität folgt die kritische Übersättigung  $s_{\text{max}}$  an diesen benetzten Partikeln für nicht ideale Lösungen:

$$s_{\text{eq,fhh}} = \left(\frac{4\sigma_{\text{v,w}}M_w}{RT\rho_w D}\right) \left(-A_{\text{FHH}} \cdot \Theta^{-B_{\text{FHH}}}\right) \quad , \quad (3.32)$$

vergleichbar zu (2.4).

In einer Atmosphäre, frei von jeglichen prognostischen aktivierbaren Aerosolen wäre nur homogene Kondensation möglich. Die Annahme einer ständigen Hintergrundkonzentration entspricht jedoch eher den realen Gegebenheit. Für den Aktivierungsprozess wird hier ein „extrem maritimes“ Szenario gewählt, falls eine zu geringe Anzahlkonzentration ( $N_i \geq 1000 \# \text{m}^{-3}$ ) von aktivierbaren prognostischen Aerosolen (Meersalz) vorliegt. Dieses Hintergrundprofil entspricht einem löslichen Aerosol mit einer konstanten Anzahlkonzentration von  $N_{\text{background,CCN}} = 100 \times 10^6 \# \text{m}^{-3}$  und einem Durchmesser von  $D_{\text{background,CCN}} = 0.08 \mu\text{m}$ .

Das Anlagern von Wasserdampf auf bereits bestehenden Wolkentropfen berücksichtigt ebenfalls der Aktivierungsprozess, wobei die bestehenden Tropfen als große Kondensationskeime behandelt werden.

Die Autokonversion beschreibt die Kollision von Wolkentropfen woraus Regentropfen entstehen, wobei für die Wolkentropfen eine  $\Gamma$ -Verteilung und für die Regentropfen eine exponentielle Verteilung als Funktion des Durchmessers angenommen wird. Die Autokonversionsfunktion stellt eine Art innere Zeitskala dar, welche bei einem optimalen Verhältnis zwischen Regen- und Wolkentropfen ihr Maximum hat und für weiter abweichende Durchmesserhältnisse kleinere Werte annimmt.

Bei der Akkretion sammeln fallende Regentropfen weitere Wolkentropfen ein, was von ähnlichen Faktoren wie die Autokonversion abhängt. Allerdings geht hier die Kollisionseffizienz zwischen Wolken- und Regentropfen und eine universelle Akkretionsfunktion ein. Die unterschiedlichen angenommen Verteilungsfunktionen für Wolken- und Regentropfen finden Beachtung.

Fallende Regentropfen sammeln neben Wolkentropfen auch andere Regentropfen ein. Im Gegensatz zu den vorigen Prozessen bleiben die Tropfen jedoch in der selben Hydrometeorart. Für Regentropfen bestimmt sich die Einsammelrate aus der Kollisionseffizienz, einem Dichtekorrekturen, der Massdichte von Regentropfen und der Autokonversionsrate für die Anzahldichte.

Bei starken konvektiven Aufwinden bzw. starken Niederschlägen platzen bei einer Kollision die Regentropfen auf und bilden mehrere kleinere Regentropfen. Die Größenverteilung der neu ge-

bildeten Regentropfen nähert sich einem Gleichgewicht an, welches nur von dem Wolkenwassergehalt abhängt. Die hier bestimmte Aufplatzrate beschreibt die Annäherung an den konstanten mittleren Gleichgewichtsdurchmesser, abhängig vom Größenunterschied der beteiligten Regentropfen und der Selbsteinsammelrate.

Um ausfallende Hydrometeore zu quantifizieren bedarf es der expliziten Bestimmungen ihrer Sedimentationsgeschwindigkeit. Über das Tropfengrößenspektrum gemittelt ergibt sich die Sedimentationsgeschwindigkeit  $\bar{v}_{\text{sed},r,k}$ , gewichtet mit einem reziproken Dichteterm für eine Höhenanpassung. Für die Sedimentationsgeschwindigkeit von Wolkentropfen  $\bar{v}_{\text{sed},c,k}$  muss die Stokes'sche Reibung berücksichtigt werden und die Tropfengrößenverteilung als  $\Gamma$ -Funktion.

Das Verdampfen von Wasser aus der Flüssigphase eines Regentropfens entspricht einem Massenverlust der Flüssigphase. Die Berechnung dieser Massenveränderung für einen Tropfen aus Pruppacher und Klett (1997) wird um die Berücksichtigung einer Massen-/ Anzahlverteilung erweitert.

## Eisphase

Der Begriff „Eispartikel“ umfasst eine Vielzahl an unterschiedlichen Formen gefrorener Hydrometeore, welche hier im Modell Schnee, Wolkeneispartikel, Graupel und Hagel sind. Diese besitzen im Vergleich zu Flüssigwassertropfen eine nichtsphärische Form, z.B. Kristalle, Tetraeder oder Eissäulen. Die Angabe einer möglichst allgemeingültigen Größenverteilung kann nur näherungsweise gelingen. Als Parametrisierung dient hier ein Potenzgesetz, welches den maximalen Durchmesser  $D$  über die Partikelmasse  $x$  bestimmt:

$$D(x) \approx a \cdot x^b \quad . \quad (3.33)$$

Dabei liefern  $a$  und  $b$  die Form der Verteilungskurve.

Der Lebenszyklus solcher Eispartikel wird durch die explizite Beschreibung mehrerer einzelner Prozesse angenähert, welche großteils auf Seifert und Beheng (2006) beruhen:

Die Nukleationsparametrisierung beschreibt das Entstehen von Eispartikeln sowohl durch homogenes als auch heterogenes Gefrieren, welche nach Barahona und Nenes (2009) und Phillips et al. (2013) abgebildet sind. Der Ablauf wird anhand eines vereinfachten Schaubilds in Abbildung 3.3 erläutert.

Die Parametrisierung verfolgt das Ziel die Änderung der Übersättigung über Eis  $s_i$  innerhalb eines aufsteigenden Luftpaktes zu bestimmen. Die durch den Aufstieg bewirkte adiabatische Abkühlung verringert den Sättigungsdampfdruck  $e_{\text{sat}}$ , was zu einer Erhöhung der Übersättigung führt. Dem entgegen wirkt der Kondensationsprozess, welcher den Wasserdampfdruck  $e_i$  der Umgebung senkt und somit die Übersättigung abbaut:

$$S_i = \frac{e_i}{e_{\text{sat}}} \quad , \quad (3.34)$$

$$s_i = S_i - 1 \quad . \quad (3.35)$$

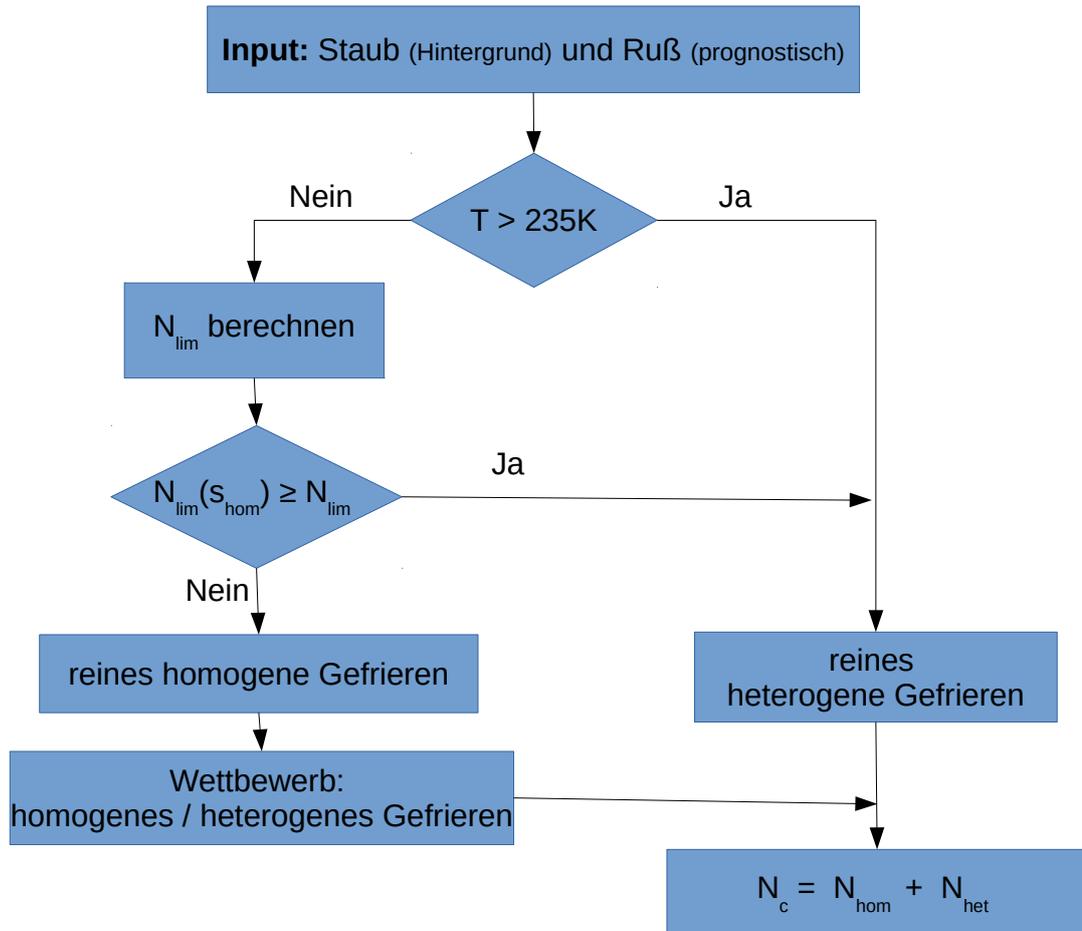


Abbildung 3.3: **Eisnukleation.** Vereinfachter schematischer Ablauf der Eisnukleationsparametrisierung. Grafisch abgeändert nach Barahona und Nenes (2009).

Der Nukleationsprozess hängt zum einen von den atmosphärischen Gegebenheiten Druck, Temperatur und Volumen des betrachteten Luftpakets ab, zum anderen von den Eigenschaften (Anzahl, Größenverteilung, (Übersättigungs-)Gefrierschwelle  $s_h = 0.3$ ) der darin befindlichen Aerosole und Eispartikel. Liegen flüssige Aerosole vor, so kommt es zu homogenem Gefrieren, sobald bei niedrigen Temperaturen ( $T < T_{\text{hom}} = 235 \text{ K}$ ) eine kritische Übersättigung  $s_{\text{hom}}$  überschritten wird. Da dieser Gefriervorgang sehr schnell abläuft, erfolgt eine Parametrisierung zur Bestimmung der Anzahl an frisch nukleierten Eispartikeln.

Bei Temperaturen höher als  $T_{\text{hom}}$  findet ausschließlich heterogenes Gefrieren statt, was jedoch das Vorhandensein von eisaktiven Aerosolen erfordert. Die Parametrisierung von Phillips et al. (2013) berücksichtigt bereits unlöslichen Ruß als Eiskeim, neben Staub und organischen Aerosolen. Diese Rußmode wird hier für die Vegetationsbrandaerosole verwendet, in welche die Anzahl, der Mediandurchmesser und die Standardabweichung der Rußmode eingehen. Allerdings gefrieren nicht sofort alle Aerosole, daher beschränkt eine definierte Gefriereffizienz von  $\epsilon_{\text{IN}} = 5\%$  die tatsächlich Anzahl der Aerosole, welche während einem Zeitschritt zu Eiskeimen nukleieren. Dies repräsentiert ein gewisses stochastisches Verhalten des Prozesses. In der Parametrisierung hängt die Anzahl der heterogen nukleierten Eiskeime  $N_{\text{het}}$  im Weiteren nur von der maximal möglichen

Tabelle 3.1: **Hintergrundkonzentrationen für Eisnukleation** Verteilungsparameter der Staubmoden  $i$ : Anzahlmediandurchmesser  $D_i$ , Standardabweichung  $\sigma_i$ .

Mode	$D_{\text{background},i}$	$\sigma_{\text{background},i}$
Dust 1	$0.2 \mu\text{m}$	1.7
Dust 2	$0.4 \mu\text{m}$	1.6
Dust 3	$0.6 \mu\text{m}$	1.5

Übersättigung  $s_{\text{max}}$  ab. Diese typische Zeitskala löst ICON-ART auf, weshalb  $s_{\text{max}}$  direkt berechnet wird. (Phillips et al., 2013; Rieger, 2017)

Überschreitet die vorhandene Eiskeimanzahl im Temperaturregime für homogenes Gefrieren eine kritische Anzahl  $N_{\text{lim}}$ , so findet hauptsächlich heterogenes Gefrieren statt. Grund hierfür ist eine geringere notwendige Übersättigung  $N_{\text{het}}(s_{\text{hom}})$  als bei homogenem Gefrieren. Dies hat zur Folge, dass kein homogenes Gefrieren zustande kommt, trotz homogenem Temperaturregime.

Bleibt allerdings die Eiskeimanzahl unter diesem Limit, findet zusätzlich homogenes Gefrieren statt und beide Gefrierprozesse konkurrieren miteinander um den vorhandenen Wasserdampf. Unter rein homogenen Bedingungen ergibt sich die Eispartikelanzahl  $N_{\text{hom}}$  aus der Änderung einer Anfangskonzentration  $N_0$  durch eine sogenannte Tropfengefrierrate  $f_{c,\text{hom}}$ . Um ebenfalls stattfindendes heterogenes Gefrieren abzubilden, wird  $f_{c,\text{hom}}$  um einen zusätzlichen Proportionalitätsfaktor  $c_{\text{het}}$  erweitert, welcher bei nichtvorhandenen Eiskeimen den Wert 1 annimmt und bei vorhanden Eiskeimen Werte zwischen 0 und 1:

$$f_c = f_{c,\text{hom}} \cdot c_{\text{het}} \quad . \quad (3.36)$$

Damit resultiert aus dem homogenen Gefrierprozess die Eispartikelanzahl mit

$$N_{\text{hom}} = N_0 \cdot \exp(-f_c) \cdot (1 - \exp(-f_c)) \quad . \quad (3.37)$$

In die heterogene Nukleation gehen mehrere Größen ein, wobei neben  $s_{\text{max}}$  ebenfalls Effekte aus Expansionsabkühlung und Oberflächenzunahme betrachtet werden. Die Gesamtanzahl an gefrorenen Eispartikeln  $N_c$  bildet die Summe aus beiden Gefrierprozessen:

$$N_c = N_{\text{hom}} + N_{\text{het}}(s_{\text{hom}}) \quad . \quad (3.38)$$

Befindet sich kein prognostisches Aerosol in der Atmosphäre, dann würde bei entsprechenden Umgebungsbedingungen nur homogenes Gefrieren auftreten, welches schnell abläuft und so aller Wasserdampf sofort der Umgebung entzogen wird. Jedoch gilt die Annahme wie bei der Aktivierung, dass sich immer eine gewisse Aerosolkonzentration in der Atmosphäre befindet und für entsprechendes heterogenes Gefrieren sorgt. Da in diesem Modellsetup kein prognostischer Staub simuliert wird, liegt immer eine Hintergrundstaubkonzentration von  $N_{\text{dust},i} = 10 \times 10^6 \# \text{kg}^{-1}$  in drei definierten Moden vor (siehe Tab. 3.1).

Dadurch findet immer ein Wettbewerb zwischen homogenem und heterogenem Gefrieren statt. Sobald prognostische Vegetationsbrandaerosole in Form der Rußmode dazukommt, entsteht ein

zusätzlicher Wettbewerb zwischen Ruß und dem Hintergrundstaub. Da Staub bessere Eiskernungseigenschaften aufweist als Ruß, bedarf es einer entsprechend hohen Anzahlkonzentration an Rußpartikeln, um einen signifikanten Einfluss zu erwirken.

Homogenes Gefrieren von Wolkentropfen berechnet sich aus einem stochastischen Modell mit einer Gefriertrate  $J_{\text{hom}}$ , welche von der Temperatur und der Wasserdichte abhängt. Dieser Prozess verschiebt lediglich die Anzahl- und Massenanteile zwischen der Wolkenphase und der Eispartikelphase. Bei Temperaturen unter  $-50^\circ\text{C}$  gefrieren alle Wolkentropfen instantan.

Das Wachstum von Eispartikeln nach Morrison et al. (2005) durch Wasserdampfdeposition an den Eispartikeln stellt eine Massenzunahme dar, welche von einer allgemeinen Wachstumsform für einen Eispartikel auf eine angenommene  $\Gamma$ -Verteilung der jeweiligen Eispartikelart erweitert wird. Über einen Formparameter geht näherungsweise die geometrische Struktur des Eispartikels als Veränderung des Durchmessers ein.

Die Eispartikel, wie auch alle anderen Hydrometeore, bewegen sich mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten in der Atmosphäre, was zu Kollisionen zwischen ihnen führt und ein Einsammeln bewirkt. Eine allgemeine Betrachtung von kollidierenden Hydrometeoriten findet über sogenannte Kollisionsintegrale statt, welche im Grunde die Änderungen der Anzahlen und Massen zweier Hydrometeorarten  $a, b$  durch Kollision berechnen. Bei einem Zusammenstoß bleibt die Masse über beide Hydrometeore erhalten. Die Kollisionseffizienz  $\overline{E_{ab}}$  beschreibt die Wahrscheinlichkeit, mit welcher die Partikel nach dem Zusammenstoß aneinanderhaften und zu einem Partikel werden ( $\overline{E_{ab}} = 1$ ) oder voneinander abrallen ( $\overline{E_{ab}} = 0$ ). Im Allgemeinen hängt diese Kollisionseffizienz von den Durchmessern der beteiligten Partikeln ab, hier von den massengemittelten Durchmessern. Je nach beteiligten Hydrometeorarten unterscheidet sich die genaue Parametrisierung von  $\overline{E_{ab}}$ . Bei allen Kollisionen wird beim Einsammeln die Masse von Partikel  $b$  zu der Hydrometeorart  $a$  hinzugefügt.

Bei bestimmten Kombinationen der Kollision, auch Verreifung genannt (Flüssigwasser mit Eispartikeln), entsteht jedoch eine neue Hydrometeorart nämlich Graupel. Dieser Übergang wird mit einer Konversionsrate beschrieben. Diese fügt die Masse und Anzahl von der ursprünglichen Eisphase über eine charakteristische Konversionszeit  $\tau_{\text{conv}}$  der Graupelmode hinzu.

Eine ähnliche Konversion findet bei dem Gefrieren von Regentropfen statt, wobei hier je nach Größe des gefrierenden Regentropfens die Konversion zu Hagel, Graupel oder Wolkeneis vollzogen wird.

Ein wesentlicher Verlustprozess von Eispartikeln stellt das Schmelzen und Sublimieren dar. Dieser Prozess wird über einen Eismassenverlust  $dx_i/dt$  parametrisiert, welcher bei Überschreitung der Schmelztemperatur von Eis  $T_{\text{melt}} = 0^\circ\text{C}$  eintritt. Das Temperaturgefälle zwischen  $T_{\text{melt}}$  und der herrschenden Umgebungstemperatur  $T$  stellt die notwendige Energie bereit, um den Phasenübergang einer bestimmten Eismasse zu ermöglichen. Gesteuert durch die Ventilationskoeffizien-

ten für Wärme und Wasserdampf und den geometrischen Eigenschaften der Eispartikel kann der Schmelzterm auch über eine charakteristische Zeit  $\tau_{\text{melt}}$  vereinfacht dargestellt werden:

$$\tau_{\text{melt}} = \frac{x_g}{\frac{dx_i}{dt}} \quad , \quad (3.39)$$

mit  $x_g$  als Masse eines Eispartikels.

Die Anzahl und Masse der schmelzenden Eisphase wird abhängig vom Radius anschließend entweder in die Regentropfenmode oder Wolken Tropfenmode überführt. Somit stellt das Schmelzen ein Quellentem für die Flüssigphase dar. An der nun flüssigen Oberfläche findet wiederum ein Evaporationsprozess statt, welcher wie bei Flüssigtropfen berechnet wird.

### 3.3.2 Temperaturanpassung

Nach den mikrophysikalischen Abläufen stehen die neuen Massen- und Anzahlkonzentrationen aller Hydrometeore fest. Bei den dabei entstandenen Übergängen zwischen einzelnen Phasen wird entweder latente Wärme frei oder der Umgebung entzogen, abhängig von der Massenbilanz der jeweiligen Phase  $\Delta q_{\text{ph}}$ . Der Term  $\Delta T_{2\text{mom}}$  beeinflusst die Umgebungstemperatur  $T$  mit

$$\Delta T_{2\text{mom}} = -\frac{1}{c_p \rho} \cdot L_{\text{subl}} \cdot \Delta q_v + \frac{1}{c_p \rho} \cdot L_{\text{cond}} \cdot \Delta q_l \quad \Rightarrow \quad T_{\text{new}} = T_{\text{old}} + \Delta T_{2\text{mom}} \quad . \quad (3.40)$$

$L_{\text{subl}}$  und  $L_{\text{cond}}$  stellen hier die massenspezifischen Sublimations- und Kondensationswärme dar,  $c_p$  die spezifische Wärmekapazität für Luft.

### 3.3.3 Sedimentation der Hydrometeore

Aus der veränderten Massen- und Anzahlverteilung resultiert folglich eine entsprechende Sedimentation der Hydrometeore, welche mit der gleichen Annäherung parametrisiert werden: eine massen-/anzahlgewichtete mittlere Fallgeschwindigkeit  $\bar{v}_{r,k}$  integriert über alle betrachteten Hydrometeormassen (Index *hyd*):

$$\bar{v}_{\text{hyd},k} = \frac{1}{M_{\text{hyd}}^k} \int_{x^* \approx 0}^{\infty} x^k f_w(x) v_w(x) dx \quad . \quad (3.41)$$

Sowohl die Endfallgeschwindigkeit  $v_w$  als auch die Verteilungsfunktion  $f_w$  unterscheiden sich zwischen den Hydrometeoren.

Für Regentropfen wird eine ICON eigene Sedimentationsroutine verwendet:

$$\bar{v}_{r,k} = -(\alpha_r - \beta_r \cdot \exp(-\mu_k) \cdot \ln(1 + \gamma_r * D_r)) \cdot \exp\left(-0.4 \cdot \ln\left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)\right) \quad . \quad (3.42)$$

Dabei sind  $\alpha_r$ ,  $\beta_r$ ,  $\gamma_r$  und  $\mu_e$  konstante Parameter.

### 3.3.4 Relaxierung der Eispartikelanzahl

Prognostische Aerosole, welche einmal zu Eispartikeln nukleiert sind, sollen im darauffolgenden Zeitschritt nicht nochmals als neue eisaktive Aerosole zur Verfügung stehen. Daher fasst  $n_{\text{IN}}$  die Anzahl aller zu Eis nukleierten Rußaerosole zusammen. Diese Variable wird ebenfalls wie ein

Tabelle 3.2: **Eigenschaften der Vegetationsklassen.** Als zeitkonstante Parameter für die Vegetationsbrandparametrisierung in ICON-ART: minimaler und maximaler Wärmefluss bei Verbrennung  $F_{h,\min}$ ,  $F_{h,\max}$ ; Gewichtungsfaktor für Tagesgang  $w_{\text{veg}}$ . (Werte von Freitas et al. (2006))

Vegetationsklasse	$F_{h,\min}$	$F_{h,\max}$	Verbrennungsanteil während PFA	$w_{\text{veg}}$
Wald	$30 \text{ kW m}^{-2}$	$80 \text{ kW m}^{-2}$	45 %	0.0387
Savanne	$4.4 \text{ kW m}^{-2}$	$23 \text{ kW m}^{-2}$	75 %	0.01754
Grasfläche	$3.3 \text{ kW m}^{-2}$	$3.3 \text{ kW m}^{-2}$	97 %	0.00308

Spurenstoff in ICON-ART mit transportiert. Eine Relaxierung über eine charakteristische Zeitspanne  $\tau_{\text{IN,act}}$  reduziert diese Anzahl pro Modellzeitschritt  $\Delta t$  gegen Null, wodurch eine einfache Senke parametrisiert wird:

$$n_{\text{IN}} = n_{\text{IN}} \left( 1 - \frac{\Delta t}{\tau_{\text{IN,act}}} \right) \quad . \quad (3.43)$$

### 3.4 Behandlung von Vegetationsbränden

Für eine vollständige Abbildung und Simulation der Vegetationsbrände im Atmosphärenmodell dient ein Quellterm dieser Aerosole, welcher über den Emissionsterm  $E_{\text{bc}}$  in die Flussbilanz eingeht. Eine neu implementierte Parametrisierung ermöglicht die Berechnung der entscheidenden Prozesse innerhalb eines Vegetationsbrandes. Die Emissionshöhe stellt eine wesentliche Größe dar, welche diese Parametrisierung liefert. Walter et al. (2016) weisen unter anderem auf die Relevanz der Emissionshöhe hin, da eine Abweichung von der passenden Emissionshöhe zu signifikanten Abweichungen des atmosphärischen Zustands führt.

Die hier verwendete Emissionsparametrisierung basiert auf Freitas et al. (2006, 2007, 2010) und Walter et al. (2016), welche in anderen Atmosphärenmodellen (z.B. COSMO-ART) ebenfalls Anwendung findet.

Grundsätzlich beantwortet die Emissionsparametrisierung die Frage: Wie viel von welchen Substanzen werden wo und wann durch Vegetationsbrände in die Atmosphäre eingetragen?

Abschnitt 2.1 beschreibt bereits entscheidende Faktoren für einen Brandvorgang, welche demnach durch eine Parametrisierung aufgegriffen werden. Allerdings liegt der Schwerpunkt dieser Parametrisierung in der korrekten Darstellung der Rauchfahne, als in der Beschreibung der expliziten Feuerdynamik. Als einen entscheidenden Parameter für das Aufstiegsverhalten der Rauchfahne identifiziert Freitas et al. (2006) zunächst den durch Verbrennung zusätzlich erzeugten Wärmefluss am Boden. Dieser ist abhängig von dem Brandmaterial, dessen Wassergehalt und von den Wetterbedingungen.

Die Parametrisierung teilt sich in zwei Grundlegende Schritte ein 1. die Bestimmung der zeitkonstanten Parameter und 2. die online Berechnung der Rauchfahne.

### 3.4.1 Die Bestimmung der offline Parameter

Bei Vegetationsbränden bestimmt sich das Brandmaterial über den vorliegenden Pflanzenbestand, welcher in ICON-ART aus 18 verschiedenen Vegetationstypen folgt. Für eine vereinfachte Beschreibung werden daraus drei Vegetationsklassen gebildet: Wald, Savanne und Gras. Jeder dieser Klasse wird ein typischer maximaler und minimaler Wärmefluss  $F_{\text{heat,min/max}}$  zugeordnet, welcher bei einer offener Verbrennung freigesetzt wird (siehe Tab. 3.2). Die Angabe eines Minimum- und Maximumwert spiegelt eine gewisse Unsicherheit wieder, da Vegetationsbrände keine homogene Gebilde sind. Sie bestehen meist aus mehreren kleineren Feuern mit verschieden starken Brandherden, welche sich innerhalb von kurzer Zeit in der Intensität verändern können.

Allerdings weist die Variation der Brandintensität einen Tagesgang auf, welcher sein Maximum während der Hauptaktivitätszeit der Feuer (peak fire activity (PFA)) zwischen 10:00 und 15:00 Uhr Ortszeit (engl. local time(LT)) erreicht. Mehrere Erklärungsansätze begründen die Plausibilität dieses Tagesgangs, wie eine trockenere Vegetation am Tage und auch erhöhte Windgeschwindigkeiten in der Grenzschicht. Satellitenmessungen weisen diesen Tagesgang von Vegetationsbränden ebenfalls nach. Als brennende Fläche werden  $A_{\text{burn,max}} = 50 \text{ ha}$  während des Intensitätsmaximum angenommen.

Je nach Vegetationsklasse verbrennt während der PFA ein unterschiedlicher Anteil, gemessen an der gesamten Tagesintensität. Diese Anteile sind in Tabelle 3.2 aufgeführt. Der Verlauf des Tagesgangs  $d(\Delta t)$  beruht auf einer Gauss'schen Normalverteilung mit  $\sigma = 2.5$  und  $t_0 = 12:30 \text{ LT}$ , welche in stündliche Schritte  $\Delta t$  diskretisiert ist. Somit bleibt die simulierte Feuerintensität in jeder Stunde konstant. Um die unterschiedlichen PFA der Vegetationsklassen zu berücksichtigen bedarf es einer Gewichtung, bzw. Verschiebung des Tagesgangs mit dem dimensionslosen Gewichtungsfaktor  $w_{\text{veg}}$ :

$$d(\Delta t) = w_{\text{veg}} + (1 - w_{\text{veg}}) \cdot \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-0.5 \left(\frac{\Delta t - t_0}{\sigma}\right)^2\right) \quad . \quad (3.44)$$

Diesem Tagesgang unterliegen drei Größen: der Wärmefluss  $F_h$ , die verbrennende Fläche  $A_{\text{burn}}$  und die Emissionsmenge  $e_{\text{veg}}$ . In den vegetationsspezifischen Tagesgängen liegen nun zwischen 10 LT und 15 LT der in Tabelle 3.2 aufgeführte Prozentanteil.

Der Tagesgang verteilt lediglich die über einen Tag stattfindende Verbrennungsaktivität. Eine Normierung verhindert einen ungewollten Zusatzfaktor, wobei zwei Normierungen zu unterscheiden sind. Die Wärmeflüsse und die verbrennende Fläche sollen in ihrem Tagesmaximum genau die Werte aus Tabelle 3.2 bzw.  $A_{\text{burn,max}} = 50 \text{ ha}$  annehmen. Daher findet die Normierung auf das jeweilige Maximum statt:

$$d_{h,\text{veg}}(\Delta t) = d_{\text{area,veg}} = \frac{d(\Delta t)}{\max(d(\Delta t))} \quad . \quad (3.45)$$

Die tägliche Emissionsmenge hingegen liegt als Tagessumme vor, weshalb der Tagesgang auf seine Summe bzw. Integral normiert wird:

$$d_{\text{emis,veg}}(\Delta t) = \frac{d(\Delta t)}{\int d(\Delta t)} \quad . \quad (3.46)$$

Die endgültigen Wärmeflüsse, verbrennende Fläche und Emissionsmengen, welche jede Stunde an einem Gitterpunkt in die online Emissionsparametrisierung eingehen, werden anteilig der am Gitterpunkt befindlichen Vegetationsklassen gewichtet. Dadurch geht in zunächst nur zeitkonstante Parameter eine Ortszeitabhängigkeit  $\Delta t$  ein:

$$F_{h,\min}(\Delta t) = F_{h,\min,\text{veg}} \cdot d_{h,\text{veg}}(\Delta t) \quad , \quad (3.47)$$

$$F_{h,\max}(\Delta t) = F_{h,\max,\text{veg}} \cdot d_{h,\text{veg}}(\Delta t) \quad , \quad (3.48)$$

$$A_{\text{burn}}(\Delta t) = A_{\text{burn}} \cdot d_{\text{area,veg}}(\Delta t) \quad , \quad (3.49)$$

$$dc_{\text{emis}}(\Delta t) = e_{\text{veg}} \cdot d_{\text{emis,veg}}(\Delta t) \quad . \quad (3.50)$$

### 3.4.2 online Rauchfahnenmodell

Satellitendaten liefern die Positionen, an welchen Vegetationsbrände simuliert werden. Diese basieren im Prinzip auf der Messung der Oberflächentemperatur im Infrarotbereich. Falls eine große Anomalie in der Oberflächentemperatur, genauer in der Helligkeitstemperatur  $T_4$  des  $4\mu\text{m}$ -Kanals zwischen einem Pixel und seiner Umgebung  $T_{4,b}$  auftritt, wird auf ein potentielles Feuer an diesem Ort geschlossen (Ichoku und Kaufman, 2005). Aus der Differenz leitet sich direkt die Strahlungsenergie des Feuers (fire radiative power, FRP) ab, welche nach Kaufman et al. (1998) näherungsweise proportional zu  $T_4^8 - T_{4,b}^8$  ist. Aus der FRP wird mittels ein Massenfluss der freigesetzten Aerosole abgeleitet.

Polarumlaufende Satelliten haben den Nachteil einer nicht ständigen Abdeckung der gesamten Erdoberfläche. Ebenfalls verhindern Wolken oder dichte Rauchschwaden das Erkennen von Temperaturanomalien an der Erdoberfläche. Kaiser et al. (2012) bereiten die Satellitendaten dahingehend auf, dass Hitzequellen, wie Vulkane, Gasfackeln oder andere bekannte große Hitzequellen herausgefiltert werden. Durch die Verwendung von vorigen Messdaten und eines Kalmanfilters füllen sie die Beobachtungslücken bestmöglich auf. Das so entwickelte Globale Feuer Assimilations System (GFAS) stellt tägliche Datensätze zur Verfügung, welche neben der FRP und der Verbrennungsrate zusätzlich die Emissionsflüsse von 40 Gasen und Aerosolen ableitet. Dieses Satellitenprodukt liefert somit drei wichtige Informationen für das Rauchfahnenmodell bzw. für die Vegetationsbrandparametrisierung: 1. Ort und 2. Zeit der Vegetationsfeuer und 3. den Emissionsfluss von Ruß (BC)  $F_{bc}$  in  $\text{kg s}^{-1} \text{m}^{-2}$ . Nach einer Extrapolation auf das verwendete Modellgitter, stehen die Satellitendaten für das Modell zur Verfügung.

Während der Simulation entspricht jeder Gitterpunkt mit einem Emissionsfluss

$F_{bc} > 0.005 \times 10^{-9} \text{kg s}^{-1} \text{m}^{-2}$  als Vegetationsbrand und führt dort die Berechnung des Rauchfahnenmodells durch.

Das eigentliche Rauchfahnenmodell (plumerise model) berechnet die Ober- und Unterkante der Rauchfahne, welche abhängig vom atmosphärischen Zustand ermittelt werden. Daraus resultiert eine 1D-Vertikalverteilung der Emissionen am aktuellen Gitterpunkt. Als Eingabeparameter verwendet das Rauchfahnenmodell die zuvor berechneten Wärmeflüsse (3.47), (3.48), die brennende Fläche (3.49), den Emissionstagesgang (3.46) und die aktuellen meteorologischen Umgebungsbedingungen aus dem Atmosphärenmodell als Profil der Variablen  $T$ ,  $p$ ,  $u$ ,  $v$  und  $q_v$ . Das Rauchfahnenmodell initialisiert ein eigenes 1D-Box-Modell mit einer konstanten Gitterpunktwei-

te von  $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 100\text{m}$  und 200 vertikalen Schichten. Die Menge der Brandstofflast mit  $10\text{kg m}^{-2}$  und der darin enthaltenen Feuchtanteil von 10% werden als konstant für alle Vegetationsklassen, Tageszeiten und Orte angenommen. Ebenfalls als konstant gilt die beim Verbrennen freigesetzte Energiemenge  $19.3\text{J kg}^{-1}$  in Form von Wärme, um den Auftriebsparameter zu bestimmen.

In dem Box-Modell werden mehrere Effekte berücksichtigt, welche die Höhe der Rauchfahne maßgeblich beeinflussen. Das Vegetationsfeuer wird hier dynamisch durch Freisetzung von Wärme dargestellt, wobei  $F_{h,\text{min,veg}}$  bzw.  $F_{h,\text{max,veg}}$  eingehen. Dies erzeugt an der Erdoberfläche einen zusätzlichen Auftriebsterm. Zusätzlich zur Wärmefreisetzung findet eine Freisetzung der Feuchtigkeit statt, welche in der Brandlast gespeichert ist und an der Umgebungsluft an der Erdoberfläche zugeführt wird. Aus dieser Freisetzung von Wärme und Feuchtigkeit entsteht ein initialer Auftrieb der bodennahen Luft und des ebenfalls vorhandenen Rauchs. Während dem Aufsteigen dieser Luftpakete unterliegen sie sowohl möglichen äußeren Prozessen, als auch intern ablaufenden Vorgängen. Von außen mischt sich turbulent Umgebungsluft ein, welche den Radius der Rauchfahne vergrößert. Desweiteren können starke Umgebungswinde zu einem Abknicken der Rauchfahne führen, was einen weiteren Aufstieg verhindert. Intern finden ebenfalls mikrophysikalische Prozesse statt, wie Kondensation und Vereisung und dabei freiwerdende latente Wärme. Als Kriterium der maximalen Rauchfahnenhöhe gilt das Unterschreiten der Vertikalgeschwindigkeit von  $1\text{m s}^{-1}$  innerhalb der Fahne.

Für jede Vegetationsklasse und deren Wärmeflüsse  $F_{h,\text{min,veg}}$  und  $F_{h,\text{max,veg}}$  erfolgt die Berechnung einer Rauchfahnenober- und unterkante. Anteilig des vorliegenden Bedeckungsanteils der jeweiligen Vegetation resultieren aus einem gewichteten Mittel die endgültigen Rauchfahnenhöhen. Das stellt eine robuste Abschätzung in Bezug auf die atmosphärische Variabilität dar, wobei die Mindestdicke der Rauchfahne bei 100m liegt.

Innerhalb dieser Schicht gilt die Annahme einer kontinuierlichen vertikal parabolischen Verteilung des emittierten Rauchs. Aus einer dimensionslosen Höhenkoordinate  $z^*$ , der tatsächlichen Höhe  $z$ , der Rauchfahnenunterkante  $z_{\text{bot}}$  und Rauchfahnenoberkante  $z_{\text{top}}$  ergibt sich das parabolische Emissionsprofil  $f_{\text{emis}}$  innerhalb der Rauchschiicht mit:

$$f_{\text{emis}} = 6z^* \cdot (1 - z^*) \quad \text{mit } z^* = \frac{z - z_{\text{bot}}}{z_{\text{top}} - z_{\text{bot}}} \quad . \quad (3.51)$$

Das Generieren einer diskreten Gewichtungsfunktion überträgt dieses Emissionsprofil in die Vertikalschichten von ICON-ART, welche im Allgemeinen nicht äquidistant sind. Dies erfordert eine explizite Berechnung der Gewichtungsfunktion für jede Gitterzelle  $k$  in der Vertikalen. Innerhalb einer jeden Gitterzelle, welche sich in der gleichen Höhe wie die Rauchschiicht befindet, wird über das Emissionsprofil integriert. Oberhalb und unterhalb der Rauchfahnenkanten wird keine Rauchemission angenommen und somit nimmt die Gewichtungsfunktion  $W_{\text{emis},k}$  dort den Wert Null an:

$$W_{\text{emis},k} = 0 \quad \text{für } z_k < z_{\text{bot}} \text{ und } z_k > z_{\text{top}} \quad (3.52)$$

$$W_{\text{emis},k} = \int_{z_{\text{bot},k}^*}^{z_{\text{top},k}^*} f_{\text{emis}}(z^*) dz^* \quad \text{für } z_{\text{bot}} < z_k < z_{\text{top}} \quad . \quad (3.53)$$

Daraus folgt eine diskrete vertikale Emissionsrate  $E_{bc,k}$ , welche in (3.9) einfließt:

$$E_{bc,k} = \underbrace{F_{bc}}_{\text{BC Emission}} \cdot \underbrace{W_{emis,k}}_{\text{Rauchfahnenhöhe}} \cdot \underbrace{dc_{emis}}_{\text{Tagesgang}} \cdot \underbrace{\frac{1}{dz_k}}_{\text{Schichtdicke}} \quad (3.54)$$

Somit stehen die Vegetationsbrandaerosole zur im weiteren Verlauf als Modellvariable zur Verfügung.



# 4 Ferntransport kanadischer Waldbrandaerosole nach Deutschland

Nach der Erarbeitung der theoretischen Grundlagen über die Vegetationsbrände und die modellhafte Beschreibung der Meteorologie folgt die erste Modellstudie, welche Auswirkungen der starken kanadischen Waldbrände im Jahr 2017 über Europa untersucht.

## 4.1 Einführung und synoptische Situation

Auf dem nordamerikanischen Kontinent zählen Vegetationsbrände zu jährlich wiederkehrenden Ereignissen, welche auf die Menschen und Umwelt einwirken. Vegetationsbrände haben ein enormes Zerstörungspotential, was neben der verbrannten Vegetationsfläche auch in einer Versicherungssumme gemessen werden kann. Nach MunichRE (2018) verursachten die Waldbrände im Norden Kaliforniens allein im Jahr 2017 eine geschätzte Gesamtschadenssumme von über zehn Milliarden US-Dollar und es kamen 222 Menschen ums Leben. Die Brände treten verstärkt in den Sommermonaten von April bis September auf.

In Kanada werden durchschnittlich jedes Jahr 7.500 Waldbrände auf einer Fläche von 2.400 km<sup>2</sup> erfasst, was 0.7% der gesamten Waldfläche Kanadas entspricht (Natural Resources Canada, 2017). Im Jahr 2017 lag die verbrannte Fläche über dem Durchschnitt bei 3.400 km<sup>2</sup> (Natural Resources Canada, 2018). Gemessen an der verbrannten Fläche, den verursachten Brandbekämpfungskosten und der Anzahl an evakuierten Personen zählt das Jahr 2017 in der kanadischen Provinz Britisch-Kolumbien zu den Jahren mit der stärksten Waldbrandaktivität. In diesem Gebiet entwickelten sich mehrere Pyro-Cumulonimben, welche Mitte August nachweislich große Mengen an Waldbrandaerosolen bis in die Stratosphäre transportierten, vergleichbar mit einem Vulkanausbruch mittlerer Stärke (Peterson et al., 2018).

Die Entstehung einer solch intensiven Waldbrandaktivitäten erfordert eine vor den eigentlichen Waldbränden einsetzende und länger anhaltende Trocken- und Warmphase, beginnend in den Monaten April/Mai. Die Verifikation der 3-Monatsvorhersagen in Abbildung 4.1(a) weist im westlichen Landesteil auf einen überdurchschnittlich warmen (rot) Frühjahr und Sommer 2017 hin. Zusätzlich blieb der Niederschlag in weiten Teilen eher durchschnittlich bis unterdurchschnittlich (weißer und blauer Bereich), was auf eine Trockenperiode schließen lässt (Abb. 4.1(b)). Dieses Ausbleiben von Niederschlag bei höheren Lufttemperaturen sorgt für ein Austrocknen des vegetativen Bestandes in den waldreichen Regionen. Aufkommende Winde, welche durch Sturmsysteme oder deren Ausläufer vom Pazifik herangetragen werden, verstärken die Brandaktivität mehrfach. Sie erhöhen zum einen die Sauerstoffzufuhr direkt am Brandherd, zum anderen lichtet sich der Rauch und die dadurch verstärkte Sonneneinstrahlung sorgt am Boden für Erwärmung. Darüber hinaus verstärken die Winde den Funkenflug, was zu einer weiteren Verbreitung des Feuers führt.

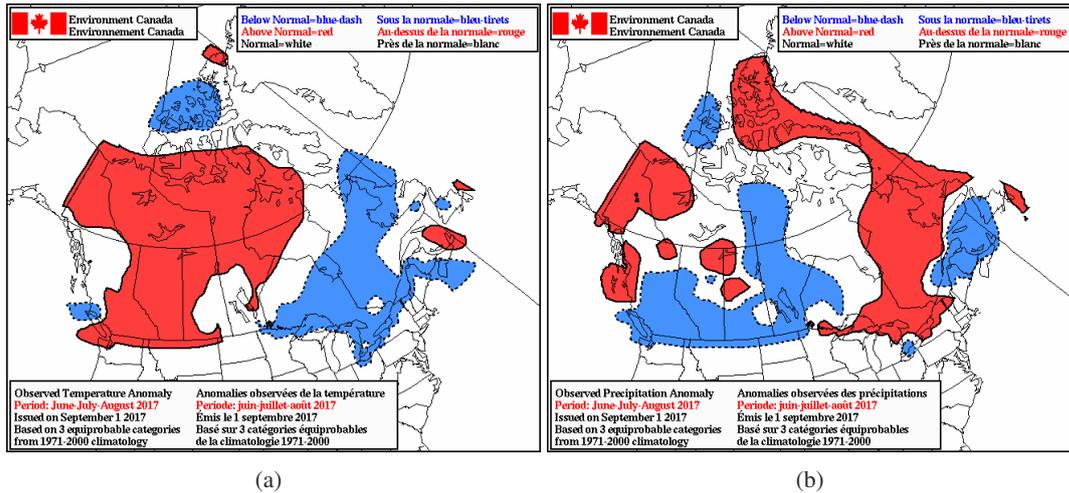


Abbildung 4.1: **Beobachtete Anomalien in Kanada.** (a) Temperatur- und (b) Niederschlagsanomalien im Zeitraum Juni, Juli, August vom Jahr 2017 im Vergleich zum klimatologischen Mittel aus 1971-2000. (aus [https://weather.gc.ca/saisons/ver\\_e.html](https://weather.gc.ca/saisons/ver_e.html), Zugriff: 11.07.2018).

Bedingt durch diese Effekte war der Wind in der Waldbrandsaison 2017 eines der größten Herausforderungen bei der Brandbekämpfung (McLean, 2017).

## 4.2 Messungen

Waldbränden beeinflussen sowohl an ihrem Brandherd, als auch in größerer Entfernung den Zustand der Erdoberfläche und der Atmosphäre und verändern diesen in signifikantem Ausmaß. Die Verwendung mehrere Messmethoden ermöglicht das Erfassen dieser unterschiedlichsten Einflüsse auf die Umwelt. Angewendet werden folgende Methoden der Fernerkundung:

- Eine stark positive Anomalie im infraroten Spektralbereich deutet auf das Vorhandensein einer Wärmequelle hin, was in bewaldetem Gebiet häufig ein Feuer verursacht.
- Nach einem Brandereignis bleibt eine stark veränderte Fläche zurück, welche von Asche und verkohlten Überresten geprägt ist. Eine derartige Albedo- und Oberflächenveränderung liefert im Nachhinein einen Rückschluss auf Stärke und Ausmaß des Feuers und der Menge an emittierten Stoffen (van der Werf et al., 2017; Huang et al., 2018).
- Art und Menge der Aerosole liefern ein charakteristisches Rückstreusignal im sichtbaren Spektralbereich, woraus sich eine Konzentrationsverteilung der Brandaerosole und Brandgase ableitet.

Die meisten Messmethoden beruhen auf Strahlungsmessungen mittels Fernerkundungsinstrumenten. Als Plattformen dienen sowohl bodengebundene Aerosol-Lidare, als auch verschiedene Satelliten. Bei Messkampagnen kommen zusätzlich Flugzeuge oder Ballons zum Einsatz, um voranging in situ-Messungen durchzuführen. Der Satellit bietet als Messplattform die größte horizontale Abdeckung im Raum, was für eine globale Beobachtung und Aufzeichnung der Waldbrandaktivität

unerlässlich ist. Viele Waldbrand-Datenprodukte basieren daher auf Satellitenmessungen. Das Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIPSO) mit dem Instrument Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP) stellt ein solches System dar, dessen Produkte ebenfalls in dieser Arbeit Verwendung finden. Das Klassifizierungsverfahren von CALIOP erkennt und unterscheidet zwar verschiedene Aerosoltypen, jedoch nur in der Troposphäre. Eine stratosphärische Aerosolschicht wird nur als solche deklariert ohne genauere Klassifizierung des Aerosoltyps. Die stratosphärische Aerosolhintergrundkonzentration wird als undetektierbar für CALIPSO angenommen, was die Zuordnung eines Vordergrundsignals zu einer Aerosolklasse verhindert (Winker et al., 2006). Aus diesem Grund scheiden jene Satellitenprodukte zwar zur eindeutigen Identifizierung und Verfolgung von Waldbrandaerosolen in der Stratosphäre aus. Für die generelle Detektion von stratosphärischen Aerosolschichten sind sie jedoch geeignet. Darüber hinaus liefern bodengestützte Aerosol-Lidare eine deutlich höhere vertikale und zeitliche Auflösung an ihren fixen Orten, was eine genauere Detektion von Aerosolkonzentrationen mit geringer vertikaler Erstreckung oder zeitlicher Variabilität ermöglicht. Der internationale Verbund AERONET (AErosol RObotic NETwork) aus knapp 1.000 Aerosol-Fernerkundungsinstrumenten deckt möglichst vollständig die Erde ab, wobei die Verteilung über die Länder und Kontinente sehr heterogen ausfällt und über Ozeanen nur auf Inseln oder Schiffen überhaupt machbar ist. Dieser Messverbund ermöglicht trotz allem das Erkennen und Nachverfolgen von großskaligen Aerosoltransporten über Länder- und Kontinentgrenzen hinweg. In der Vergangenheit rührten solche Events hauptsächlich aus Vulkanausbrüchen, Staubevents in Wüsten oder auch Vegetationsbränden.

Dem europäischen Lidarverbund „A European Aerosol Research Lidar Network to Establish an Aerosol Climatology“ (EARLINET, Matthias et al., 2002) gelang bereits mehrfach die Detektion und der Nachweis von Waldbrandaerosolen, welche per Ferntransport vom Quellgebiet in Nordamerika über den Atlantik bis nach Europa gelangten (Müller et al., 2005; Markowicz et al., 2016; Ortiz-Amezcuca et al., 2017). Die gemessenen Aerosolkonzentrationen in Europa befanden sich nach all diesen Beobachtung in troposphärischen Höhen unter 10km. Zusätzlich zu diesen troposphärischen Aerosolen registrierten im Sommer 2017 mehrere Messstationen in Europa über einen Zeitraum von mehreren Wochen hinweg erstmals dünne Aerosolschichten, welche der Stratosphäre zuzuordnen sind. Je nach Ort und Zeitpunkt der Messung variiert sowohl die Höhe über Meeresniveau, in welcher die erhöhten Konzentrationen auftreten, als auch die vertikale Erstreckung dieser Schicht. Angefangen bei 14km treten die Aerosolschichten bis in 20km Höhe auf, bei vertikalen Erstreckungen von  $\sim 100$ m bis zu einigen Kilometern (Khaykin et al., 2018; Haarig et al., 2018; Ansmann et al., 2018). In der Vergangenheit wiesen vergleichbare Messergebnisse ausschließlich auf mindestens mittelstarke vulkanische Events hin, bei welchen die Asche beim Ausbruch ebenfalls bis in die Stratosphäre gelangt. Die Gegebenheiten in der Stratosphäre ermöglichen den Aerosolen dort eine deutlich höhere Aufenthaltsdauer, verglichen mit der Troposphäre. Durch die stabile stratosphärische Schichtung findet kaum eine vertikale Durchmischung statt, weshalb selbst nach langen Transportwegen stets dünne Aerosolschichten noch nachweisbar sind. Ein Vulkan als Quelle der gemessenen Aerosolschichten scheidet aus, da in dem Zeitraum Sommer 2017 kein vergleichbarer Vulkanausbruch bekannt ist. Als einzig mögliche alternative Quelle bleiben starke Waldbrände, deren Aerosole ebenfalls in die Stratosphäre gelangen können, jedoch noch nie über Europa messtechnisch erfasst wurden. Berechnete Rückwärtstrajektorien bestätigen

die Vermutung von Nordamerika als Herkunft der Luftmassen, wo zu jenem Zeitpunkt eine derart starke Waldbrandaktivitäten vorherrschte. Die stratosphärischen Aerosole weisen nach Haarig et al. (2018) ein deutlich erhöhtes Depolarisationsverhältnis auf, was auf eine nichtsphärische und unregelmäßige Form schließen lässt. Daraus folgt die Annahme, dass unbeschichtete Rußaerosole und Staubpartikel dieses Rückstreumuster verursachen. Vulkanische Aerosole scheiden aus, da diese eine sphärische Form und somit ein geringes Depolarisationsverhältnis aufweisen. Neben dem hohen Depolarisationsverhältnis leiten Haarig et al. (2018) eine hohe Absorptionsfähigkeit anhand von niedrigen Werten der Einzelstreuabedo von  $\sim 0.8$  für die stratosphärischen Aerosolschicht ab. Da Ruß eine sowohl nichtsphärische Form besitzt als auch stark absorbiert, kann das Vorhandensein von Ruß in dieser Aerosolschicht angenommen werden.

Khaykin et al. (2018) vergleichen CALIOP Satellitendaten mit bodengebundenen Stationsmessungen in Südfrankreich. Die Identifizierung der Rußfahne erfolgt anhand eines klar abgegrenzten Rückstreusignals, welches in beiden Messungen in Höhen zwischen 18 km und 20 km ein Maximum aufweist. Nach Ausschluss von Wolken oder anderer Streupartikeln bleiben Waldbrandaerosole als wahrscheinlichste Ursache dieser stratosphärischen Rückstreumuster. Der Durchmesser des aufgeweiteten Laserstrahl von CALIOP beträgt am Boden lediglich 70 m. Daher ist der sogenannte "foot print" bzw. das beobachtete Volumen pro Überflug sehr klein und überlagert sich selten mit dem beobachteten Volumen der Bodentationen. Aufgrund der großskalig ausgeprägten Struktur der Aerosolschicht liegt die Annahme nahe, dass trotz des zeitlich und räumlichen Versatzes der Boden- und Satellitenmessung die selbe Struktur detektiert wird.

In Europa finden sich diese qualitativ übereinstimmenden Beobachtungen in Höhe und vertikaler Erstreckung der Aerosolschicht im August 2017 an mehreren Orten wieder. Die markierten Aerosolschichten (rosa) in den Messdaten von CALIOP (Abb. 4.2) und dem bodengebundenen Lidar (Abb. 4.3) beschreiben das selbe Untersuchungsgebiet über dem Hohenpeißenberg am 27.08.2017. Für einen qualitativen Vergleich reichen die dargestellten Messdaten aus. Jedoch unterscheiden sich sowohl die Messgrößen als auch die Wellenlängenbereiche, weshalb diese für einen quantitativen Messervergleich ungeeignet sind. Beide Messdaten geben eine nahezu identische Höhe der Aerosolschicht an, welche nach CALIOP zwischen 16 km und 19 km über Grund liegt und nach dem bodengebundenen Lidar zwischen 15 km und 18 km. Beide Höhenbereiche lassen sich der Stratosphäre zuordnen. Eine vergleichbare Struktur finden Haarig et al. (2018) und Ansmann et al. (2018) über Leipzig am 22.08.2017. Die hier detektierte Schicht liegt zwischen 15 km und 16 km. Trotz ihrer geringen vertikalen Mächtigkeit von  $\sim 1$  km ist die Aerosolschicht deutlich zu erkennen und liegt etwa 4 km über der Tropopause. Am 24.08.2017 detektieren Hu et al. (2018) über Lille in Frankreich in einer Höhe zwischen 17 km und 18 km eine dünne Aerosolschicht. Die selbe Studie detektiert über Palaiseau am 28.08.2017 eine 2.5 km mächtige Aerosolschicht, welche zwischen 17 km und 19.5 km Höhe liegt. Die abgeleiteten Depolarisationsverhältnisse stimmen gut mit den Messungen aus Haarig et al. (2018) über Leipzig überein, was auf ähnlich geformte Aerosole schließen lässt.

Zusammenfassend liefern die Messungen im August 2017 über Europa eine stratosphärische Aerosolschicht in 14 – 20 km Höhe, welche eine Mächtigkeit zwischen  $\sim 100$  m bis  $\sim 4$  km aufweist. Die abgeleiteten optischen und geometrischen Eigenschaften der Aerosole weisen auf einen Ursprung aus Waldbränden hin.

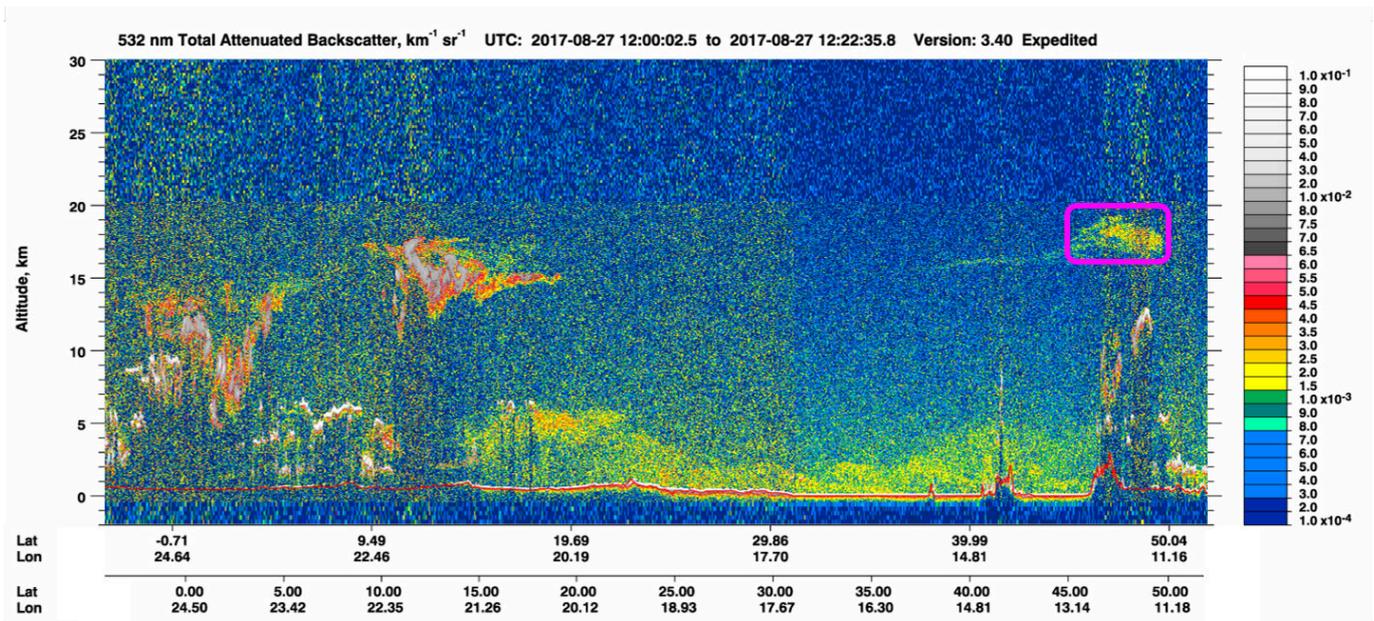


Abbildung 4.2: CALIOP Rückstreuverhältnis am 27.08.2017. Der Ausschnitt zeigt eine Struktur mit deutlich erhöhten Rückstreuwerten (pinke Umrandung), welche als eine stratosphärische Aerosolschicht klassifiziert ist. (bearbeitet von [www-calipso.larc.nasa.gov](http://www-calipso.larc.nasa.gov), Zugriff: 18.07.2018)

## 4.3 Simulation

### 4.3.1 Modell-Setup

Die Eigenschaften der angewendeten Version von ICON-ART mit online Vegetationsbrandemissionen bietet wesentliche Vorteile für die Simulation eines Ferntransports von Vegetationsbrandaerosolen. Da das Transportschema von Aerosolen in ICON-ART möglichst massenerhaltend ist, erlaubt es eine gute Repräsentation eines Ferntransports. Der gewählte Oberrand der Modellatmosphäre mit 75 km ermöglicht sowohl die Darstellung von troposphärischen als auch von stratosphärischen Transportvorgängen, welche in dieser Studie relevant sind. Die im Modell online freigesetzten Aerosolkonzentrationen stehen in Wechselwirkung mit der Atmosphäre. Die Aerosole sind den atmosphärischen Prozessen des Transports, der turbulenten Diffusion, der trockenen und nassen Deposition und der Sedimentation unterworfen.

Die wichtigsten Konfigurationsparameter von ICON-ART führt Tabelle 4.1 auf, welche die hier verwendete Simulation der Waldbrände in Kanada und des Aerosol-Ferntransports nach Europa charakterisieren.

Aufgrund des gewählten horizontalen Gitterpunktabstands erfolgt die Darstellung von subgridskaligen Prozessen in ICON-ART über Parametrisierungen, was beispielsweise für die hochreichende und flache Konvektion und Strahlungsberechnung zutrifft. Um einen sinnvollen Vergleich zwischen Messung und Simulation zu ermöglichen, sollte die simulierte Atmosphäre über den gesamten Simulationszeitraum möglichst der Realität entsprechen. Um dies zu erreichen, findet eine, für Globalmodelle, hohe räumliche und zeitliche Auflösung Anwendung. Zusätzlich wird in 48-Stunden-Schritten eine Reinitialisierung der meteorologischen Variablen mittels neuer Analysedaten durchgeführt. Als Initialisierungsdaten der Modellatmosphäre dienen die Analysen des Deut-

Range-corrected signal@1064nm, PollyXT\_DWD, Hohenpeißenberg, Germany

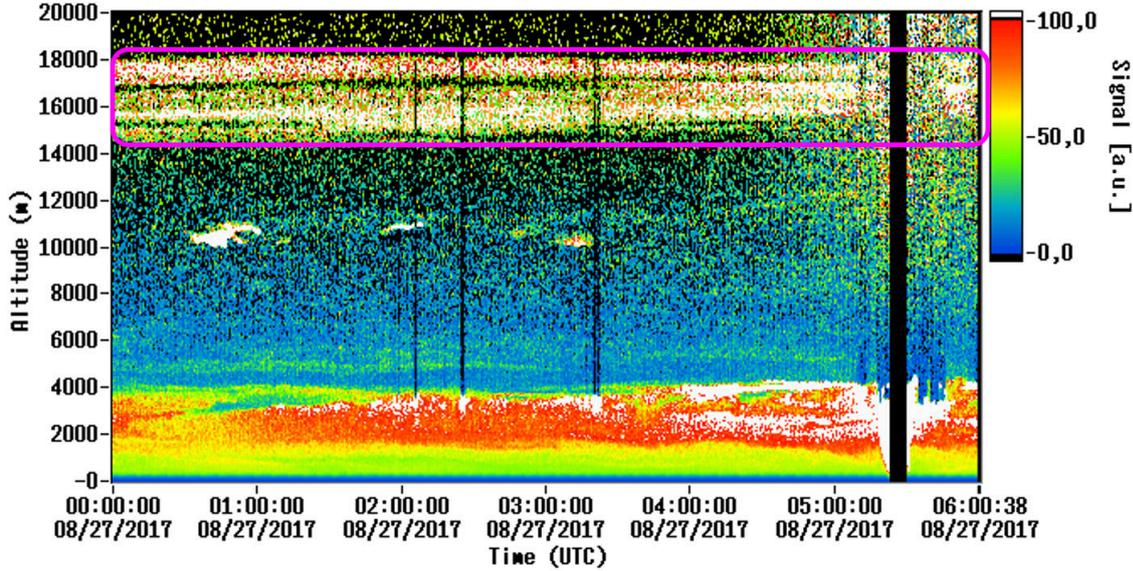


Abbildung 4.3: **Korrigiertes Lidarsignal am Hohenpeißenberg vom 27.08.2017.** Über den gesamten 6-stündigen Zeitbereich weisen die hohen Signalwerte im Höhenbereich 15 – 18km auf eine ausgeprägte Aerosolschicht hin (pinke Umrandung). (bearbeitet nach <http://polly.rsd.tropos.de>, Zugriff: 18.07.2018)

schen Wetterdiensts (DWD). Die Aerosolverteilung wird dabei vom vorigen Modelllauf übernommen. Dieses Vorgehen bildet einen möglichst realitätsnahen atmosphärischen Transport. Während den 48-Stunden Intervallen bleibt ausreichend Zeit für das Wirken der Interaktion zwischen Aerosolen und Atmosphäre. Bei jeder Reinitialisierung findet ein kurzer Einschwingprozess statt, um kleinskalige Störeffekte durch den sogenannten initialen Schock (engl.: „initial shock“) herauszufiltern. ICON-ART löst die vertikale Struktur in der Troposphäre wesentlich höher auf, als die der Stratosphäre. Das in den Messungen interessante Höhenintervall zwischen  $\sim 14 - 20$  km wird durch elf Modelllevels repräsentiert, welche jeweils eine vertikale Mächtigkeit von  $400 - 800$  m besitzen. Da die Aerosolkonzentration in einem Gittervolumen als eine konstante Verteilung angenommen wird, beträgt die im Modell minimal darstellbare Mächtigkeit einer Aerosolschicht  $400$  m.

### 4.3.2 Modell-Ergebnisse

Nach einer 17-tägigen Simulation bei anhaltenden Rußemissionen stellt sich über nahezu der gesamten Nordhemisphäre eine Aerosolhintergrundkonzentration ein (Abb. 4.4). Um aus den Simulationsdaten eine abgehobene Rußfahne von der Hintergrundkonzentration unterscheiden zu können, dienen hier drei Kriterien:

- **Schwellwert:** Bei einer vorhandenen Hintergrundkonzentration trennt ein Schwellwert  $c_{\text{thrs}}$  die Rußfahne vom Hintergrund und definiert somit den Rand der Rußfahne. Hier findet eine konstante Schwellkonzentration von  $c_{\text{thrs}} = 0.01 \mu\text{g m}^{-3}$  nach Walter et al. (2016) Verwendung.

Tabelle 4.1: Modellkonfiguration von ICON-ART für die Simulation der Kanadischen Waldbrände im August 2017.

Zeit	Beginn	08.08.2017, 00:00 UTC
	Zeitschritt	$\Delta t = 180\text{s}$
Gebiet	Auflösung	R2B06 ( $\Delta x \approx 40\text{ km}$ )
	Meteorologie	zweitätig
Quellgebiet	Brände	FRP in Kanada (zeitlich konstant)
Rußmode	Dichte	$\rho_{\text{soot}} = 1300\text{ kg m}^{-3}$
	Durchmesser	$D_m = 0.175\text{ }\mu\text{m}$
	Standardabweichung	$\sigma = 1.7$
Aerosol-Strahlungswechselwirkung		keine
Zwei-Momenten-Schema		aus

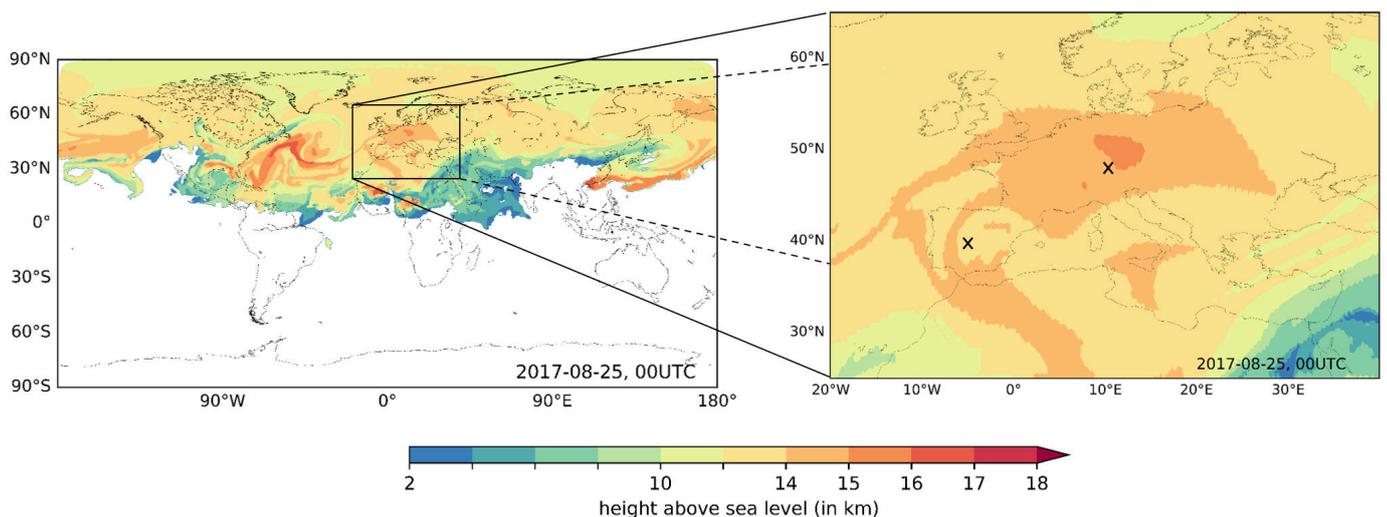


Abbildung 4.4: **Maximalhöhe der Rußfahne am 25.08.2017.** Die dargestellte Höhe  $z_{\text{top}}$  entspricht der obersten Isofläche von  $0.01\text{ }\mu\text{g m}^{-3}$  Rußkonzentration, als Maß für die Oberkante der Rußfahne. An den markierten Stellen (x) liegen Vertikalprofile vor. Verwendetes Simulations-setup nach Tab. 4.1

- **exponierte Lage:** Eine abgehobenen Rußfahne kennzeichnet sich durch eine Oberkante in großer Höhe. Das Auftreten der obersten Schwellkonzentration einer entspricht somit einer Höheninformation  $z_{\text{top}}$ . Dieser Höhenwert dient als ein notwendiges Kriterium für die generelle Plausibilität einer stratosphärischen Rußfahne.
- **geringe vertikale Mächtigkeit:** Das Detektieren der Unterkante der abgehobenen Rußfahne in den Simulationsdaten findet in dieser Arbeit visuell anhand von Vertikalprofilen statt. Dabei soll der Abstand zu der Oberkante im Bereich zwischen  $\sim 100\text{ m}$  bis  $\sim 4\text{ km}$ .

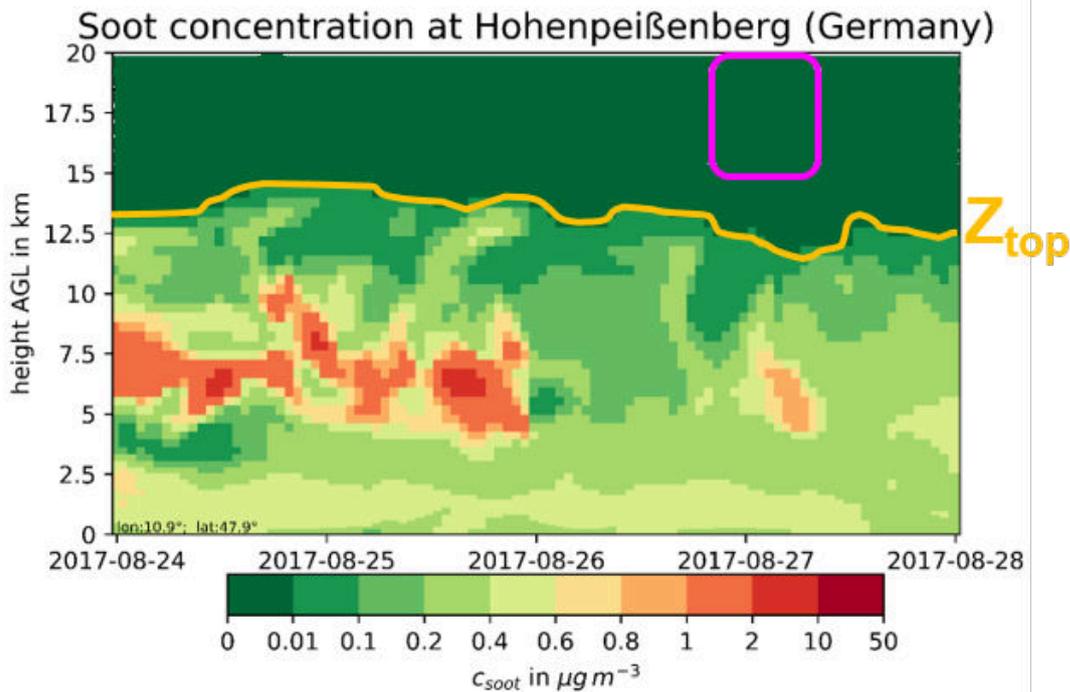


Abbildung 4.5: **Vertikalprofil der Rußkonzentration  $c_{\text{soot}}$  am Hohenpeißenberg** Die eingetragene  $z_{\text{top}}$  (orange Linie) ist ein Maß für die Oberkante der Rußfahne. Das pink markierte Feld stellt die Vergleichsregion mit den Messdaten dar. Verwendetes Simulationssetup nach Tab. 4.1

Über fast der gesamten Nordhemisphäre liegt die Höhenverteilung der Rußfahnenoberkante  $z_{\text{top}}$  (Abb. 4.4) über 10 km. Im kanadischen Quellgebiet zeigen sich die selben Werte, wie über weiten Teilen der restlichen Hemisphäre. An vereinzelt Stellen über Westafrika, über Südchina und dem Atlantik erreicht die Rußfahne Höhen bis 17 km. Die dafür verantwortlichen Prozesse liegen deutlich außerhalb der Quellregion und scheinen teilweise im Zusammenhang mit konvektiven Systemen zu stehen. Über Mitteleuropa reicht die Rußfahne bis 15 km und an einzelnen Stellen über Deutschland sogar bis 16 km. Diese exponierte Lage gilt als eine Notwendigkeit für das Vorhandensein einer stratosphärischen Schicht.

Für die eindeutige Kennzeichnung der Unterkante dieser abgehobenen Schicht, bedarf es einer detaillierteren Information über die Vertikalverteilung des Rußes. Abbildung 4.5 gibt diese wieder, mit der eingezeichneten Rußfahnenhöhe  $z_{\text{top}}$  am Hohenpeißenberg. Am 25.08.2018 um 00 UTC liegt  $z_{\text{top}}$  knapp unter 15 km, was der oben beschriebenen globalen Betrachtung in Abbildung 4.4 entspricht. Die Maximalkonzentrationen liegen deutlich in der Troposphäre zwischen 5 – 10 km. Jedoch zeichnet sich keine eindeutig abgehobene Schicht ab, welche sich durch einen starken Konzentrationsgradienten von der troposphärischen Schicht abtrennt. Weitere untersuchte Vertikalprofile an anderen Stellen in Europa weisen vergleichbare Charakteristika auf.

## 4.4 Diskussion

Die in den Messungen beobachtete stratosphärische Aerosolschicht über Europa findet sich in den Simulationsergebnisse in dieser Klarheit nicht wieder. Ein Vergleich zwischen Messung und Modell über den selben Zeitpunkt und das Vergleichsgebiet (rosa markierten Flächen in den Ab-

bildungen 4.3 und 4.5) bekräftigt diese Schlussfolgerung. Dennoch gelingt dem Modell der troposphärische Transport von Waldbrandaerosolen, welcher ebenfalls in den Messungen dargestellt ist und bestätigt daher die Annahme, dass Aerosole von kanadischen Waldbränden bis nach Europa gelangen. In der gewählten Konfiguration von ICON-ART sind demnach entscheidende Prozesse nicht abgebildet, welche für das Entstehen einer beobachteten abgehobenen Aerosolschicht über Europa sorgen. Die Rußfahnenhöhe  $z_{\text{top}}$  über Europa liegt im Modell etwa 4 km niedriger als in den Messdaten. Die Waldbrandaerosole bleiben demnach unterhalb der Tropopause und gelangen nicht in signifikanter Menge in die Stratosphäre.

Ein möglicher Grund liegt in der Parametrisierung der hochreichenden Konvektion, welche die tatsächlich auftretende Konvektion unterschätzt. Peterson et al. (2016) zeigen, dass durch sogenannte Pyrocumulonimben (PyroCbs) in Kanada durchaus beachtliche Mengen Ruß in die UTLS-Region gelangen. Solche Phänomene entstehen aus einer komplexen Interaktion zwischen Atmosphäre, Orografie und Aerosolen. Sowohl die 1D-Emissionsparametrisierung in ICON-ART, als auch die Konvektionsparametrisierung können die PyroCbs nicht abbilden. Zusätzlich trägt möglicherweise ein strahlungsgetriebenes Aufsteigen der dunklen und somit stark absorbierenden Rußpartikel zu einem Transport in die UTLS-Region bei. Dieser Prozess kann in dieser Arbeit nicht untersucht werden, da die optischen Eigenschaften der Rußaerosole nicht berücksichtigt werden.

Eine Hypothese über das Ausbleiben der stratosphärischen Aerosolschicht in der Simulation wäre, dass sich über Europa eine abgehobene Aerosolschicht identifizieren lässt, sobald Rußaerosole von Kanada in die Stratosphäre gelangen. Eine erste Untersuchung dieser These erfolgt mit der Ausbreitungsrechnung eines passiven Spurenstoffs, welcher nur dem Transportprozess unterliegt. Ein solcher passiver Spurenstoff wird durch eine fixe Punktquelle in 15 km Höhe über dem Quellgebiet freigesetzt. Die Analysen dieser Simulationsergebnisse zeigen im Vertikalprofil eine deutlich abgehobene Schicht über dem Hohenpeißenberg, wonach der stratosphärische Transport plausibel abgebildet ist. Ebenfalls deutet die globale Betrachtung der Konzentrationsverteilung auf die Existenz solcher stratosphärisch abgehobenen Schichten hin. Um jedoch diese Indizien mit belastbaren Ergebnissen zu unterstützen, bedarf es einer näheren Untersuchung der Prozesse innerhalb des Quellgebiets und der Wechselwirkung zwischen Ruß und Atmosphäre. Dies findet im Rahmen dieser Arbeit nicht statt.



# 5 Einfluss von Waldbrandaerosolen auf die Eisbildung in Wolken

Nach der Betrachtung des Ferntransports folgt hier die Untersuchung auf kleineren Skalen. Genauer wird die Interaktion von Waldbrandaerosolen mit der Wolkeneisbildung innerhalb eines konvektiven Systems vom 17.06. bis 18.06.2017 in Portugal betrachtet.

Zunächst findet eine synoptische Analyse statt, woran sich die gewählte Modellkonfiguration anschließt. Nach einer Validierung der Simulationsergebnisse mit Beobachtungsdaten erfolgt abschließend die Untersuchung des Aerosoleinflusses auf die Wolkeneiseigenschaften.

## 5.1 Einführung und synoptische Situation

Portugal zählt in Europa zu der Region mit den häufigsten Wald- und Buschbränden. Das hohe Waldbrandpotential ist bedingt durch ein Klima mit trockenen und heißen Sommermonaten, was den vorhandenen Vegetationsbestand austrocknet. Die Anzahl an Vegetationsfeuern zeigt eine rückläufige Tendenz, jedoch nicht die abgebrannte Fläche. Im Jahr 2017 verbrannten  $\sim 17000$  Feuer eine Fläche von  $\sim 4500\text{km}^2$ . Das entspricht zwar einer durchschnittlichen Anzahl an Feuern be-

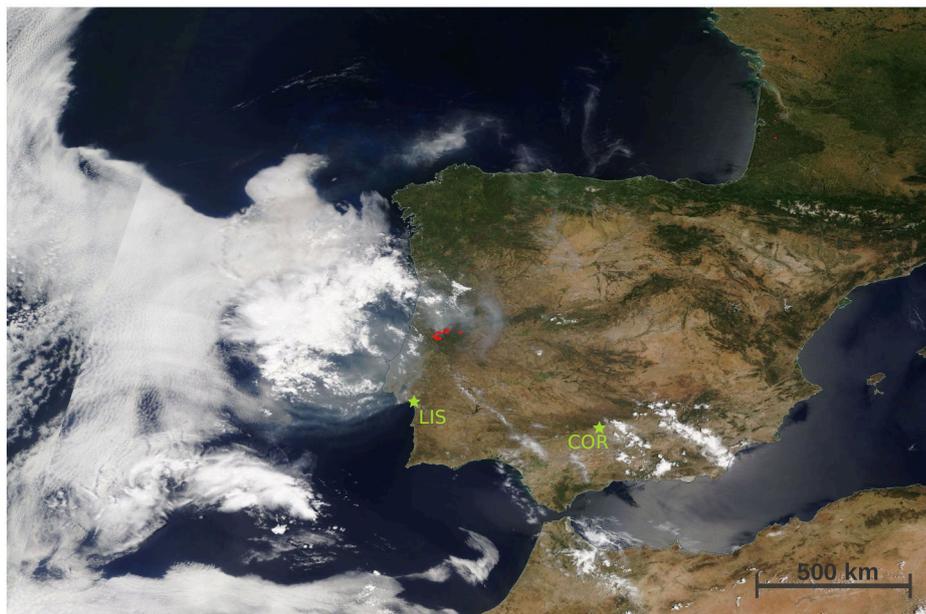


Abbildung 5.1: **Satellitenbild am 18.06.2017.** Das Untersuchungsgebiet für die Fallstudie, aufgenommen von MODIS im sichtbaren Frequenzbereich. An den roten Punkten liegen detektierte Vegetationsbrände vor. Die grünen Sterne stehen für die Städte Lissabon (LIS) und Cordoba (COR). (NASA Worldview, 2018)

zogen auf das 10-Jahres Mittel, jedoch verbrannte eine über vierfach größere Fläche.

Die Waldbrände Mitte Juni entstanden außergewöhnlich früh. Die vorangegangene Trocken- und Hitzeperiode trocknete die Vegetation stark aus, sodass durch die Gewitter vermutlich ein Blitzeinschlag oder eine defekte Stromtrasse zur Feuerentfackung führten. Während dieser starken Waldbrände entstand die Aufnahme in Abbildung 5.1. Die Rußfahne der Vegetationsbrände (rote Punkte) scheinen in ein Wolkenkomplex zu ziehen, der sich vor der Küste befindet und eine eher konvektive Wolkenstruktur aufweist.

In den Tagen vor dem 17.06.2017 lag die Iberische Halbinsel unter dem Einfluss eines stark ausgeprägten Rückens, wobei teilweise heiße Luft aus Afrika einströmt. Verbunden mit der hohen solaren Einstrahlung bei wolkenfreien Bedingungen, erreichten die Temperaturen in Südwestspanien und Südportugal am 17. Juni an vielen Orten im Landesinneren über  $41^{\circ}\text{C}$ , beispielsweise in Cordoba (Abb. 5.1) mit  $43.0^{\circ}\text{C}$  (Valor, 2018). Der geografisch naheliegendste und verfügbare Radiosondenaufstieg in Lissabon ( $9.13^{\circ}\text{W}$ ,  $38.76^{\circ}\text{N}$ , siehe Abb. 5.1) am 17. Juni um 12:00 UTC bietet Aufschluss über die vorliegende vertikale Schichtung der Atmosphäre (Abb. 5.4). Die Auslösetemperatur in Lissabon liegt dabei bei  $\sim 41^{\circ}\text{C}$ , was in erster Näherung ebenfalls für die weiter im Landesinneren liegenden Regionen angenommen werden kann. Somit wird die Auslösetemperatur im Tagesverlauf deutlich überschritten, weshalb ein freies Aufsteigen der bodennah erhitzten Luftpakete möglich ist. Der Radiosondenaufstieg in Abbildung 5.4 liefert zwar niedrige Werte für die konvektiv verfügbare potentielle Energie (engl. Convective Available Potential Energy, CAPE) von  $49.7\text{Jkg}^{-1}$ , allerdings weist der Lifted Index (LIFT), bzw. mit der virtuellen Temperatur (LIFTV), Werte um  $-1\text{K}$ , was ein Maß für die Temperatur zwischen der Umgebung und einem gehobenen Luftpaket darstellt. Negative Werte bedeuten dabei eine labile Schichtung, was die Entstehung von Gewittern begünstigt. Im Laufe des 17.06.2017 sorgt ein ausgeprägter Randtrog westlich der Küste von Portugal für zusätzliche Divergenz in der höheren Troposphäre (300 hPa), dessen Entwicklung sich zum Abend hin verstärkt (Abb. 5.3). In den unteren Atmosphärenschichten führt die Höhendivergenz zu einer großräumigen Hebung und somit Labilisierung. Ebenfalls können orografische Unterschiede ein Auslösen der Konvektion unterstützen. Die anfangs teils statische Position der konvektiven Zellen, welche parallel der zonal ausgerichteten Mittelgebirge liegen, lässt auf ein Wirken dieses Antriebs schließen. Das gesamte Gebiet, in denen sich diese Zellen entwickeln, erstreckt sich auf eine Fläche mit einem Durchmesser von etwa 300 km.

Der  $10.8\mu\text{m}$  Infrarotkanal von Meteosat (Abb. 5.2(a)) zeigt die Entstehung der ersten hohen konvektiven Wolkenschirme um 13 UTC (15 Uhr Ortszeit), was dem typischen Zeitpunkt der Tageshöchsttemperaturen am Boden entspricht. In den folgenden Stunden entstehen in den Gebieten Südportugal und Spanien immer neue Gewitterzellen. Diese bilden zunächst einzelne typische Zirrenschirme, welche sich zu einem zusammenhängenden Wolkenschirm vereinen. Ab 18 UTC verhindert dieser das genaue Erkennen von weiteren konvektiven Zellen mit Hilfe der Satellitenbildern (Abb. 5.7), deren Entwicklung bis etwa 22 UTC andauern kann. Ab 18 UTC zeigt sich darüber hinaus das erste Ausströmen des Zirrenschirms nach Norden mit einer antizyklonalen Rotation, was in den folgenden Stunden anhält. Ab 22 UTC löst sich dieser große Zirrenschirm vermehrt auf (Abb. 5.2(b)), während das System mit der mittleren Strömung in Richtung Atlantikküste zieht. Dieser Wolkenkomplex befindet sich während des zweiten Tages am 18.06.2017 vor

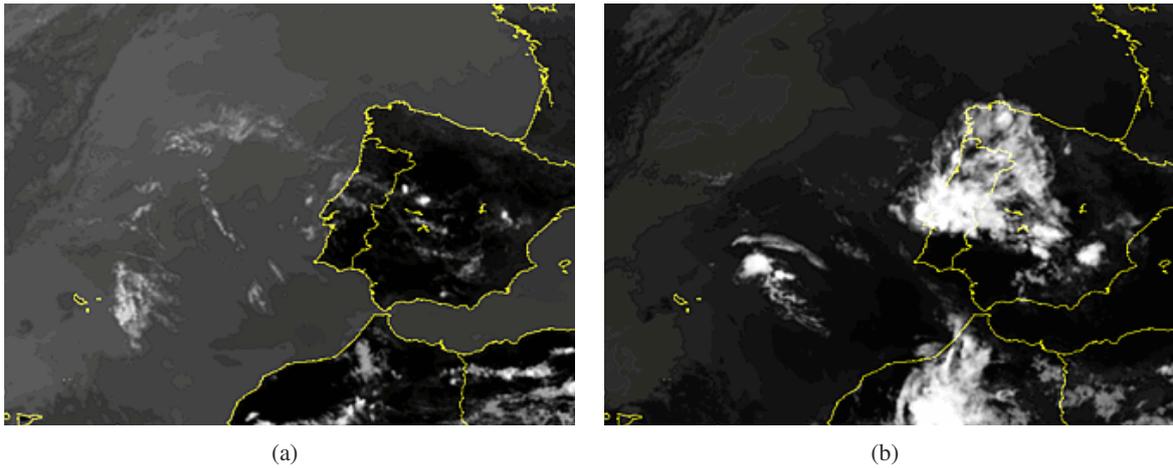


Abbildung 5.2: **Meteosat IR-Aufnahme der Iberischen Halbinsel am 17.06.2017** (a) 13 UTC (b) 22 UTC  
(abgeändert von Niederschlagsradar.de (2018))

der Küste Portugals, wobei eine Intensivierung und Neubildung von Konvektion allein aus den Satellitenbildern nicht erkennbar ist (Abb. 5.8). Vielmehr zieht es langsam über die Nordspitze Spaniens in nordöstlicher Richtung ab.

Die entstandenen Gewitter erzeugten ebenfalls eine hohe Anzahl an detektierten Blitzen (Blitzortung.org, 2018), welche als wahrscheinliche Auslöser der anschließenden Waldbrände gelten. Für den 18.06.2017 zeigen die Blitzanalysen eine einsetzende Gewitteraktivität sowohl über Land, als auch über dem Ozean beginnend ab 8 UTC. Das Gebiet mit einer Vielzahl an detektierten Waldbrandorten, welche für die Simulation verwendeten werden, stimmt mit der Lage der starken Gewitteraktivität überein (Abb. 5.6). Die Waldbrandaerosole gelangen daher direkt in die konvektiven Aufwindbereiche und erreichen schnell große Höhen, wo sie in die Wolken- und Eisbildung eingreifen können.

5 Einfluss von Waldbrandaerosolen auf die Eisbildung in Wolken

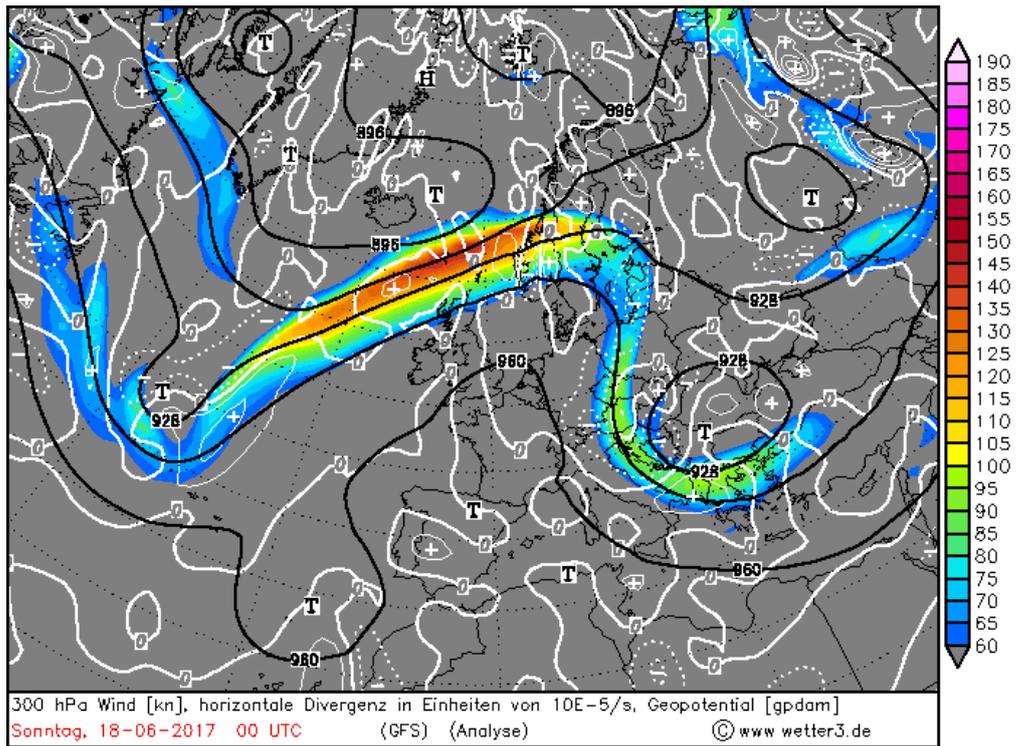


Abbildung 5.3: Divergenz Divergenz (durchgezogene weiße Linien) und Geopotential (schwarze Linien) in 300hPa ).

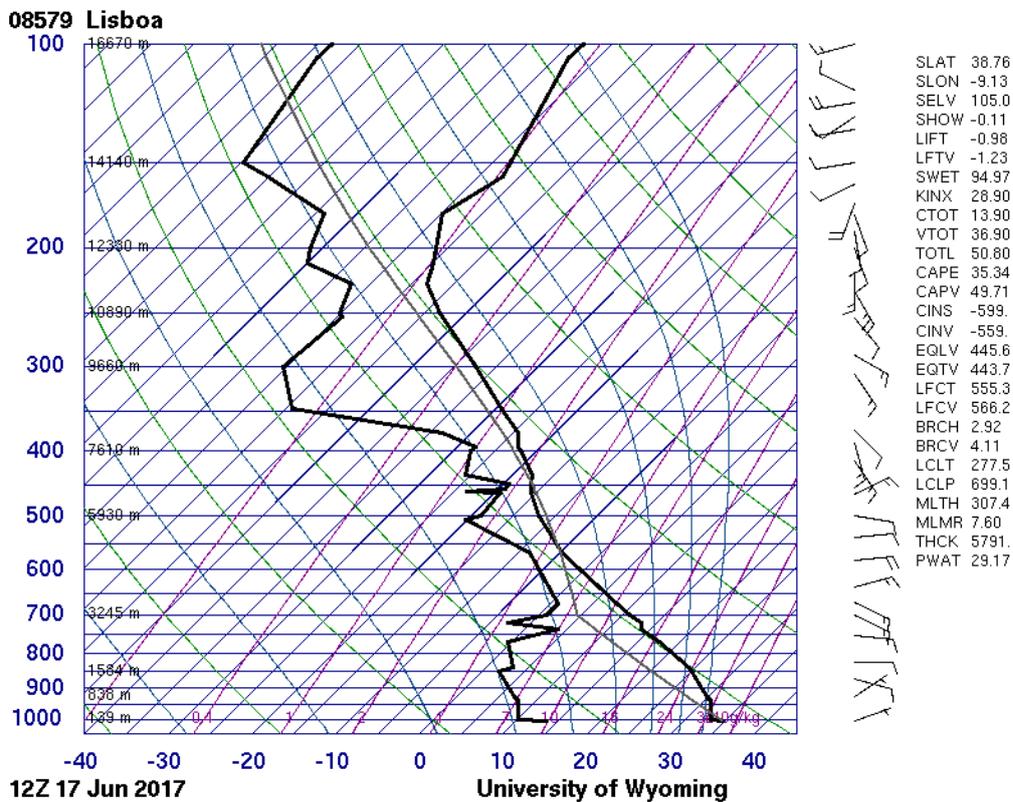


Abbildung 5.4: Radiosondenaufstieg von Lissabon. am 17. Juni 2017 um 12 UTC .

Tabelle 5.1: **Modellkonfiguration von ICON-ART** für die Simulation der Waldbrände in Portugal 2017

Zeit	Beginn	17.06.2017, 00:00 UTC
	Zeitschritt	$\Delta t = 15$ s
Gebiet		regional: LAM mit Nest
	Auflösung	LAM: R3B09 ( $\Delta x_{\text{LAM}} \approx 3.6$ km) Nest: R3B10 ( $\Delta x_{\text{Nest}} \approx 1.8$ km)
Vertikal	Anzahl Schichten	60
	max. Höhe	22.015 km
Konvektionsparametrisierung	LAM, Nest	aus
Antriebsdaten	Meteorologie	ICON-Vorhersage (stündlich)
Aerosolquellen	Meersalzemission	online
	Vegetationsbrände	online (Abb. 5.6)
Aerosol-Strahlungswechselwirkung		aus
Zwei-Momentenschema		an

Tabelle 5.2: **Parameter der Aerosolmoden** in ICON-ART für die Simulation der Waldbrände in Portugal 2017. Verteilungsparameter des Aerosols  $i$ : Anzahlmediandurchmesser  $D_{i,0}$ , Massenmediandurchmesser  $D_{i,3}$ , Varianz  $\sigma_i$ , Modendichte  $\rho_i$ 

Aerosolquelle	Mode	$D_{i,0}$	$D_{i,3}$	$\sigma_i$	$\rho_i$
Meersalz	Mode A	$0.2 \mu\text{m}$	$0.69 \mu\text{m}$	1.9	$2200 \text{kg m}^{-3}$
	Mode B	$2.0 \mu\text{m}$	$8.50 \mu\text{m}$	2.0	$2200 \text{kg m}^{-3}$
	Mode C	$12.0 \mu\text{m}$	$27.93 \mu\text{m}$	1.7	$2200 \text{kg m}^{-3}$
Vegetationsbrände	soot	$0.08 \mu\text{m}$	$0.175 \mu\text{m}$	1.7	$1300 \text{kg m}^{-3}$

## 5.2 Methodik

Die hier vorliegende meteorologische Situation bietet die Möglichkeit einer Untersuchung der Aerosol-Wolken-Wechselwirkung. Im Gegensatz zu dem ersten Fallbeispiel der kanadischen Waldbränden aus Kapitel 4 liegen in diesem Fallbeispiel keine in situ-Messungen vor. Vielmehr beschränken sich die Messdaten auf Satellitenprodukte, welche zur Modellvalidierung herangezogen werden. Das Herausarbeiten des Aerosoleffekts erfolgt unter Verwendung von reinen Modellsimulationen und unterschiedlicher Analysemethoden.

### 5.2.1 Modell-Setup

ICON-ART ist in der Lage mittels Zwei-Momenten-Schema die Aerosolwechselwirkungen zu modellieren. Die technische Konfiguration der angewendeten Modellsimulationen fasst Tabelle 5.1 zusammen und wird nachfolgend vorgestellt.

Da es sich in diesem Fallbeispiel auch um die Untersuchung von Gewittern handelt, ermöglicht die Benutzung eines geringen Gitterpunktabstands  $\Delta x < 3.6$  km das explizite Berechnen der

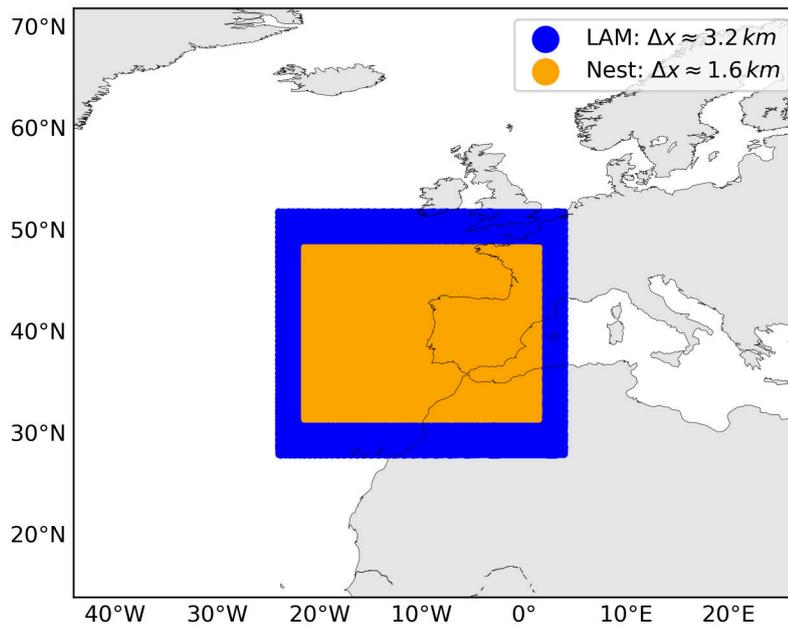


Abbildung 5.5: **Modellgebiet.** Die verwendete horizontale Gitterpunktweite  $\Delta x$  unterscheiden sich im LAM und Nest. Die Meteorologie der Umgebung wird stündlich neu eingelesen.

Konvektion durch Lösen der Modellgleichungen. Dadurch entfallen Unsicherheiten durch eine Parametrisierung der hochreichenden Konvektion.

Ein geringer Gitterpunktabstand bedingt eine hohe Anzahl an Gitterpunkten, um das gewünschte Modellgebiet (Abb. 5.5) aufzulösen. ICON-ART bietet sowohl die Möglichkeit globaler Simulationen, als auch die Option Ausschnittsgebiete explizit zu simulieren („Limited Area Mode“, LAM). Letzteres findet hier Verwendung. Die umgebenden meteorologischen Bedingungen werden als Randdaten stündlich eingelesen. Hierfür dienen ICON Vorhersagen, welche in einer sogenannten Nudgingzone die meteorologischen Variablen des LAM-Gebiets beeinflussen und so für einen externen Antrieb sorgen. Dabei findet der Informationsaustausch nur in das LAM-Gebiet hinein statt, nicht heraus. Dies bedeutet, dass die Randdaten nicht von der berechnenden Meteorologie im Ausschnittsgebiet beeinflusst werden. Hier liegt die Annahme zu Grunde, dass die großräumige Struktur in vernachlässigbarem Maße durch Vorgänge im Modellgebiet beeinflusst werden. Über das Randgebiet können jedoch keine Spurenstoffkonzentrationen eingelesen werden, was im Falle von Staubevents aus der Sahara relevant werden kann. Innerhalb des LAM-Gebiets entspricht die Simulation somit einem freien Lauf über 2 Tage, welcher nur durch meteorologische Randdaten beeinflusst wird.

Das LAM-Gebiet erstreckt sich bis in eine Höhe von 22.015km. An der Oberseite des Ausschnittsgebiets findet kein Nudging der meteorologischen Variablen statt und der Massenfluss wird abgeschnitten. Mit der so gewählten Höhe lösen die 60 vertikalen Schichten die relevanten Prozesse in der Troposphäre auf und der stattfindende Massentransport bleibt in den betrachteten Höhen wenig beeinflusst durch die Abgrenzung an der Oberseite. Ein zusätzliches Nest verringert den Gitterpunktabstand auf  $\Delta x_{\text{Nest}} \approx 1.8 \text{ km}$  bzw. erhöht die horizontale Auflösung. Dies ent-

Flux of black carbon:  $> 0.005 \mu\text{g s}^{-1} \text{m}^{-2}$  used as fire location

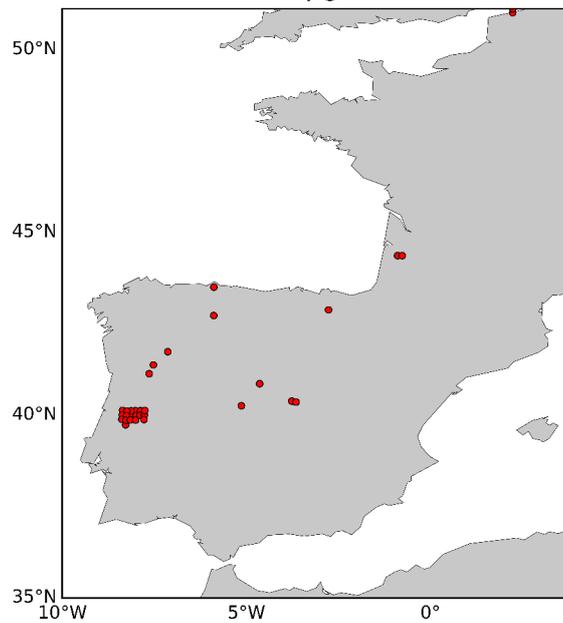


Abbildung 5.6: **Waldbrände als Quellen für Vegetationsbrandaerosole.** Basierend auf Daten des Globalen Feuer Assimilations Systems (GFAS)

spricht einem zweiten Modellgitter mit doppelter horizontaler Auflösung, auf welchem zusätzlich die Modellgleichungen gelöst werden. Im Gegensatz zu dem Austausch zwischen Randdaten und LAM-Gebiet, läuft der Informationsaustausch für alle Modellvariablen zwischen LAM-Gebiet und Nest in beide Richtungen ab. Das Nest wird erst nach 15 Minuten in die laufende Simulation hinzugeschaltet, was für eine reibungslose Initialisierung sorgt, da das Nest online initialisiert wird. Die Wahl dieser Modellgitterkonfiguration ermöglicht die Durchführung einer hochauflösten und damit konvektionserlaubenden Simulation.

In die anfangs aerosolfreie Atmosphäre gelangen Aerosole aus den zwei Quellen Vegetationsbrände und Meersalzemission. Beide Emissionen werden online durchgeführt und füllen so die Atmosphäre mit prognostischen Aerosolen, welche mit dem Zwei-Momenten-Schema behandelt werden. Beide Emissionsprozesse starten zu Simulationsbeginn, wobei die Verteilung der Brände während des Simulationszeitraums als konstant angenommen wird. Die freigesetzten Meersalzaerosole werden in dieser Arbeit nicht untersucht, allerdings beeinflusst deren Wirkung als lösliches Aerosol wesentlich die Wolkentropfenbildung. Die verwendeten Parameter für die Verteilungsfunktionen der Aerosole sind in Tabelle 5.2 aufgeführt.

Die Quantifizierung des Aerosoleffekts erfolgt anhand von drei verschiedenen Simulationsläufen, welche sich in der Emission von Vegetationsbränden unterscheiden und wie diese in die Eiskleationsparamterisierung eingehen:

1. noBB: Referenzlauf ohne Emission von Vegetationsbrandaerosolen,

2. withBB: Sensitivitätslauf mit Emission von Vegetationsbrandaerosolen,
3. 1000xIN: Sensitivitätslauf mit Emission von Vegetationsbrandaerosolen und die 1000-fach erhöhte Rußpartikelanzahl in der Nukleationsparametrisierung.

## 5.2.2 Analysegrößen

Die Quantifizierung des Einfluss von Aerosolen auf die Wolkenbildung wird mit den folgenden Methoden durchgeführt, welche unterschiedliche Kenngrößen näher untersuchen. Die Temperatur an der Wolkenoberseite und der integrierte Säulengehalt dienen hauptsächlich zur Validierung des Modells mit Satellitendaten, während die Analysen der Vertikalgeschwindigkeiten und die Vertikalprofile für die Modellanalyse zur Anwendung kommen.

Die Oberkante der Wolken strahlt als Näherung mit der Temperatur  $T$  in der Höhe ab, in welcher diese sich befindet. Aus dieser Temperatur folgt somit eine Information über deren Höhe  $z$ . Satelliten detektieren die IR-Strahlung und leiten daraus eine Temperatur für die ausstrahlende Oberfläche ab, hier die Wolkenoberseite. Weshalb diese Größe als Wolkenoberseitentemperatur (engl. Cloud Top Temperature, CTT) bezeichnet wird. Um einen Vergleich des Modells mit dem Satellitenprodukt zu ermöglichen, erfolgt eine aus den Modelldaten angenäherte Temperatur an der Wolkenoberseite  $CTT_{\text{mod}}$ . Die Bestimmung der Existenz von Wolken an einem Gitterpunkt basieren hier auf den Wolkentropfen- und Eispartikelanzahlen, welche direkt mit der Wolkenbildung im Zwei-Momenten-Schema in ICON-ART zusammenhängen. Die in der größten Höhe  $z$  auftretende kritische Anzahlkonzentration von Wolkeneis  $q_{\text{ni,thr}}$  oder von Wolkentropfen  $q_{\text{nc,thr}}$  bestimmt die Wolkenoberseite, wonach in erster Näherung die Umgebungstemperatur  $T(z)$  der Wolkenoberseitentemperatur entspricht:

$$CTT_{\text{mod}} = T(z) \quad , \text{ falls } q_{\text{nc}}(z) \geq q_{\text{nc,thr}} \quad \text{oder} \quad q_{\text{ni}}(z) \geq q_{\text{ni,thr}} \quad , \quad (5.1)$$

mit dem Index  $qc$  für Wolkentropfengrößen und  $qi$  für Wolkeneisgrößen.

Nach Wu et al. (2017) treten in Eiswolke jedoch deutlich unterschiedliche und inhomogen verteilte charakteristische Anzahlkonzentrationen der Eispartikel auf. Die abgeleitete Temperatur  $CTT_{\text{mod}}$  aus den Simulationsdaten zeigt eine starke Sensitivität auf den gewählten Schwellwert für die Anzahlkonzentration  $q_{\text{nc,thr}}$  bzw.  $q_{\text{ni,thr}}$ . Durch Variierung des Schwellwerts für die Wolkeneisanzahl  $q_{\text{ni,thr}}$  zwischen  $0.1 \# \text{liter}^{-1}$  (Abb. A.1) und  $q_{\text{ni,thr}} > 1000 \# \text{liter}^{-1}$  erfolgt eine manuelle Kalibrierung der Simulationsdaten an die MODIS-Daten, mit dem Ziel die hohen Wolken bestmöglich zu repräsentieren (5.9). Diese Sensitivitätstests zeigen einen deutlichen Rückgang der Anzahl an hohen Wolken ab einem Wert von  $q_{\text{ni,thr}} > 300 \# \text{liter}^{-1}$ , welcher drei Größenordnungen über den anfangs verwendeten Schwellwert von  $q_{\text{ni,thr}} = 0.1 \# \text{liter}^{-1}$  liegt. Mit einem kleineren Schwellwert werden bereits Wolken mit geringerer Wolkeneiskonzentration detektiert, welche oftmals in größeren Höhen als Zirren auftreten und deshalb geringere Oberflächentemperaturen aufweisen. Der neue und höhere Schwellwert  $q_{\text{ni,thr}} = 300 \# \text{liter}^{-1}$  ermöglicht eine Detektierung von simulierten Wolken unterhalb der Zirren. Neben einer zurückgehenden Anzahl an hohen Wolken nimmt die abgeleitete Oberflächentemperatur der nun tiefer liegenden detektierten Wolken zu, was eher an die Werten der Beobachtungsdaten reicht. Dieser Vorgang stellt eine manuelle Kalibrierung

des Simulationsprodukts an die Beobachtungsdaten dar und ermöglicht einen besseren Vergleich zwischen den detektierten Objekten mit niedrigen Oberflächentemperaturen.

Für den Schwellwert des Flüssigphasenanteils  $q_{nc,thr}$  in den Wolken zeigte sich keine Verbesserung in Richtung der Messung.

Eine Horizontalverteilung der integrierten Gesamtmasse von Wolkentropfen und Eispartikel ermöglicht das Detektieren von dichten Wolkengebieten, was mit einem lokalen Maximum in der integrierten kondensierten Masse einhergeht. Diese erstellte Verteilung gibt Aufschluss über die Lage von wolkenfreien oder bedeckten Gebieten.

Für die Erzeugung von Abkühlungsraten und somit für Übersättigungen über Wasser und über Eis bedarf es einer positiven Vertikalgeschwindigkeit  $w$ . Die Bestimmung der maximalen Vertikalgeschwindigkeit  $w_{max}$  und deren Horizontalverteilung liefert eine Abschätzung, wie stark Aufsteigen in dem betrachteten Gebiet vorherrscht.

Die Nukleation von Eispartikeln und Aktivierung von Wolkentropfen stellen nichtlineare Prozesse dar, weshalb die Information über die maximale Vertikalgeschwindigkeit mit zusätzlichen Informationen über deren Verteilung ergänzt wird. Sogenannte Boxplots fassen den Median, das 25. und 75. Quantil als Grenzen der Box, das 0.01 und 99.99-te Quantil als Enden der Antennen und alle anderen Ausreißer als Punkte zusammen. Dies ermöglicht einen visuellen Vergleich der Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit innerhalb eines Raumgebiets zu verschiedenen Zeitpunkten. Konvektion wird als ein kleinräumiger und kurzzeitiger Prozess angenommen, weshalb deren Häufigkeit in dem gesamten Raumgebiet und Zeit gering ist. Allerdings treten dabei extreme Vertikalgeschwindigkeiten auf, welche in den Boxplots in den äußeren Bereichen in Form der Ausreißer und als Quantile dargestellt sind. Die Quantile geben ein robusteres Maß für die Streuung der Vertikalgeschwindigkeit an, als die Ausreißer.

Da sich die Umgebungstemperatur mit der Höhe deutlich ändert, gibt eine vertikale Konzentrationsverteilung eines Stoffes Aufschluss in welchem Temperaturregime sich dieser befindet. Um die Variabilität sowohl in Zeit und Raum herauszufiltern erfolgt die Verwendung von zeit- und gebietsgemittelten Profilen.

Bei der Mittelwertbildung geht die Näherung einer Grundflächen identisch der einzelnen vertikalen Säulen an den Gitterpunkten ein, was bei der icosahedrischen Anordnung der Modellgitterpunkte von ICON und einem kleinen Ausschnittsgebiet gültig ist. Aufgrund der geländefolgenden Vertikalkoordinate, unterscheiden sich die geografische Höhe der unteren Modelllevels vor allem über Land. Dieser Umstand wird bei der horizontalen Mittelwertbildung durch eine Polation auf ein einheitliches Vertikalgitter beachtet.

## 5.3 Validierung der Modellergebnisse

Die mit den zuvor beschriebenen Konfigurationen durchgeführten Simulationen werden zunächst mit Messdaten verglichen um zu überprüfen, ob wesentliche Merkmale übereinstimmen. Daraus folgt eine Beurteilung, inwiefern das Modell die Beobachtung abbildet, um eine generelle Eignung

dieses Modellsetups für die weiteren Untersuchungen zu begründen. Ein alleiniges Versorgen mit Randdaten der freilaufenden Simulation sorgt nicht zwangsläufig für eine realitätsnahe Entwicklung innerhalb des Simulationsgebiets, da die hier entscheidenden Prozesse auf kleiner Raum- und Zeitskala ablaufen.

Als Beobachtungsdaten dienen die zuvor beschriebenen Satellitenprodukte. Die Ergebnisse der Simulation mit Vegetationsbrandaerosolen (withBB) werden mit den Beobachtungsdaten validiert.

### 5.3.1 Wolkenkondensat

Für die Beurteilung dient ein Vergleich zwischen den IR-Aufnahmen von Meteosat und dem integrierten Wolkenkondensat als Summe von Wolkenwassergehalt und Wolkeneisgehalt aus dem Simulationslauf mit Vegetationsbrandaerosole (withBB) (Abb. 5.7 und Abb. 5.8). Die Beobachtungs- und die Modellgrößen repräsentieren zwar nicht die selbe physikalische Größe, allerdings geben sie einen ersten anschaulichen Eindruck über die Existenz, Lage und kontinuierliche Entwicklung von Wolkenformationen.

Tiefe Wolken strahlen im infraroten Spektrum annähernd mit der selben Oberflächentemperatur wie die Erdoberfläche ab. Daher unterscheiden sich diese Wolken in den IR-Bildern nur schwach von der Erdoberfläche. Je niedriger die Wolkenoberseitentemperatur ist, desto heller erscheint deren Farbe im IR-Bild und desto deutlicher bildet sich der Kontrast zu der Erdoberfläche und den niedrigen Wolken heraus. Diese so hell dargestellten Wolkenfarben entsprechen einer großen Höhe in der Atmosphäre, weshalb der Vergleich sich zunächst auf die hohen Wolken konzentriert. Erscheinen hohe Wolken in kurzer Zeit ( $\sim 1$  Stunde) und auf einem kleinen Gebiet, weist dies auf das Vorhandensein einer dort befindlichen konvektiven Zelle hin, welche für die Entstehung dieser hohen Wolken sorgt. Da solche konvektive Zellen meist bei einem hohen Feuchtegehalt entstehen und diese Feuchte durch die vorliegenden starken lokalen Aufwinde auskondensiert bzw. sublimiert, sind sie als lokale Maxima im vertikalintegrierten Wolkenkondensat wiederzufinden. Die Vertikalintegration gibt somit Aufschluss über die gesamte Atmosphärensäule. Ein Unterscheiden in Wolkeneis und Flüssigwolkenwasser ist mit dieser Methode nur näherungsweise möglich, was mit dem Hinzuziehen einer Temperaturinformation später detaillierter erfolgt.

Das Modell wird mit einem möglichst idealen Anfangszustand zum 17.06.2018 00 UTC initialisiert, jedoch benötigen die im Modell beschriebenen Prozesse eine Einschwingzeit um wirksam zu werden. Dieses Verhalten zeigt sich im integrierten Wolkenwassergehalt in den ersten Stunden. Aus den anfangs groben Strukturen bilden sich kleinere und schärfer abgegrenzte Elemente heraus mit teilweise großen räumlichen Gradienten, was auf ein Wirken dieser Prozesse auf die kleinen Skalen schließen lässt. In der Zeit bis 06 UTC dominieren über dem Atlantik hauptsächlich tiefe Wolken, welche zwar auf dem Satellitenbild schwer zu erkennen sind, in dem Modell jedoch einen deutlichen Wolkenwassergehalt aufweisen. Den Satellitenbildern zufolge lösen sich über der Iberischen Halbinsel einzelne hohe Wolkenschleier bis in den Vormittag hin weiter auf. Aufgrund der schleierartigen Erscheinungsform scheinen diese Wolken einen niedrigen Wolkenkondensatgehalt aufzuweisen, was mit den meist wolkenfreien Gegebenheiten über Land in den Modelldaten gut übereinstimmt.

Im weiteren Verlauf des Vormittags bis 12 UTC ziehen die feinen eher meridional angeordne-

ten Wolkenstrukturen über dem Atlantik, wie auch Wolkenelemente nahe der Küste über dem Festland Richtung Nordwest ab, was die Simulation im Wolkenwassergehalt ebenfalls wiedergibt. Über dem restlichen Festland weisen sowohl die Radarbilder, wie auch die Simulation nur eine geringe Wolkenbedeckung auf. In letzterem beginnen sich die großräumigen und eher tiefen Wolkenformationen über dem Atlantik aufzulösen. Beginnend um 12 UTC setzt sowohl über der südwestlichen Iberischen Halbinsel, als auch über dem nordafrikanischen Gebiet die Bildung von hochreichender und lokal scharf abgetrennter Bewölkung ein, was die Satellitenbilder und auch die Simulation in Ort und Zeit übereinstimmend zeigen. Ebenfalls zeigen beide Datensätze einzelne konvektive Systeme im Norden und Osten Spaniens, wie auch das Entstehen eines Wolkenkomplexes über dem Atlantik bei  $35^{\circ}\text{N}$  und  $15^{\circ}\text{W}$ , in welches sich während der Nacht konvektive Systeme einlagern.

Im Laufe des Nachmittags bilden die konvektiven Systeme über Land großräumige Zirrenschirme, welche sich über Portugal bzw. Südspanien und über Nordafrika zu einer optisch dichten Wolkenformation zusammenschließen. Um 18 UTC weist der Wolkenschirm über Portugal in beiden Datensätzen eine nahezu kreisrunde Struktur auf, deren Durchmesser von  $\sim 300\text{km}$  und Position ebenfalls gut übereinstimmen. In den Abendstunden lässt die Neubildung von lokal hohen Wolkenstrukturen in dieser Region allmählich nach, was auf ein Abklingen der konvektiven Systeme schließen lässt. Sowohl in der Beobachtung und in der Simulation setzt bei dem Wolkenschirm ein Auflösen und Weiterziehen in nordwestlicher Richtung ein.

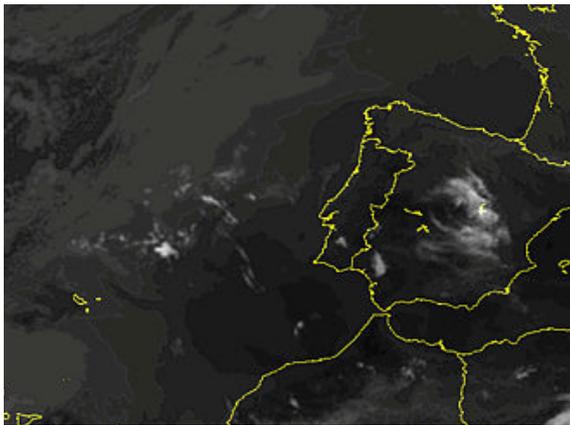
In der Nacht bedecken Wolkenausläufer Mittel- und Nordspanien und auch Teile des angrenzenden Atlantiks vor der portugiesischen Westküste. Einige Wolkenausläufer der Konvektion über Afrika ziehen ebenfalls über die Straße von Gibraltar in Richtung Norden ab. Allerdings zieht eine kleinere Formation mit hohen Wolken und hohem Wolkenwassergehalt aus der am Nachmittag vorwiegend konvektiv aktiven Region ebenfalls nach Nordwesten ab. Darin scheinen weitere Gewitterzellen eingelagert zu sein, was aus charakteristischen Strukturen in den Beobachtungen und Simulation folgt. Am 18.06.2017 00 UTC erreicht dieser Kern die Atlantikküste und zieht weiter Richtung Atlantik ab. Während dieses System sich abschwächt, zeigt der gebildete Wolkenkomplex über dem Atlantik in diesem Zeitraum in beiden Datensätzen übereinstimmend einen verstärkt konvektiven Charakter. Diese Entwicklung setzt sich an dem folgenden Tag fort, mit einer leichten Verlagerung Richtung Nordost und somit Richtung portugiesischer Küste.

Um 11 UTC sind die beiden Systeme deutlich über dem Atlantik zu erkennen, wobei die Satellitenbilder den markanten antizyklonal gekrümmten Wolkenausläufer in den Simulationsdaten nicht aufweisen. Auf dem Festland überwiegen übereinstimmend vereinzelte Wolkenstrukturen ohne konvektiven Charakter.

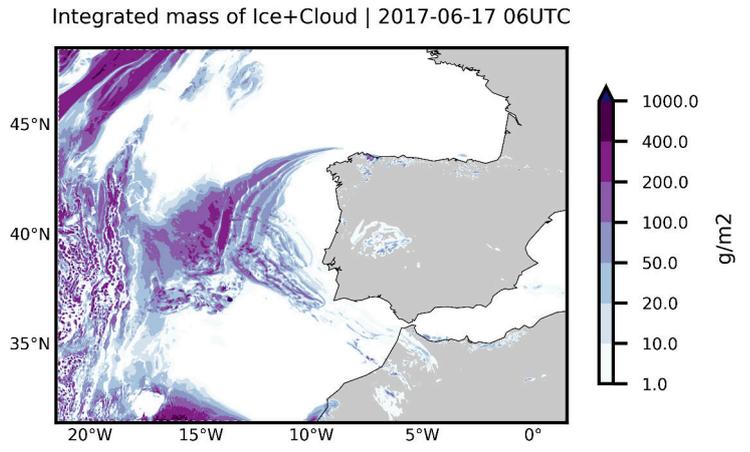
Ab 13 UTC beginnend zeigt sich wie am Vortag eine starke Entwicklung von konvektiver Wolkenbildung über der Iberischen Halbinsel und über Nordafrika. Beide Datensätze deuten eine schwächere Ausprägung des entstehende Wolkenschirms in Südwestspanien als am Tag zuvor an. Die Wolkenformationen bewegen sich mit deutlich höherer Verlagerungsgeschwindigkeit in nördlicher Richtung, was eine Organisation der neuen Konvektion erschwert. Nach 18 UTC entspricht die Zugbahn von immer neu entstehenden Gewittern etwa der des Vortags. In nordwestlicher Richtung ziehend entwickeln sich bis 22 UTC weitere neue Gewitter in der Mitte Portugals. Währenddessen nähert sich das Wolkensystem auf dem Atlantik immer mehr der Küste an und zeigt konvektive Aktivität durch Bildung von hochreichenden Wolken an dessen südlichem Ende. In den Simulati-

## 5 Einfluss von Waldbrandaerosolen auf die Eisbildung in Wolken

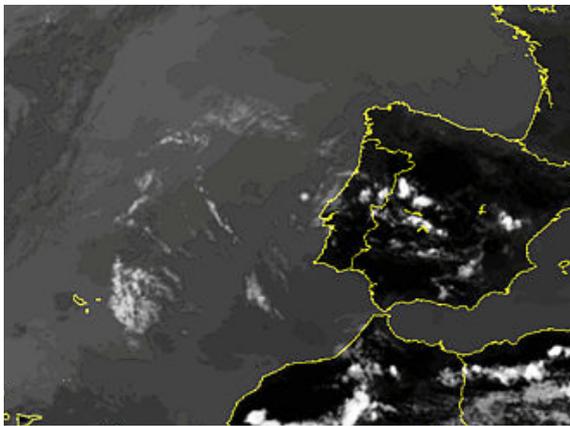
onsdaten ist diese Annäherungsbewegung schwächer ausgeprägt, als es die Satellitenbilder zeigen.



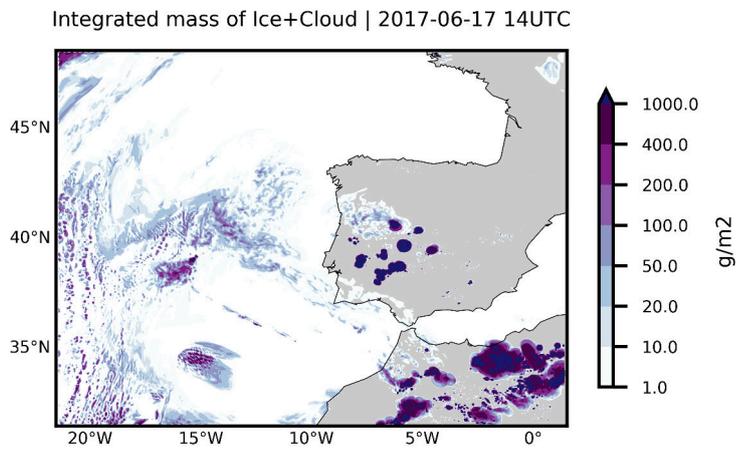
(a) 17.06.2017 06 UTC



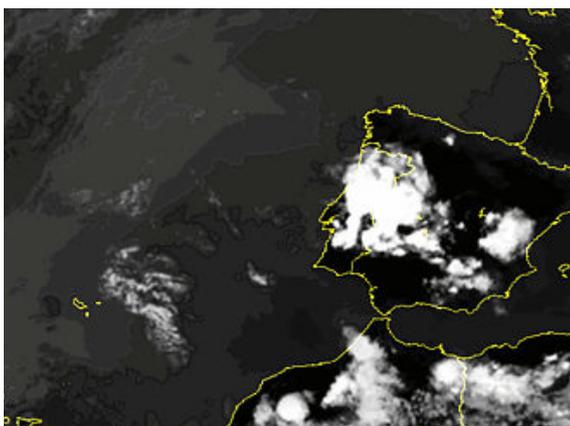
(b) 17.06.2017 06 UTC



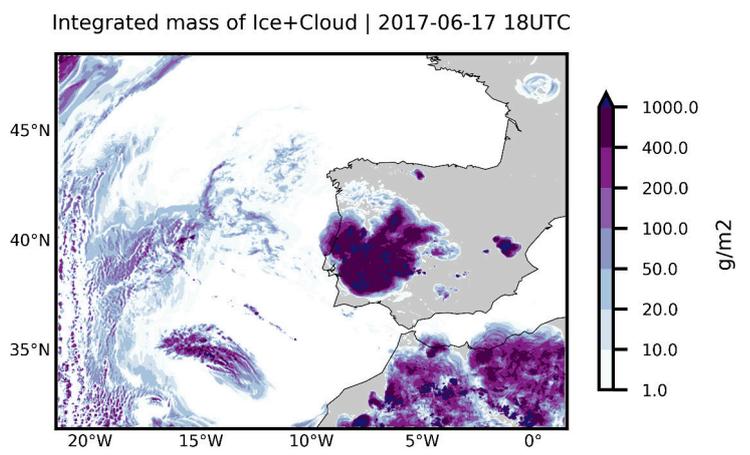
(c) 17.06.2017 14 UTC



(d) 17.06.2017 14 UTC



(e) 17.06.2017 18 UTC



(f) 17.06.2017 18 UTC

Abbildung 5.7: **Meteosat IR-Kanal und Simulation: 17.06.2017** (a), (c), (e) zeigen die Satellitenbilder des Meteosat IR-Kanals (von Niederschlagsradar.de (2018)); (b),(d),(f) zeigen den vertikal integrierten Wolkenwassergehalt (Flüssig- und Eisphase) aus den ICON-ART Simulation (withBB).

5 Einfluss von Waldbrandaerosolen auf die Eisbildung in Wolken

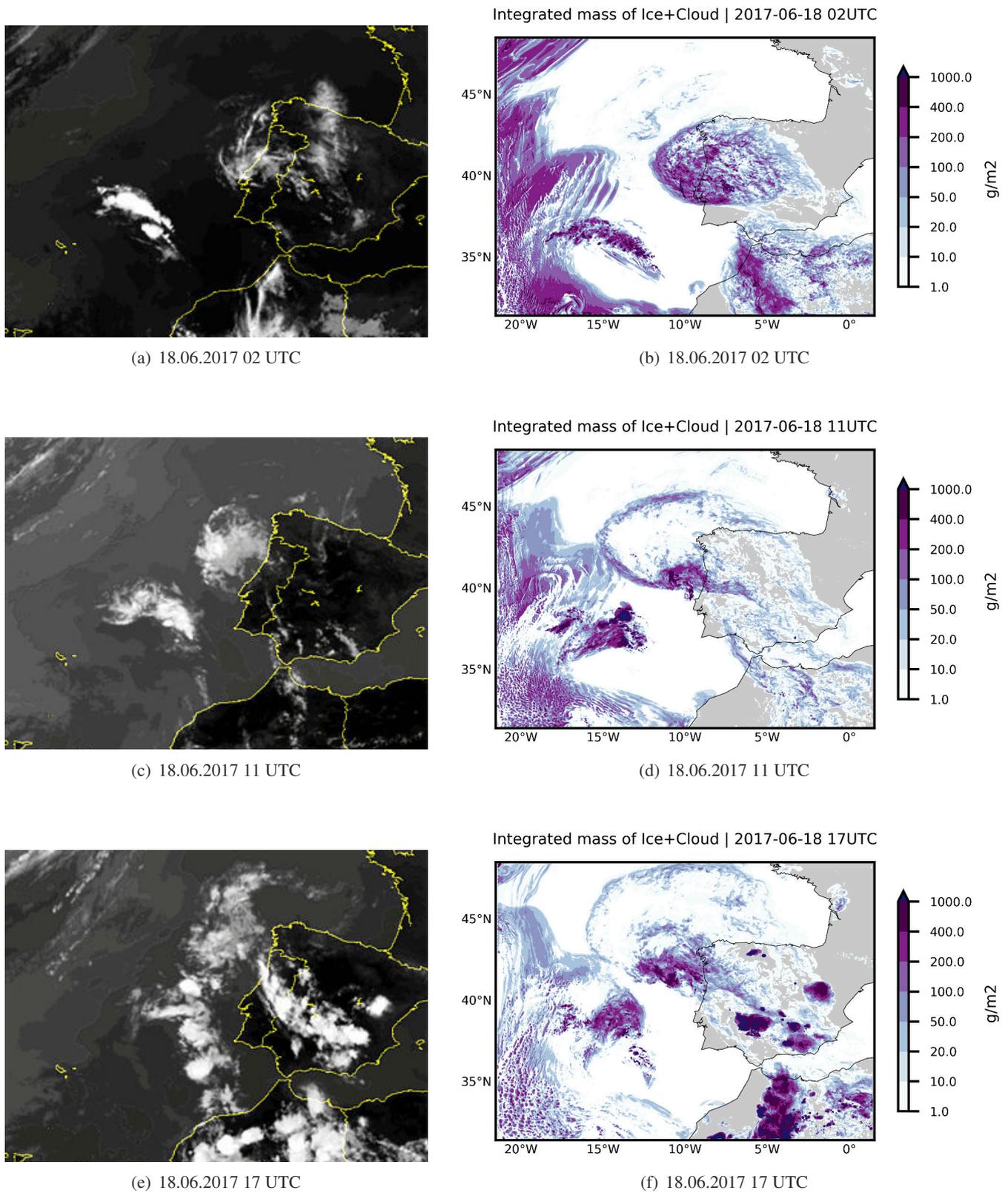


Abbildung 5.8: **Meteosat IR-Kanal mit Simulation: 18.06.2017** (a), (c), (e) zeigen die Satellitenbilder des Meteosat IR-Kanals (von Niederschlagsradar.de (2018)); (b),(d),(f) zeigen den vertikal integrierten Wolkenwassergehalt (Flüssig- und Eisphase) aus den ICON-ART Simulation (withBB).

### 5.3.2 Temperatur an der Wolkenoberseite

Der vorige qualitative Vergleich wird um die quantitative Größe der Wolkenoberseitentemperatur  $CTT$  erweitert. Als Beobachtung dienen MODIS-Daten, welche die  $CTT_{obs}$  als Momentaufnahmen für das Untersuchungsgebiet liefern. Die  $CTT_{mod}$  aus der Simulation liegt stündlich vor, weshalb die zeitlich nächsten Datensätze aus Beobachtung und Modell verglichen werden.

Die Temperatur gibt Aufschluss über die Höhe der Wolkenoberseite. In Abbildung 5.9 bestätigen diese Daten das Vorhandensein von einer nahezu geschlossenen tiefen Wolkendecke über weiten Teilen des Atlantiks zu allen drei Vergleichszeiten. Dabei treten Oberflächentemperaturen mit Werten über 280 K auf, welche an der östlichen Kante des Wolkengebiets auch Werte über 290 K erreichen, was annähernd der Meeresoberflächentemperatur in diesem Gebiet entspricht. Die Struktur dieser verschiedenen Temperaturbereiche stimmt über weite Gebiete in den Simulationsdaten mit den Beobachtungsdaten überein, falls diese vorhanden sind oder nicht von höheren Wolkenstrukturen überdeckt werden. Die Simulationsdaten weisen am 17.06.2017 um 23 UTC und am 18.06.2017 um 11 UTC zwar auf das Vorhandensein von warmen Wolken mit  $CTT_{mod} \approx 260$  K auf dem Atlantik hin. Allerdings reicht diese Wolkenschicht in den Beobachtungsdaten bis an die portugiesische Küste, während sich die Kante dieses tiefliegenden Wolkenfelds in den Simulationsdaten deutlich weiter auf dem Atlantik befindet.

Die tiefsten Temperaturen werden in Zusammenhang mit konvektiven Ereignissen erreicht, deren Minimaltemperaturen in beiden Datensätzen in den selben Temperaturbereichen  $CTT < 220$  K liegen.

Während das Satellitenprodukt um 13:45 UTC nur vereinzelte hohe Wolken mit Temperaturen  $CTT_{obs} < 230$  K wiedergibt, liefert die Simulation um 14 UTC eine wesentlich höhere Anzahl und Bedeckung solch hoher Wolken, was über Land mit der einsetzenden Konvektion gut übereinstimmt. Nach neun weiteren Stunden treten am 17.06.2017 um 23:10 UTC sowohl der Wolkenkomplex bei  $35^\circ$ N und  $15^\circ$ W und die Zirrenschirme über Portugal und Nordafrika in beiden Datensätzen deutlich hervor. Der in den Simulationsdaten auftretende Zirrenschirm über Land nimmt eine ähnliche Fläche ein, welcher jedoch über die gesamte Fläche niedrigere und homogen verteilte  $CTT_{mod}$  aufweist, im Gegensatz zu den höheren und eher heterogen verteilten  $CTT_{obs}$ . Die MODIS-Daten weisen ebenfalls auf Wolkenlücken hin, während die Simulation einen geschlossenen Wolkenschirm aufzeigt. Die Oberflächentemperatur und Struktur des Wolkenkomplex über dem Atlantik stimmt in beiden Datensätzen nahezu überein.

Am Folgetag um 11:10 UTC zeigen die Satellitendaten ein südliches und ein nördlich liegendes abgegrenztes Gebiet hoher Bewölkung mit Temperaturen  $CTT_{obs} < 250$  K vor der Küste Portugals. Die Simulation stellt den südlichen Wolkenkomplex etwa  $5^\circ$  nördlicher dar, mit annähernd übereinstimmender Wolkenoberseitentemperatur. Ein nördlicher Wolkenkomplex zeichnet sich allerdings nicht in der Klarheit wie in den Beobachtungen ab. Die Wahl eines anderen Schwellwerts von  $q_{ni,thr} = 0.1 \text{ \# liter}^{-1}$  in Abbildung A.1(f) liefert zwar eine Wolkenbedeckung im Bereich des nördlichen Wolkenkomplexes, allerdings wird die Wolkenbedeckung womöglich überschätzt. Somit bleibt die Kalibrierung ein Versuch einer besseren Vergleichbarkeit zwischen Beobachtung und Simulation, welche nicht in allen Fällen zu einer Verbesserung führt.

Gründe für diese zum Teil deutlichen Abweichungen liegen möglicherweise in der Unsicherheit beider Produkte. Neben den zuvor aufgeführten Sensitivitäten des Simulationsprodukts, weisen Satellitenretrievals Probleme bei der Detektion von hohe Wolken mit geringen Wolkentropfenanzahlen auf. Dadurch werden optisch dünne Zirren nur schwer oder gar nicht erkannt. Ebenfalls kann die Messgeometrie zu einem Verzerren führen, was zu einer Verringerung der Ergebnisqualität führt, da nicht mehr die vertikale Säule detektiert wird. Dieser Effekt zeigt sich in einem Verwischen der klaren Konturen am Rand des Beobachtungsgebiets (z.B. 5.9(c)).

### 5.3.3 Vegetationsbrandaerosole

An den Stellen der detektierten Vegetationsbrände findet in der Simulation eine Freisetzung von Ruß als Aerosol nach der beschriebenen Parametrisierung in Abschnitt 3.4 statt. Die räumliche Verteilung von Ruß ist wesentlich dafür verantwortlich, wo dieser wirken kann. Da keine in situ-Messungen vorliegen, dient die aerosoloptische Dicke (engl. Aerosol Optical Depth, AOD) als Maß für die Rußkonzentration in den Fernerkundungsdaten. In ICON-ART sind allerdings keine Absorptionseigenschaften des Vegetationsbrandaerosols hinterlegt, weshalb keine aerosoloptische Dicke abgeleitet werden kann. Die AOD beschreibt das Integral über den Extinktionskoeffizienten der vorhandenen Aerosole in der vertikalen Säule. In erster Näherung kann davon ausgegangen werden, dass diese Dicke proportional zu der Menge an vorhandenen Aerosolen in der Säule ist. Die von MODIS gemessene AOD am 18.06.2017 (Abb. 5.10(a)) zeigt in dem Gebiet vor der portugiesischen Küste deutlich erhöhte Werte (rot), welche sowohl nach Süden als auch nach Norden und Osten einen starken Gradienten aufweisen. Der simulierte Ruß zeigt über die horizontale Verteilung der integrierten Säulenmasse (Abb. 5.10(b)) eine vergleichbare Struktur, welche sich ebenfalls hauptsächlich auf die Iberische Halbinsel und den angrenzenden Atlantik erstreckt. Nach Süden weist der integrierte Säulengehalt von Ruß bei etwa 37°N einen starken Konzentrationsgradienten auf, was vergleichbar mit der AOD in den Satellitenmessungen ist. Bei den nördlichsten Ausläufer der dargestellten Rußkonzentration weist die AOD ebenfalls hohe Werte auf. Sowohl die Satellitendaten als auch die Simulationsdaten zeigen die Existenz von größeren Mengen an Rußaerosolen in Regionen mit hohen Wolken und Konvektion, was die Untersuchung ihrer gegenseitigen Einflussnahme motiviert und ermöglicht.

Allerdings liefert die AOD in Abbildung 5.10(a) vor der Küste Afrikas und südlich der Iberischen Halbinsel ebenfalls mittlere bis hohen Werten. Da deren maximalen Werte direkt vor der afrikanischen Küste auftreten, liegt die Vermutung nahe, dass sich dort Wüstenstaub in der Atmosphäre befindet. Das Klassifizierungsverfahren von CALIOP bestätigt diese Vermutung und identifiziert 32 Stunden zuvor bereits eine ausgeprägte atmosphärische Schicht aus Staub, verschmutztem Staub und Rauch in dieser Region (Abb. 5.11). Somit kann Wüstenstaub nicht vollständig als auftretendes Aerosol ausgeschlossen werden. Die Konzentrationen scheinen jedoch nach Norden hin zurückzugehen und dort eher als Hintergrundaerosol zu wirken. Dieser Befund unterstützt Verwendung einer Hintergrundstaubkonzentration bei der Wolkeneisparametrisierung im Rahmen dieser Modellstudie.

Aus den gemittelten Vertikalprofilen über beide Simulationstage in Abbildung 5.12 zeigt sich die höchste Rußanzahlkonzentration von  $\sim 1000 \text{ \# liter}^{-1}$  über dem Quellgebiet in den unteren 2 km

Höhe. Flugzeugmessungen nach Capes et al. (2008) weisen typische Anzahlkonzentrationen von  $\sim 10^7 \text{ \# liter}^{-1}$  aller Kondensationskeime in den Rauchfahnen von Vegetationsfeuer auf. Ruß stellt dabei jedoch nur einen Teil der gesamten Aerosolanzahl dar, weshalb eine typische Anzahlkonzentration für Ruß unter  $10^7 \text{ \# liter}^{-1}$  liegt. Auf die Masse bezogen beträgt der Rußanteil nach dieser Studie 10 – 16%. Deshalb birgt ein direkter Vergleich dieser in situ-Messdaten und den Modelldaten Unsicherheiten, da zusätzlich unterschiedliche Referenzgebiete und -volumen verwendet werden. Ein exemplarischer Wert an einem Modellgitterpunkt ergibt eine maximale Anzahlkonzentration von  $\sim 10^5 \text{ \# liter}^{-1}$  über einer simulierten Rußquelle, was zwei Größenordnungen unter den Referenzmessungen liegt. Unter Berücksichtigung der Unsicherheiten der Messdaten erscheint dieser Wert jedoch plausibel.

Des Weiteren befinden sich sowohl im Quellgebiet über Land wie auch über dem Ozean die höchste Menge an Rußaerosolen in den unteren 4 km der Atmosphäre. Somit ist anzunehmen, dass die häufigsten berechneten Emissionshöhen aus dem Rauchfahnenmodell in den unteren 4 km liegen, da dort die höchsten Rußkonzentrationen zu beobachten sind. Eine genaue Statistik über die berechneten Emissionshöhen liegt nicht vor. Die aus den Vertikalprofilen von Ruß abgeschätzten Emissionshöhen, stimmen jedoch mit Walter et al. (2016) überein, bei welchen über 90% der modellierten Emissionshöhen unter 4 km und alle Emissionshöhen unter 8.6 km liegen. Demnach gelangt nach der Emission der Ruß durch einen anschließenden Vertikaltransport in Höhen zwischen 8 km und 14 km. Hier stellen die konvektiven Aufwinde einen effektiven und hochreichenden Transport dar.

Trotz der Unsicherheiten in den Beobachtungsdaten und Modelldaten, lassen sich folgende charakteristischen Entwicklungen übereinstimmend wiederfinden:

1. Ein konvektives System entsteht über der Iberischen Halbinsel und zieht Richtung Atlantik. Die genaue Höhe der simulierten Wolkenformationen bleibt mit Unsicherheiten behaftet, wobei die Abschätzungen realistische Werte liefern und durch Beobachtungen bestätigt werden können.
2. Über dem Atlantik entwickelt sich ein zusätzlicher Wolkenkomplex mit eingelagerter Konvektion.
3. Tiefe Wolken befinden sich nahe der Meeresoberfläche.
4. Vegetationsbrandaerosole gelangen in konvektiven Regionen.
5. Rußaerosole treten in großen Höhen  $> 10 \text{ km}$  mit Wolkeneis auf.
6. Im Untersuchungsgebiet befindet sich eine Hintergrundstaubkonzentration.

## 5 Einfluss von Waldbrandaerosolen auf die Eisbildung in Wolken

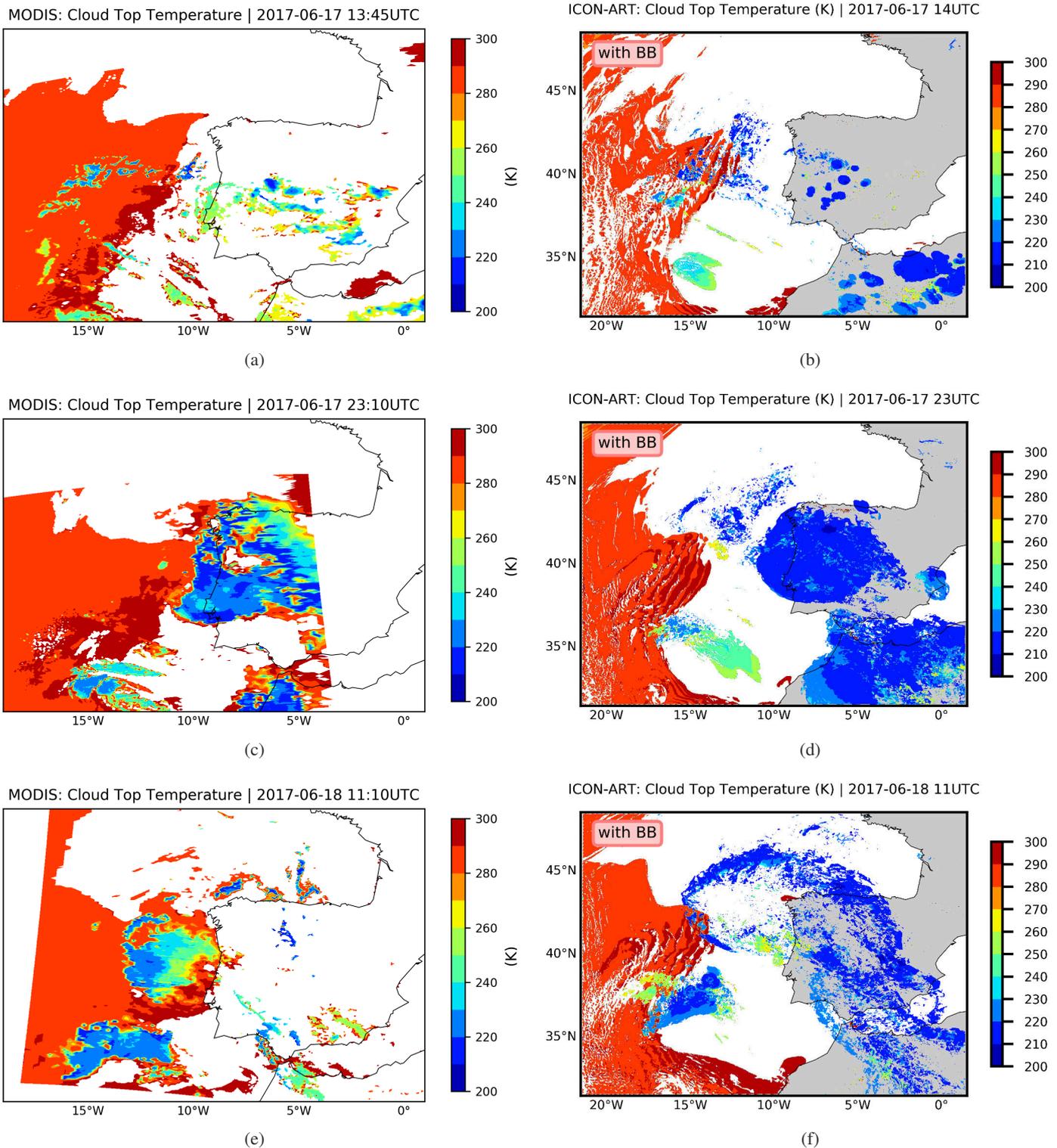


Abbildung 5.9: **Wolkenoberseitentemperatur von MODIS und ICON-ART.** (a), (c), (e) zeigen die Wolkenoberseitentemperatur von MODIS; (b), (d), (f) stellen eine abgeleitete Wolkenoberseitentemperatur aus den Simulationen mit ICON-ART und Vegetationsbränden dar. Hierfür wird ein Schwellenwert von  $q_{ni,thr} > 300 \text{ \# liter}^{-1}$  verwendet. Die MODIS-Daten sind für diese Zeitpunkte für das gesamte Gebiet nicht flächendeckend vorhanden.

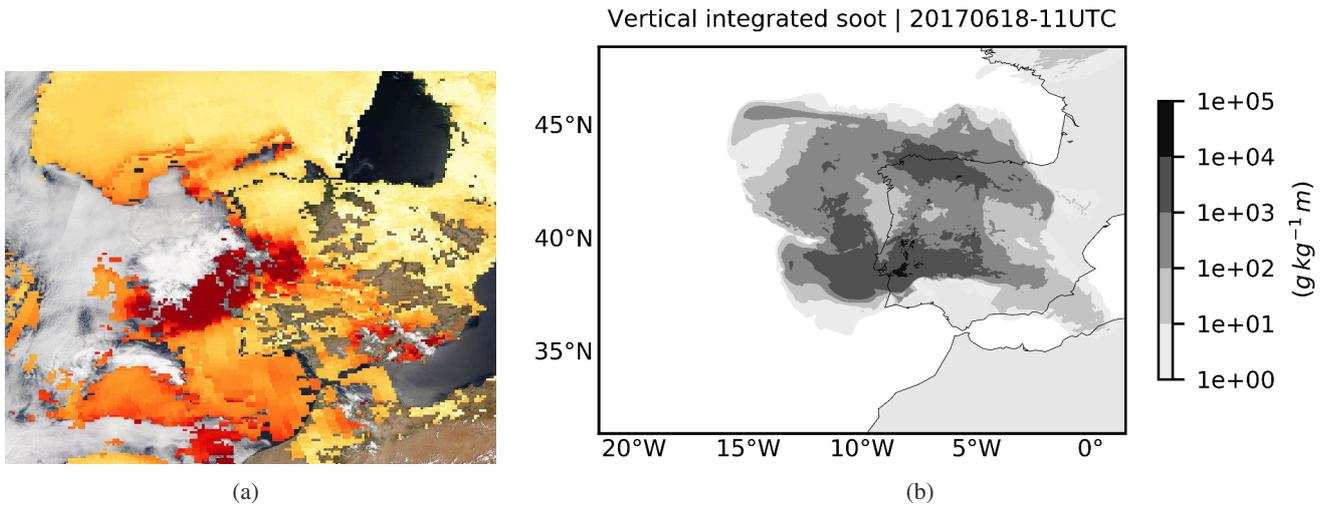


Abbildung 5.10: AOD von MODIS und modellierte Säulenmasse von Ruß am 18.06.2017, 11UTC (a) Aerosoloptische Dicke, wobei die Farbskala von qualitativ niedrigen Werten (gelb) bis hohen Werten (dunkel rot) reicht. (b) Vertikalintegral von Ruß simuliert mit ICON-ART (withBB).

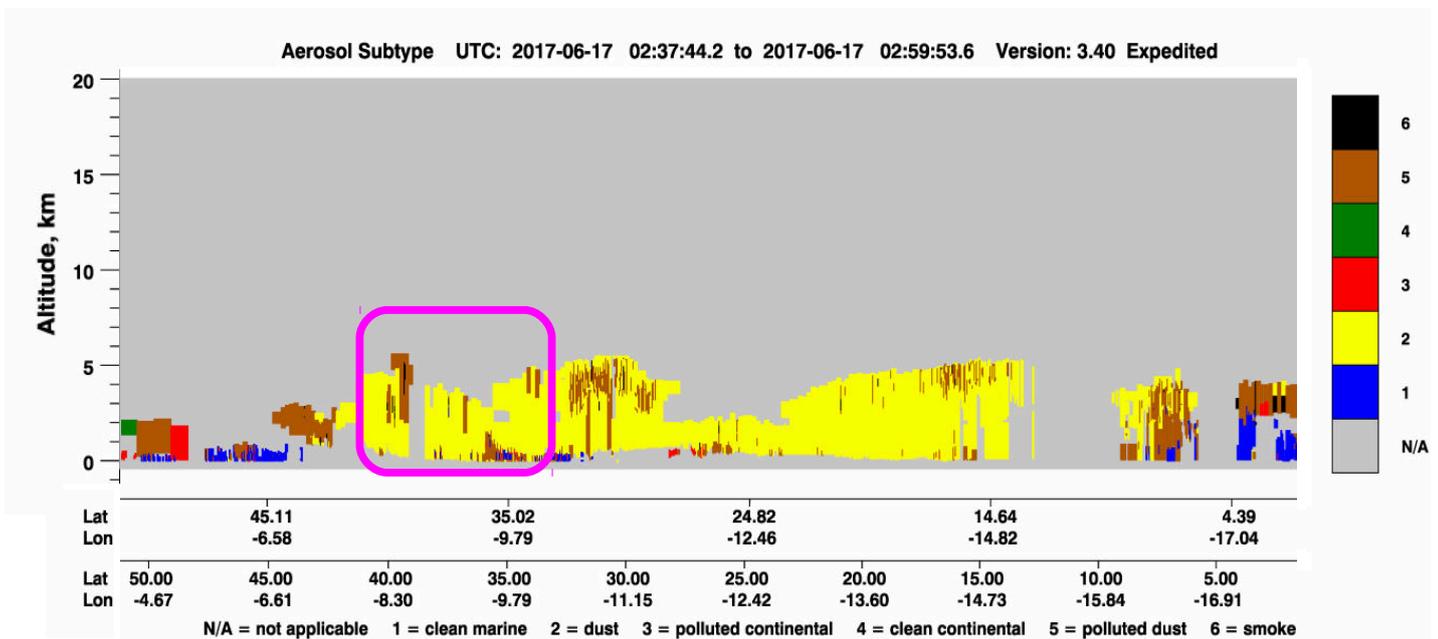


Abbildung 5.11: CALIOP Aerosolklassifizierung am 17.06.2017. Der Ausschnitt zeigt bis in 5 km Höhe eine Aerosolschicht aus Staub, verschmutztem Staub und Rauch über dem Gebiet der Iberischen Halbinsel (pinke Umrandung). (bearbeitet von [www-calipso.larc.nasa.gov](http://www-calipso.larc.nasa.gov), Zugriff: 03.01.2018)

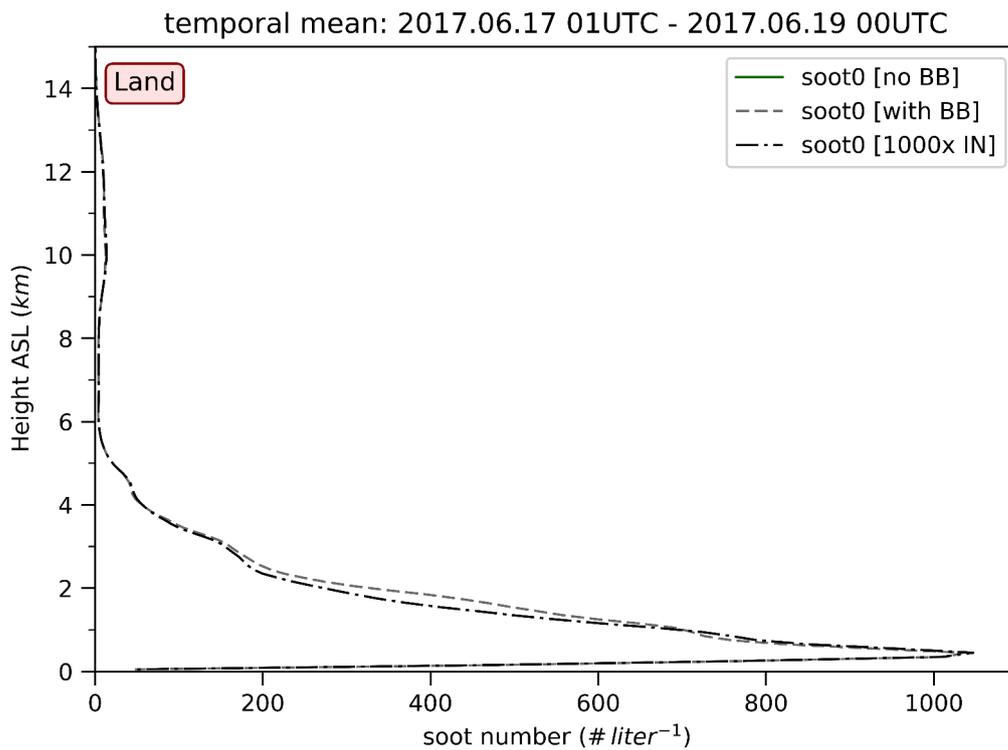
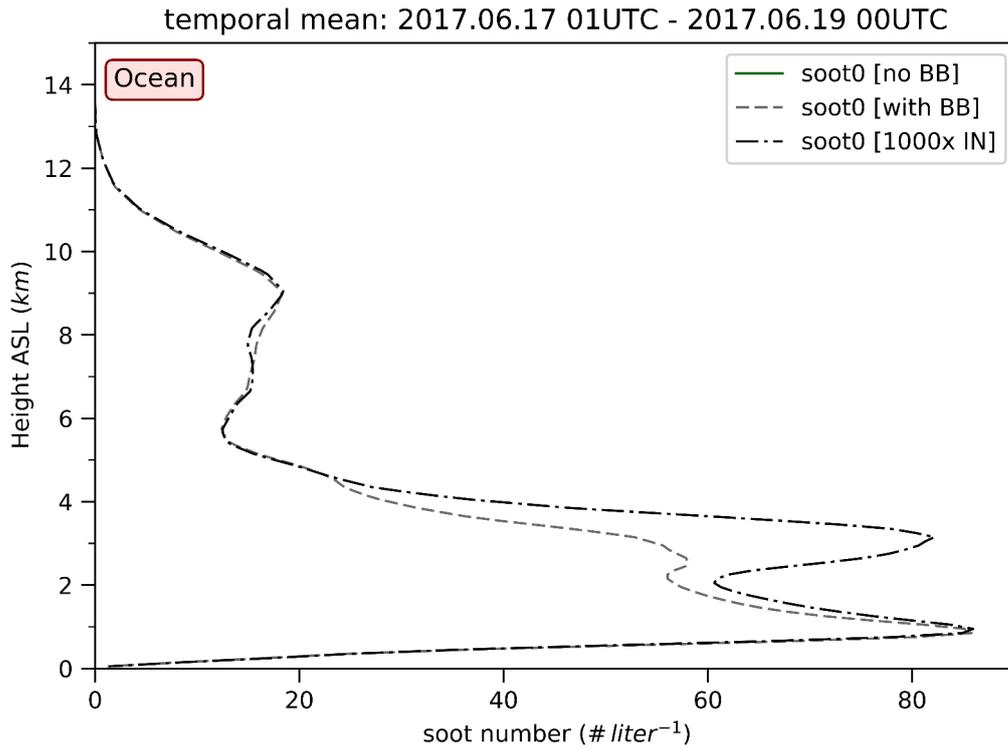


Abbildung 5.12: **Räumlich und zeitlich gemittelt**es Vertikalprofil der Rußanzahlkonzentration. Die über den gesamten Simulationszeitraum von 17.06.2017 bis 18.06.2017 und die jeweiligen Teilgebiete (a) Ozean (b) Land gemittelte Anzahlkonzentration von Vegetationsbrandaerosolen  $q_i$ . Pro Gebiet sind die Profile der zwei durchgeführten Sensitivitätsläufe separat aufgetragen, wobei der Referenzlauf ohne Vegetationsbrände (noBB) keine Konzentrationen aufweist.

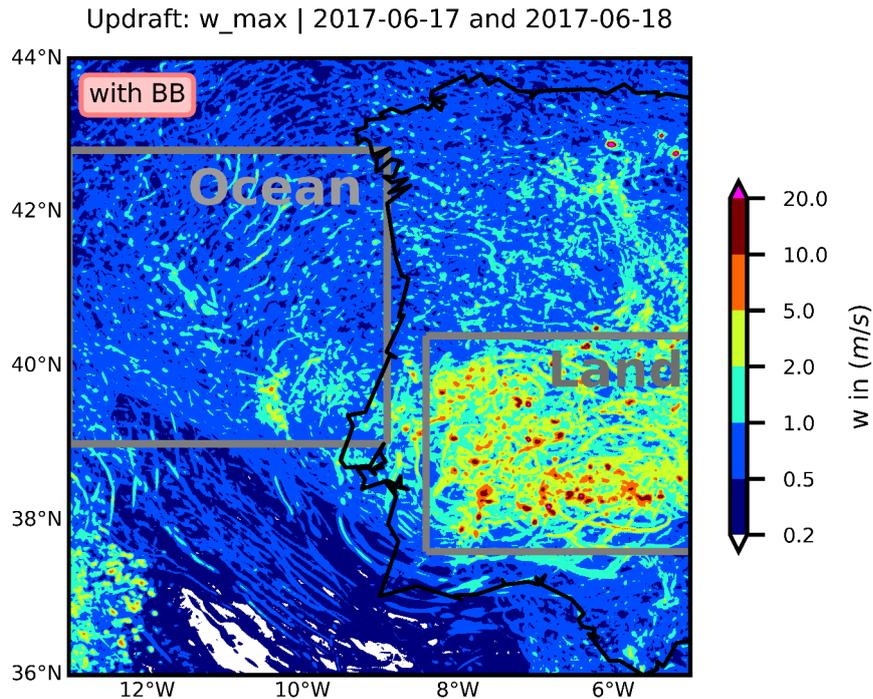


Abbildung 5.13: **Maximale Aufwinde mit Auswertebereichen.** Die maximale Vertikalgeschwindigkeit in der Region um Portugal ermittelt über den Zeitraum 17.-18.06.2017 aus der Simulation mit ICON-ART (withBB). In den mit „Ozean“ und „Land“ gekennzeichneten rechteckigen Gebieten findet eine weiterführende Analyse statt.

## 5.4 Wirkung von Ruß auf Wolkeneis

Für diese Untersuchung werden ausschließlich die durchgeführten Simulationsläufe als Datengrundlage herangezogen.

Für die Analyse erfolgt zunächst eine Unterteilung der gesamten Modellldomäne in zwei Teilgebiete, die durch charakteristische Eigenschaften gekennzeichnet sind. Das Gebiet „Ozean“ definiert einen Ausschnitt vor der portugiesischen Küste, in welchem sowohl hohe Wolken als auch erhöhte Rußkonzentrationen gemeinsam auftreten (Abb. 5.10). Über dem südwestlichen Teil der Iberischen Halbinsel finden starke konvektive Prozesse statt, welche sowohl die Beobachtungsdaten, als auch die Simulationsdaten wiedergeben (Abschnitt 5.3). Die aus den Simulationsdaten ermittelte maximale Vertikalgeschwindigkeit in Abbildung 5.13 verdeutlicht die horizontale Verteilung der Konvektion 5.13. Daraus definiert sich das zweite Teilgebiet „Land“, welches die Hauptaktivität der Konvektion umfasst. Über diese beiden Gebiete wird der Zeitraum von 17.-18.06.2017 zunächst hinsichtlich der charakteristischen Entwicklung von Wolkenkondensaten untersucht, um darauf aufbauend den Einfluss von Ruß genauer beurteilen zu können.

Der horizontale Mittelwert über die jeweiligen Gebiete der spezifischen Masse von Wolkeneispartikel  $q_i$  ergibt ein mittleres Wolkeneisprofil, woraus die Verteilung von Eiswolken innerhalb des Gebiets identifiziert wird. Aus einer zusätzlichen Mittelwertbildung über die gesamte Simu-

Tabelle 5.3: Sensitivität der Wolkeneismasse auf Vegetationsbrände.

	Ozean	Land
$\int (q_{i,\text{noBB}}) dz$	72.16 g kg <sup>-1</sup> m	272.75 g kg <sup>-1</sup> m
$\int (q_{i,\text{withBB}}) dz$	72.62 g kg <sup>-1</sup> m	263.31 g kg <sup>-1</sup> m
$\int (q_{i,1000\times\text{IN}}) dz$	72.69 g kg <sup>-1</sup> m	263.00 g kg <sup>-1</sup> m
$\int (q_{i,1000\times\text{IN}} - q_{i,\text{noBB}}) dz$	0.51 g kg <sup>-1</sup> m	-9.75 g kg <sup>-1</sup> m

lationszeit folgt eine sowohl räumlich als auch zeitlich mittlere Verteilung von Wolkeneispartikel über dem Meer und über Land (Abb. 5.14).

In Höhen zwischen 4 und 15 km treten große Massen an Eispartikeln auf, wobei sowohl die maximale Massenkonzentration als auch die Ober- und Unterkante der Eisschicht über Land etwa einen Kilometer nach oben verschoben ist. Neben dieser unterschiedlichen Höhenposition, zeigen auch die absoluten Werte der Eismassen Unterschiede zwischen den zwei Gebieten. Die vertikalintegrierte Wolkeneismasse ist über Land um den Faktor  $\sim 3.7$  höher als über dem Ozean, was in dieser Größenordnung für alle Sensitivitätsläufe zutrifft (Tab. 5.3).

Der Verlauf der Eismassenprofile aller Simulationsläufe unterscheidet sich hauptsächlich im Bereich der maximalen Masse in etwa 11 km Höhe. Dabei zeigen beide Sensitivitätsläufe einen nahezu identischen Verlauf in den jeweiligen Gebieten, trotz einer um den Faktor 1000 veränderte Nukleationskeimanzahl von Ruß. Im Vergleich zu dem Referenzlauf zeigen die Sensitivitätsläufe Unterschiede in der Wolkeneismasse, welche im Maximum 4% betragen. Aus der Abbildung 5.14 folgt qualitativ der Befund, dass sich über Land weniger Wolkeneis bei vorhandenen Vegetationsbrandaerosole befindet, wohingegen über dem Ozean weniger Wolkeneis vorhanden ist. Dieses gegensätzliche Verhalten belegt Tabelle 5.3, wonach über dem Ozean die Wolkeneismasse um 0.51 g kg<sup>-1</sup> m bzw. 0.7% bei Berücksichtigung der Vegetationsbrandaerosole zunimmt. Über Land geht die Wolkeneismasse um 9.75 g kg<sup>-1</sup> m bzw. 3.6% zurück. Somit ist durch das Vorhandensein von Ruß über Land eine relative mittlere Zunahme der Wolkeneismasse zu verzeichnen und über dem Ozean eine Abnahme der Wolkeneismasse.

Für die weitere Untersuchung der unterschiedlichen Höhen der Eisschicht und dem gegensätzlichen Verhalten bezüglich der Sensitivität auf Ruß, folgt eine genauere Betrachtung der zeitlichen Entwicklung der Wolkeneismasse und dem Wolkenwassergehalt in den beiden Untersuchungsgebieten. Hierfür wird das Zeitintervall für die Mittelwertbildung von zuvor 48 Stunden auf drei Stunden reduziert und es entstehen 16 Intervalle mit jeweils dreistündigen Mittelwerten. Dadurch gehen weiterhin alle stündlich vorliegenden Simulationsdaten in die Auswertung ein.

#### 5.4.1 Wolkenkondensat in Untersuchungsgebieten

Die Analyse beschränkt sich zunächst auf den Simulationslauf ohne Vegetationsbrandaerosole (noBB), welcher die hier wesentlich auftretenden Charakteristika aller Simulationsläufe repräsentativ darstellt. Dafür werden die zwei Gebiete „Land“ und „Ozean“ im Folgenden gesondert untersucht.

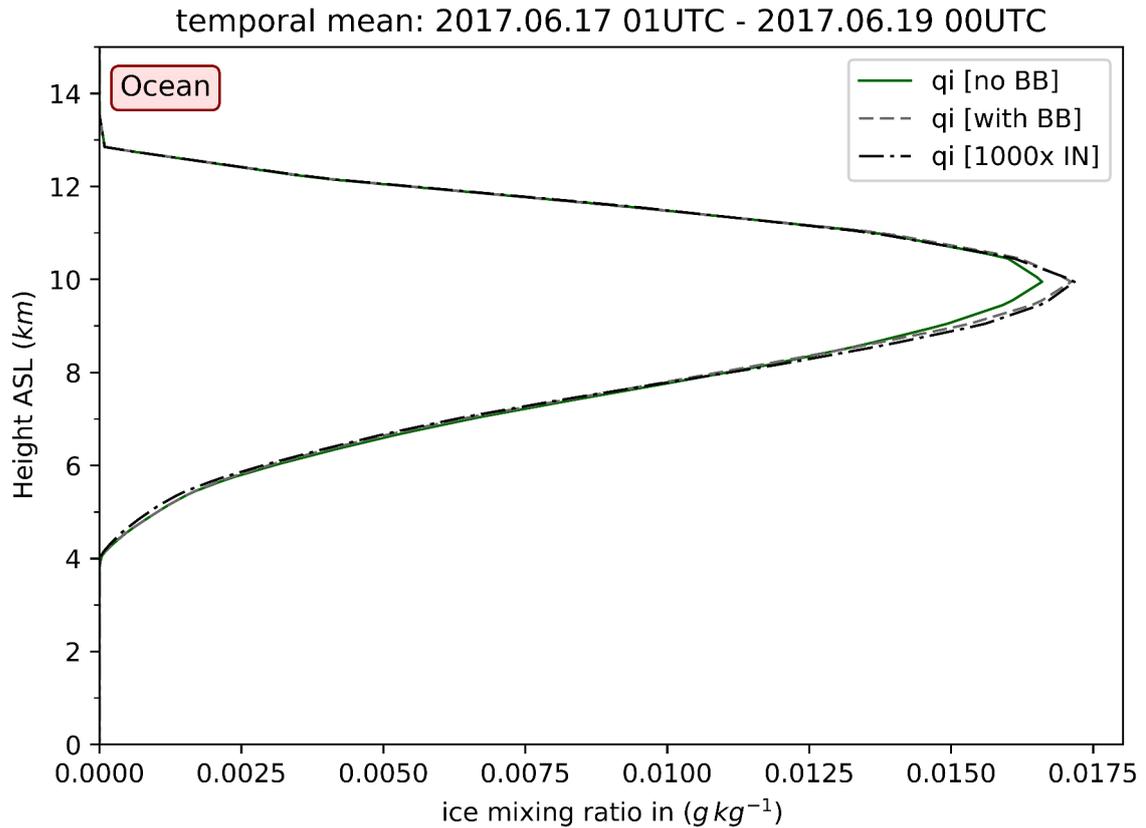
Vor allem über Land erzeugt die Konvektion durch starke Aufwinde die erforderlichen Abkühlungsraten und Übersättigungen, welche für die Wolkeneisentstehung benötigt werden. Während Abbildung 5.13 nur die Maximalwerte der Vertikalgeschwindigkeit über den gesamten Zeitraum betrachtet, stellt Abbildung 5.16 zusätzlich die Verteilung der vorherrschenden Vertikalwinde in den Teilgebieten über jeweils drei Stunden in Form von Boxplots dar. Da Konvektion durch starke Auf- und Abwinde und als kleinräumiges Phänomen zu charakterisieren ist, vergrößert sich die Gesamtstreuung der Vertikalgeschwindigkeit oder die Zunahme der 0.01%- bzw. 99.99%-Quantil bei einsetzender Konvektion.

Die hier betrachteten Boxplots 5.16 bestätigen die in vorigen Analysen festgestellte stärkere konvektive Aktivität über Land. Dort erreicht die maximale Aufwindgeschwindigkeit Werte von über  $30 \text{ m s}^{-1}$  und die Abwinde weniger als  $-12 \text{ m s}^{-1}$ . Bezogen auf das vorige Zeitintervall nimmt ab 13-15 UTC an beiden Tagen die gesamte Streuung und der 0.01 %-99.99%-Quantilsabstand über Land deutlich zu. Dies belegt das Entstehen von konvektiven Vorgängen in Übereinstimmung mit den vorigen Analysen. Der Interquartilsabstand (0.25-Quartil bis 0.75-Quartil) vergrößert sich jedoch nur um  $0.1 \text{ m s}^{-1}$ , was für eine geringe Zunahme der gesamten Vertikalzirkulation in dem Gebiet spricht. Die stark konvektiven Vorgänge halten an und klingen in den folgenden drei Zeitintervallen bis 21 UTC kontinuierlich ab. Am Folgetag erzeugt die Konvektion zwar weniger hohe Vertikalgeschwindigkeiten, allerdings hält deren Intensität länger an. Die Zunahme und das Abklingen der Vertikalgeschwindigkeiten folgt somit einem ausgeprägten Tagesgang. Beim Hinzuziehen der dreistündig gemittelten Vertikalprofile von Wolkeneis in Abbildung A.3 fällt die starke Zunahme der Wolkeneismasse mit Einsetzten der Konvektion am 17.06.2017 um 13-15 UTC auf und bestätigt so die Annahme der starken Wolkeneisbildung durch Konvektion. Selbiger Zusammenhang zeigt sich auch am Folgetag über Land, jedoch mit einer schwächeren Eismassenzunahme während der Konvektion, die im Vergleich zum Vortag weniger stark auftritt. Die gemittelten Temperaturprofile bestätigen eine starke Erwärmung der unteren Luftschichten, welche Temperaturen von nahezu  $40^\circ \text{ C}$  am Erdboden erreichen (Abb. A.11). Die maximalen Temperaturwerte, welche in diesem Gebiet auftreten, liegen vermutlich deutlich über den durchschnittlichen  $40^\circ \text{ C}$ . Diese stark erhitze bodennahe Luftschicht fördert ein spontanes freies Aufsteigen der Luftpakete und das Auslösen von Konvektion.

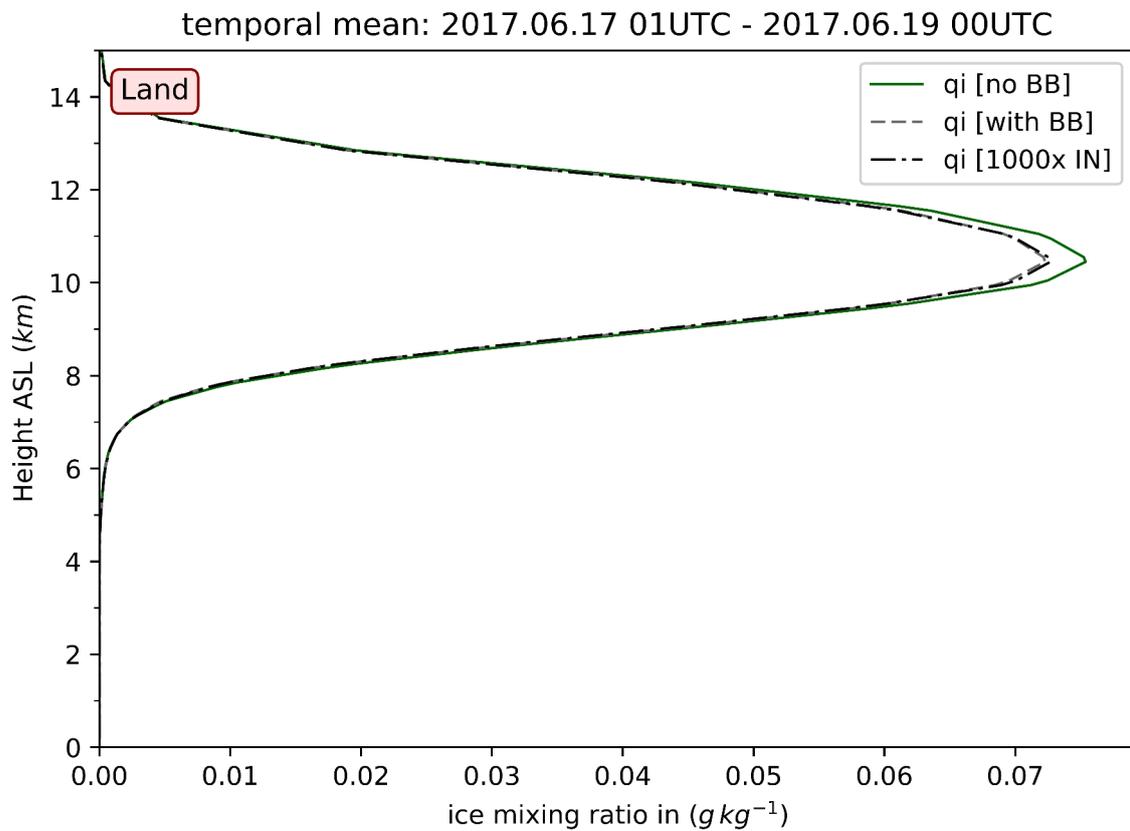
Desweiteren findet sich auch in der Flüssigphase der Wolkentropfen einen Tagesgang wieder, was ebenfalls durch die auftretende Konvektion beeinflusst wird (Abb. A.5). Die Position der Flüssigphasenschicht befindet sich im zweitägigen Mittel wie auch in den dreistündigen Mitteln etwa 4 km unterhalb der Eisphasenschicht (Abb. 5.15). Jedoch überschneiden sich diese Flüssig- und Eisphasenschicht über einen Höhenbereich von 1 – 2 km, welche als Mischphasenzone bezeichnet wird. Da sich die  $0^\circ \text{ C}$ -Grenze in einer Höhe um 4 km befindet, liegen sämtliche Flüssigphasenwolken in einem unterkühlten Temperaturregime. Während der Konvektion entstehen somit zunächst in den unteren Schichten flüssige Wolkentropfen, welche unterkühlen und weiter nach oben befördert werden. In der Mischphasenzone gefrieren diese dann zu Wolkeneis oder werden durch Einsammelprozesse von Hydrometeoren aufgefangen.

In dem Ozean-Gebiet erreichen die Aufwinde kleinere Werte von  $\sim 7 \text{ m s}^{-1}$  und die Abwinde  $\sim -9 \text{ m s}^{-1}$ . Die Entstehung dieser maximalen Auf- und Abwinde beginnt jedoch in der Nacht zum zweiten Tag ab 00 UTC und klingt im Laufe des 18.06.2017 allmählich ab. Alle dreistündig

gemittelten Temperaturprofile in Abbildung A.10 zeigen eine deutliche und persistente Inversion in 1 km Höhe. Im Gegensatz zu der Landmasse bleibt die Wasseroberfläche auch tagsüber bei konstanten Temperaturen um  $19^{\circ}\text{C}$  und kühlt somit die oberflächennahe Atmosphäre ab. Aus dieser kühlen Atmosphärenschiicht können keine Luftpakete frei aufsteigen und Konvektion auslösen. Daher müssen andere Hebungsprozesse diese schwache Konvektion auslösen. Innerhalb der Inversionsschiicht bildet sich in den ersten Stunden der Simulationszeit eine 1 km mächtige Wolkenschicht mit den höchsten gemittelten Wolkenwassergehalt von  $\sim 0.045\text{ g kg}^{-1}$  (A.4). Diese oberflächennahe Wolkenschicht kann als Seenebel bezeichnet werden, welcher in den Beobachtungsdaten von MODIS als großflächige warme ( $CTT_{\text{obs}} \approx 290\text{ K}$ ) Wolkenschicht vorliegt und ebenfalls in den Simulationen erkennbar ist. Oberhalb der  $0^{\circ}\text{C}$ -Grenze in  $\sim 4\text{ km}$  Höhe beginnt sowohl die Flüssigphasenschicht, als auch die Wolkeneisschiicht wodurch sich keine ausgeprägte Flüssigphasenzone unterhalb der Mischphasenzone befindet (Abb. 5.14(a), Abb. 5.15(a)). Aus der Betrachtung der dreistündigen mittleren Profile von Wolkeneis- und Wolkenwassergehalt zeigt sich am ersten Tag zwar eine ausgeprägte Wolkeneisschiicht, allerdings nur geringe Werte der Flüssigphase. Die bereits im ersten Zeitintervall am 17.06.2017 befindlichen Wolkeneispartikel können in dieser Höhe durch die Initialisierungsdaten vorliegen, an welchen dann weiterer Wasserdampf bei entsprechender Übersättigung sublimieren kann. Abschnitte 5.3.1 und 5.3.2 legen nahe, dass ein zusätzlicher Transport von Wolkeneispartikeln vom Land-Gebiet in das Ozean-Gebiet abläuft und den Wolkeneisgehalt über dem gesamten Gebiet innerhalb von sechs Stunden bis um 21 UTC deutlich erhöht. Darüber hinaus sind erste geringe Rußkonzentrationen um 16-18 UTC in Höhen zwischen 10 – 13 km über dem Ozean nachweisbar, was für diesen Transportvorgang aus dem Rußquellgebiet über Land spricht. Sobald sich die Vertikalzirkulation in den unteren Schichten zwischen 4 – 8 km verstärkt, kommt es zusätzlich zu Abkühlung und zu weiterer Kondensation auf den (Hintergrund-)Aerosolen oder bereits bestehenden Wolkentropfen. Dadurch vergrößert sich der Wolkenwassergehalt in diesen Höhenschichten.



(a)



(b)

Abbildung 5.14: **Räumlich und zeitlich gemittelt**es Vertikalprofil von der Wolkeneismasse. Die über den gesamten Simulationszeitraum von 17.06.2017 bis 18.06.2017 und die jeweiligen Teilgebiete (a) Ozean (b) Land gemittelte spezifische Wolkeneismasse  $q_i$ . Pro Gebiet sind die Profile der drei durchgeführten Sensitivitätsläufe separat aufgetragen.

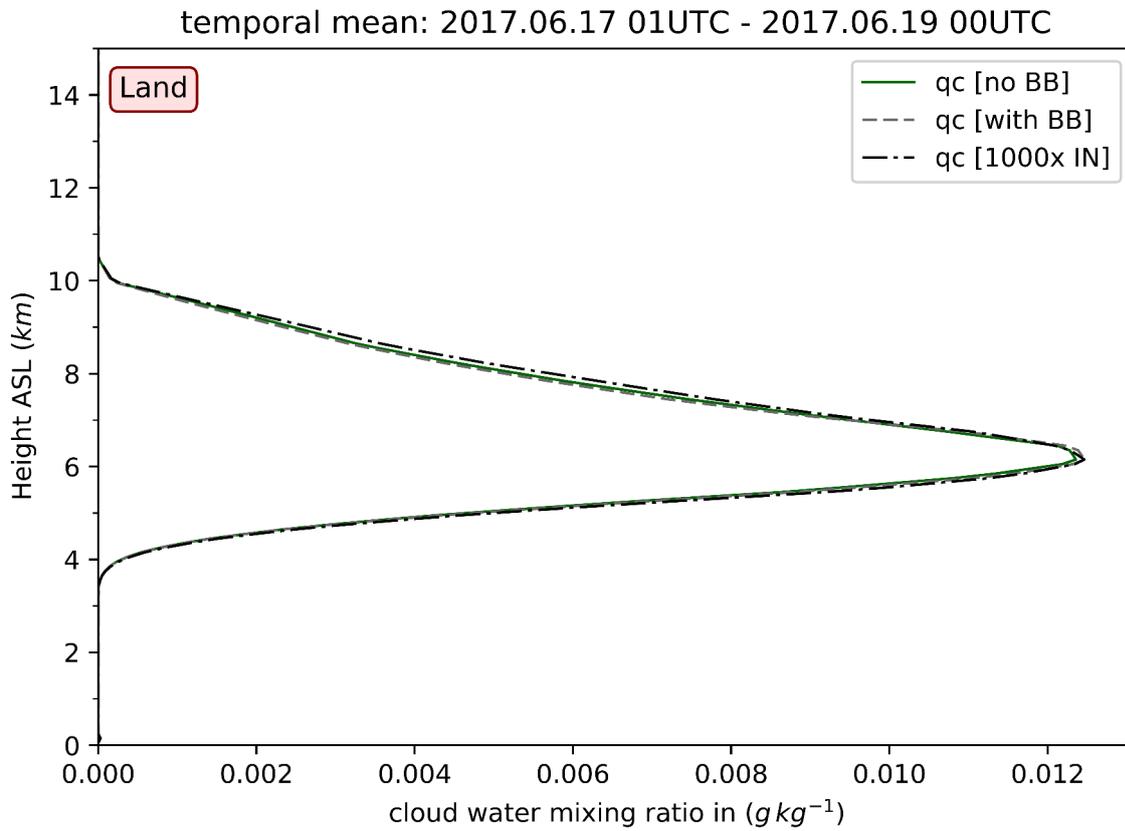
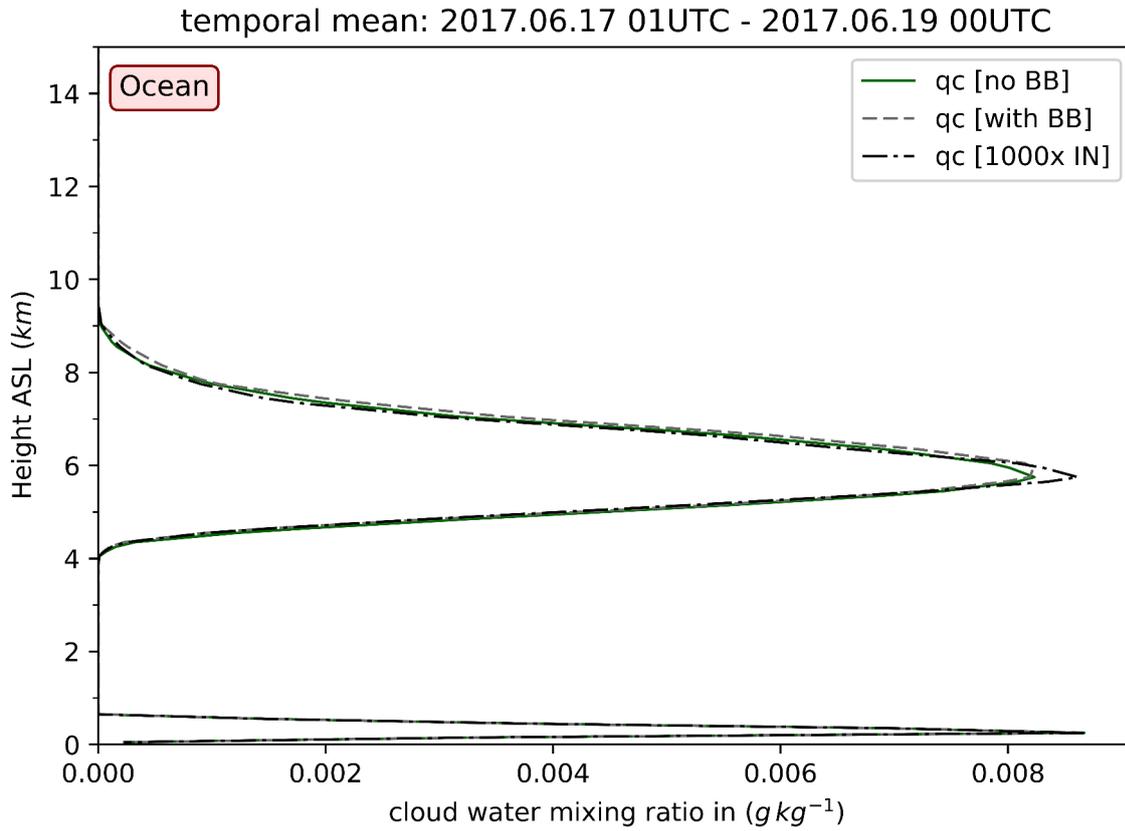


Abbildung 5.15: **Räumlich und zeitlich gemittelt**es Vertikalprofil des Wolkenwassergehalts. Der über den gesamten Simulationszeitraum von 17.06.2017 bis 18.06.2017 und die jeweiligen Teilgebiete (a) Ozean (b) Land gemittelte spezifische Wolkenwassergehalt  $q_i$ .

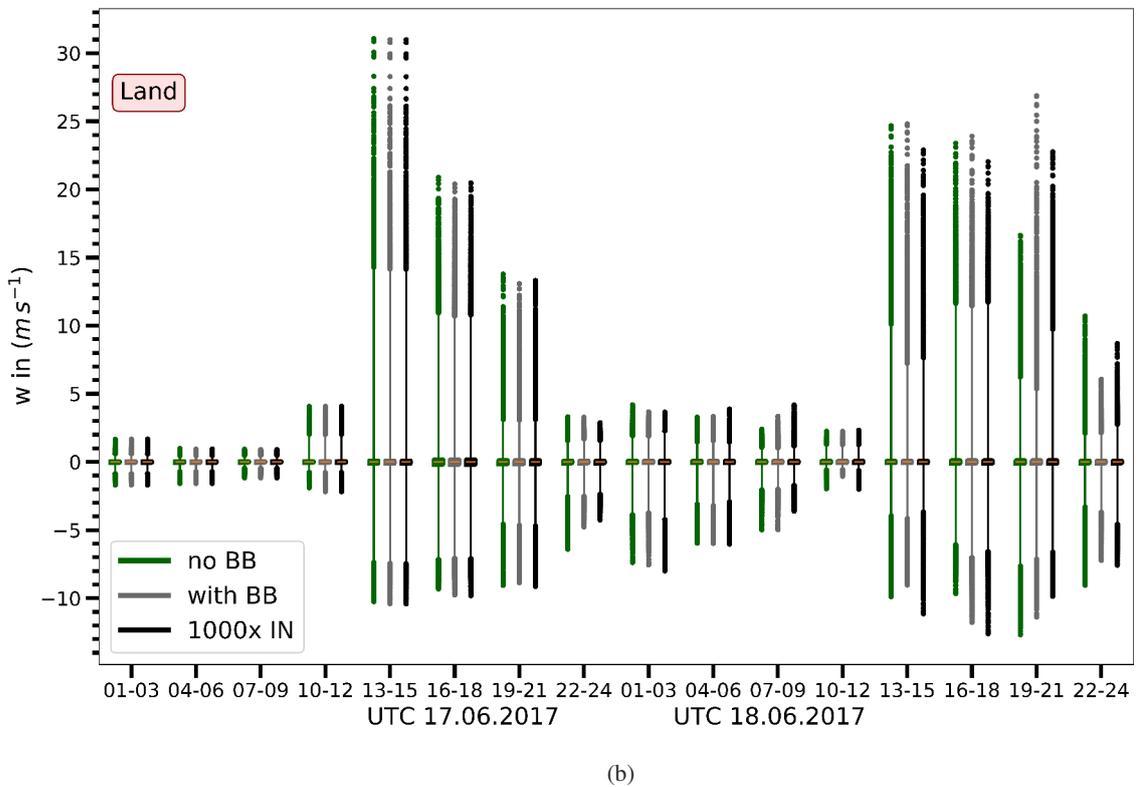
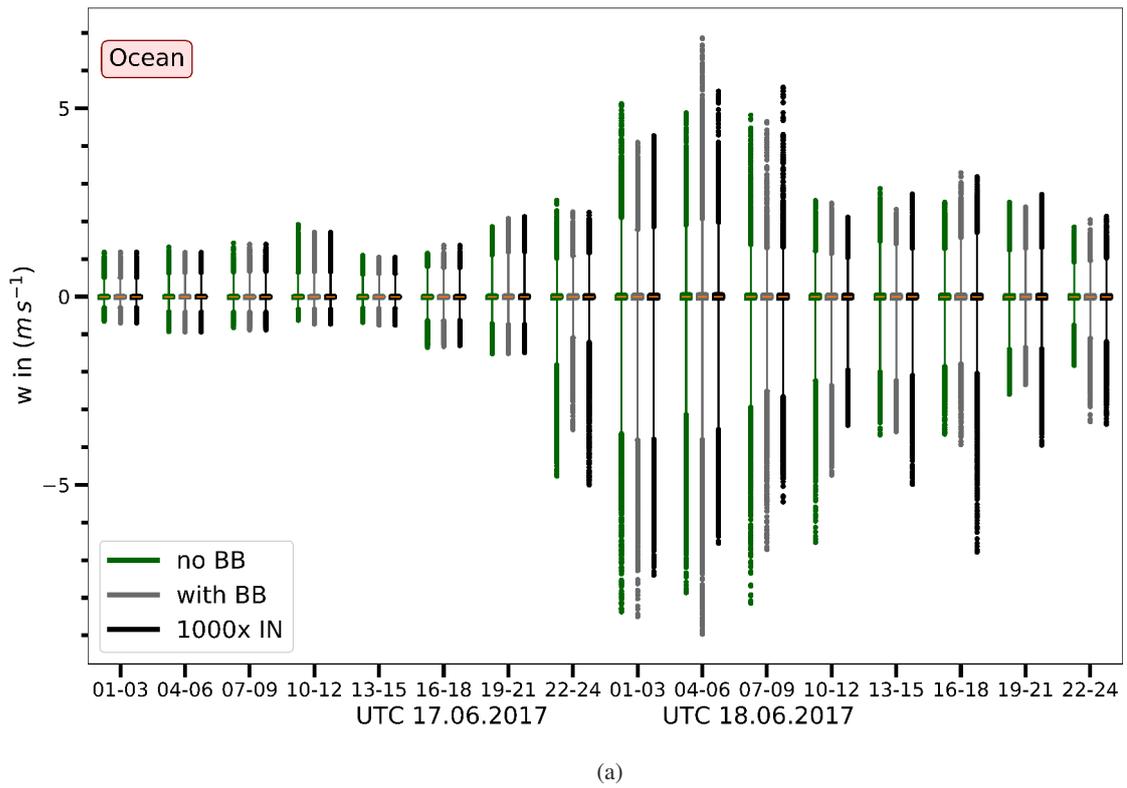


Abbildung 5.16: **Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit von ICON-ART.** In jeden Boxplot gehen alle Vertikalgeschwindigkeiten der drei stündliche Simulationsdaten über die jeweiligen Gebiete ein: (a) Ozean (b) Land. Die Antennen geben das 0.01%- und 99.99%-Quantil an, während die Punkte die Ausreißer darstellen. Der orangene Querstrich beschreibt die Lage des Median.

## 5 Einfluss von Waldbrandaerosolen auf die Eisbildung in Wolken

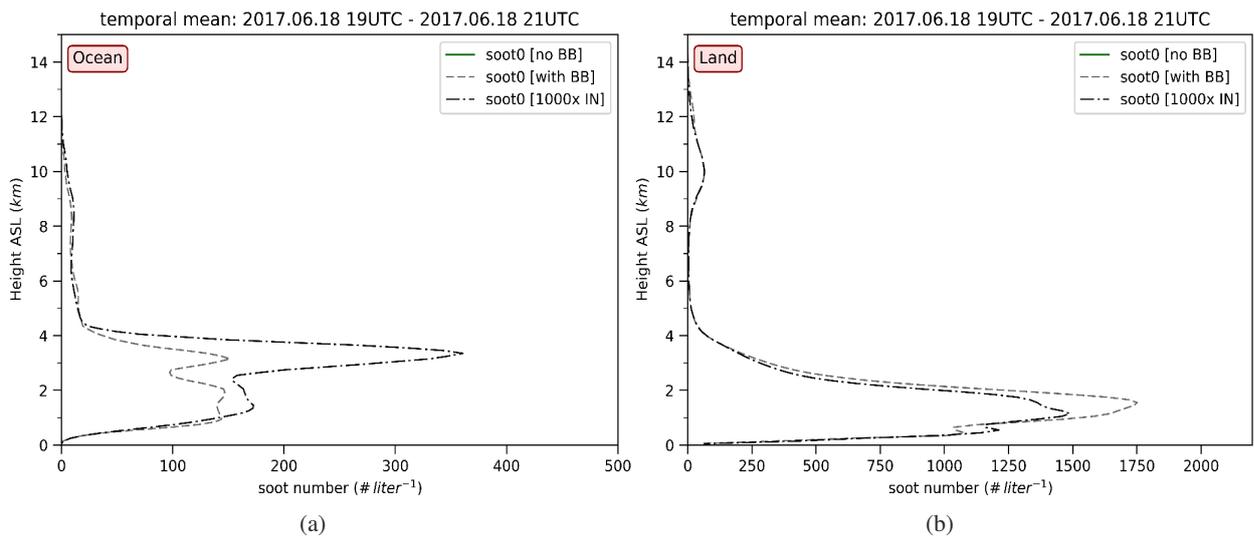


Abbildung 5.17: **Rußanzahlkonzentration am 18.06.2017** Die von 19 UTC bis 21 UTC und über die Analysegebiete (a) „Ozean“ und (b) „Land“ gemittelten Profile der Rußanzahlkonzentration aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

### 5.4.2 Einfluss von Ruß anhand von Sensitivitätsläufen

In beiden Teilgebieten und für alle Simulationsläufe übereinstimmend befinden sich in der Mischphasenzone ab 4 km bis 7 km Höhe die Eispartikel mit den größten effektiven Radien um  $10^3 \mu\text{m}$ , wohingegen in Höhen oberhalb von 9 km der effektive Radius wesentlich kleinere Werte um  $10 \mu\text{m}$  annimmt (Abb. A.8, A.9). Der effektive Radius kann hier als Näherung für den Radius der Wolkenkondensate verwendet, da er ein Maß für die optischen Strahlungseigenschaften darstellt. Ein entscheidender Faktor für die Bildung der Eispartikel wird durch die Umgebungstemperatur gegeben. Kleine Eispartikel entstehen vorwiegend durch homogene Nukleation, welche ab Temperaturen um  $-35^\circ\text{C}$ . Diese Temperaturschwelle wird in Höhen von 10 km überschritten, weshalb dort die Bedingungen für homogene Nukleation vorliegen und entsprechend ablaufen. Gleichzeitig steht auch hier die konstant angenommene Staubhintergrundkonzentration für die heterogene Nukleation zur Verfügung und die beiden Gefrierprozesse stehen im gegenseitigen Wettbewerb. In der wärmeren Mischphasenzone laufen nur heterogene Nukleationsprozesse ab, welche entweder auf dem Hintergrundaerosol oder dem prognostischen Ruß stattfinden. Besonders aus nukleiertem Hintergrundstaubaerosol entstehen große Eispartikel, da der Durchmesser der Staubpartikel bereits in der Größenordnung  $10^5 \mu\text{m}$  liegt. Bei Anlagerung von weiterem Wasserdampf, beispielsweise durch den WBF-Prozess, wachsen diese Eiskristalle weiter an. In der Mischphasenzone erfolgt dieses Wachstum auf Kosten der flüssigen Wolkentropfen. Die so entstehenden größeren Eispartikel sedimentieren schneller. Sobald die Eispartikel in Regionen mit einer Umgebungstemperatur über  $0^\circ\text{C}$  fallen, setzt der Schmelzprozess ein, was in einer Umwandlung der Eispartikel in Wolkentropfen oder Regen resultiert. Das Sedimentieren erklärt die größten Eispartikelradien in 4 km Höhe und der dann einsetzende Schmelzübergang erzeugt den starken Rückgang der Wolkeneismasse unter 4 km Höhe.

Die Anzahlkonzentration von Wolkeneispartikeln ist in der Mischphasenzone jedoch gering. In den Höhen der homogenen Nukleation treten hingegen kleine effektive Radien bei großen Eis-

massenkonzentrationen auf, was zu einer hohen Anzahlkonzentration  $n_i$  führt, welche ebenfalls charakteristisch für homogenes Gefrieren ist. Aufgrund der Betrachtung von Mittelwerten, bleibt das genaue Verhältnis von homogener zu heterogener Nukleation schwer abzuschätzen.

Sobald Rußaerosole für das heterogene Gefrieren zur Verfügung stehen beeinflussen diese sowohl die heterogene Eisnukleation auf dem Hintergrundstaub als auch den Wettbewerb mit der homogenen Nukleation. Am ersten Simulationstag, den 17.06.2017, zeigen die Vertikalprofile von Wolkeneis und Wolkenwasser und deren effektiven Radien nahezu keine Unterschiede zwischen den Simulationsläufen. Ebenfalls zeigen die gemittelten Vertikalprofile von Ruß aus den Sensitivitätsläufen am ersten Tag keine signifikanten Unterschiede. Die Verteilungen der Vertikalgeschwindigkeit aus Abbildung 5.16 weisen ebenfalls geringe Unterschiede zwischen dem Referenzlauf (noBB) und den Sensitivitätsläufen mit Vegetationsbränden (withBB und 1000xIN) auf. Durch die dargestellten Ausreißer und 0.01%- bzw. 99.99%-Perzentile reagieren die Boxplots sensitiv auf Änderungen in den Extremwerten der Vertikalgeschwindigkeit. Da sich diese erst 17.06.2017 um 22 UTC anfangen markant zu unterscheiden, treten die Effekte der Nukleation von Ruß auf die mittleren Wolkeneis- und Wolkenwassereigenschaften, wie auch auf die Dynamik im Laufe des ersten Tages nur schwach auf.

Im Laufe des zweiten Tages zeigen sich jedoch immer deutlichere Unterschiede zwischen den einzelnen Simulationsläufen. Die Massen der Eispartikel und des Wolkenwassers weichen hauptsächlich in ihren Maximalwerten ab. Während tagsüber bis 18 UTC über Land und Ozean eine Abnahme der gesamten Wolkeneismasse bei vorhandenem Ruß erkennbar ist, zeigt sich nachts eine Zunahme der Wolkeneismasse bei vorhandenem Ruß. Somit werden die tagsüber erzeugten Massenverluste von Wolkeneis während der Nacht wieder ausbalanciert (Abb. 5.18 und 5.19). Aus den über den gesamten Zeitraum gemittelten Profilen in Abbildung 5.14 geht hervor, dass über dem Ozean eine absolute Massenzunahme vorliegt, sobald Rußaerosole vorhanden sind. Über Land hingegen weist das Wolkeneis einen absoluten Massenverlust auf, sobald Rußaerosol vorhanden sind. Allerdings tritt der nächtliche Massengewinn über dem Land drei Stunden später auf. Bei stärkerer Eisnukleationsaktivität von Ruß (1000xIN) tritt der nächtliche Massengewinn von Wolkeneis über beiden Gebieten stärker auf, während der tägliche Massenverlust keine deutlichen Unterschiede hinsichtlich der Eisaktivität von Ruß aufweist. Der mittlere effektive Radius von Wolkeneis zeigt zu den betrachteten Zeitpunkten in Höhen über 8km nur geringe Unterschiede zwischen allen Simulationsläufen. Die beobachteten Variationen der Masse ergeben sich damit bei gleichbleibenden Radien aus einer Änderung der Anzahlkonzentration von Wolkeneis. Da die Masse proportional zu  $r^3$  ist, kann die gleiche Anzahl an Eispartikel mit gleichbleibendem mittleren Radius aber unterschiedlicher Varianz des Radius eine andere Eismasse besitzen. Eine solche, wenn auch nur geringe Änderung der Größenverteilung der Eispartikel, kann auf den Einfluss von Ruß auf die heterogene Nukleation und deren Wettbewerb mit der homogenen Nukleation zurückzuführen sein. Dafür ist eine hohe Anzahlkonzentration von Ruß notwendig. In dem betrachteten Zeitraum befinden sich jedoch nur geringe Anzahlkonzentrationen von Ruß  $n_{\text{soot}} < 100 \text{ \# liter}^{-1}$  in den Höhenbereichen um 10km. Der Hintergrundstaub besitzt eine konstante Anzahlkonzentration von  $10^3 \text{ \# kg}^{-1} \approx 10^2 \text{ \# liter}^{-1}$ , was etwa eine Größenordnung über der Rußanzahlkonzentration liegt. (A.12, A.13). Beide Aerosoltypen besitzen in der Nukleationsparametrisierung die selbe Gefriereeizienz von  $\epsilon = 5\%$ , weshalb der Hintergrundstaub anzahlmäßig stärker in die

Nukleation eingeht. Die Rußmode besitzt darüber hinaus einen wesentlich kleiner Durchmesser als der Hintergrundstaub und Ruß weist generell schlechtere Nukleationseigenschaften auf. Trotz einer 1000-fach erhöhten Anzahl an Rußnukleationskeimen im Sensitivitätslauf „1000xIN“ weist dessen Wolkeneismasse und effektiver Radius keinen systematischen Trend auf.

Demnach ist zwar eine Auswirkung von Rußaerosolen in der Wolkeneismasse in den Sensitivitätsläufen erkennbar, allerdings kann der genaue Mechanismus nicht eindeutig identifiziert werden. Für die tägliche Abnahme oder die nächtliche Zunahme der Wolkeneismasse eignen sich die Boxplots als statistisches Maß der Vertikalgeschwindigkeit nur bedingt, um einen eindeutigen Einfluss darzustellen. Die Boxplots weisen zwar auf eine veränderte Vertikalzirkulation in dem gesamten Gebiet hin, allerdings geben sie keine Höheninformation.

Möglicherweise scheint die aus der von Ruß beeinflussten Nukleation hervorgehende Wolkeneiszusammensetzung zusätzlich für Bedingungen zu sorgen, welche nachts eine längere Verweildauer der Wolkeneispartikel ermöglichen. Dies kann durch eine leicht verstärkte Vertikalbewegung in Höhen über  $\sim 8$  km entstehen, was die Übersättigung erhöht und somit die Nukleation zusätzlich verstärkt.

In niedrigeren Höhen zwischen 2 km und 4 km weist die vertikale Verteilung von Ruß über den gesamten Zeitraum gemittelt besonders über dem Ozean eine starke Zunahme der Anzahlkonzentration um  $\sim 25\%$  auf, sobald der Ruß eine stärkere Eisnukleationsaktivität (1000xIN) besitzt (Abb. 5.12). Im selben Zeitraum geht die Anzahlkonzentration über Land um etwa  $250 \# \text{ liter}^{-1}$  zurück verglichen mit der Simulation mit normaler Eisaktivität von Ruß (withBB), je nach betrachteter Höhe und Zeitpunkt. Der zeitliche Verlauf zeigt, dass der wesentliche Prozess in den letzten sechs Simulationsstunden am 18.06.2017 ab 18 UTC auftritt (Abb. 5.17). In diesem dreistündigen Intervall unterscheiden sich die maximalen Anzahlkonzentrationen über dem Ozean und über Land um etwa  $250 \# \text{ liter}^{-1}$ . Die einzige Quelle für Ruß stellen die Vegetationsbrände über Land dar. Daher kann ein möglicher Grund für die Zunahme der Rußanzahlkonzentration in einem erhöhten horizontalen Transport von Ruß Richtung Ozean mit der mittleren Horizontalströmung  $v_H$  liegen:

$$\overrightarrow{M}_H \propto \overrightarrow{v}_H \cdot n_{\text{soot}} \quad . \quad (5.2)$$

Da sich die Anzahlkonzentrationen über Land auch in den Stunden davor nicht wesentlich zwischen den Sensitivitätsläufen unterscheiden, liegt der Antrieb einer Verstärkung des Horizontaltransports in einer Zunahme der Strömungsgeschwindigkeit in der Höhe zwischen 2 km und 4 km. Eine nähere Untersuchung dieser Ursache bedarf weiterer Studien, die im Rahmen dieser Arbeit nicht erfolgen.

Neben der Eisphase zeigen sich ebenfalls Änderungen in der Flüssigphase der Wolkentropfen, welche entweder auf die mikrophysikalischen Zusammenhänge dieser beiden Phasen oder auf Änderungen in der allgemeinen Zirkulation zurückzuführen sind. Sowohl über dem Land, als auch über dem Ozean zeigen sich erst am zweiten Simulationstag deutliche Änderungen. Bei der Analyse der Flüssigphase spielt das prognostische Meersalzaerosol ebenfalls einen entscheidenden Faktor. Die online Emissionen hängen vorwiegend von der Windgeschwindigkeit an der Meeresoberfläche ab, welche bei einer stärkeren Vertikalzirkulation ebenfalls verstärkt werden kann. Desweiteren findet Wolkentropfenaktivierung auch ohne vorhandenen prognostischen Aerosol an

dem Hintergrundaerosol statt. Somit führen geringe Störungen in der Zirkulation zu Veränderungen in der Freisetzung von prognostischem Aerosol, was dann die Aktivierungsparametrisierung und damit die Wolkentropfenverteilung verändert. Die Auswirkungen dieses nichtlinearen Prozesses zeigen sich besonders deutlich über dem Ozean-Gebiet, da dort der überwiegende Teil des prognostischen Meersalzes vorkommt. Die Wolkentropfenkonzentrationen weisen hier deutliche Unterschiede relativ zu den anderen Sensitivitätsläufe auf. Hierbei ist jedoch auch über dem Land kein Trend oder ähnliches Verhalten zwischen den einzelnen 3h-Intervallen zu erkennen. Auf eine leicht veränderte vertikale Zirkulation weisen ebenfalls die Boxplots, als Maß für die Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit, hin. Innerhalb jedes 3h-Intervalls verstärken sich vor allem tagsüber die Unterschiede zwischen den Sensitivitätsläufen. Beim Vergleich zwischen der gesamten Streuung aller Läufe scheint der Referenzlauf ohne Ruß niedrigere Extremwerte in Phasen stärkerer Vertikalbewegung aufzuweisen. Über dem Ozean tritt dieser Zusammenhang ebenfalls ab 16 UTC auf, wobei in dieser Phase der Lauf mit stärkerer Eisaktivierung von Ruß (1000xIN) die größte Streuung aufweist und somit auf eine stärkere konvektive Zirkulation hinweist. Aus dieser Variation in der Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit zwischen den einzelnen Simulationsläufen, in Zusammenhang mit der Freisetzung und Verteilung von prognostischem Meersalz, kann ein möglicher Grund für die ebenfalls auftretenden Variationen in dem Wolkenwassergehalt in dem betrachteten Zeitraum liegen.

## 5 Einfluss von Waldbrandaerosolen auf die Eisbildung in Wolken

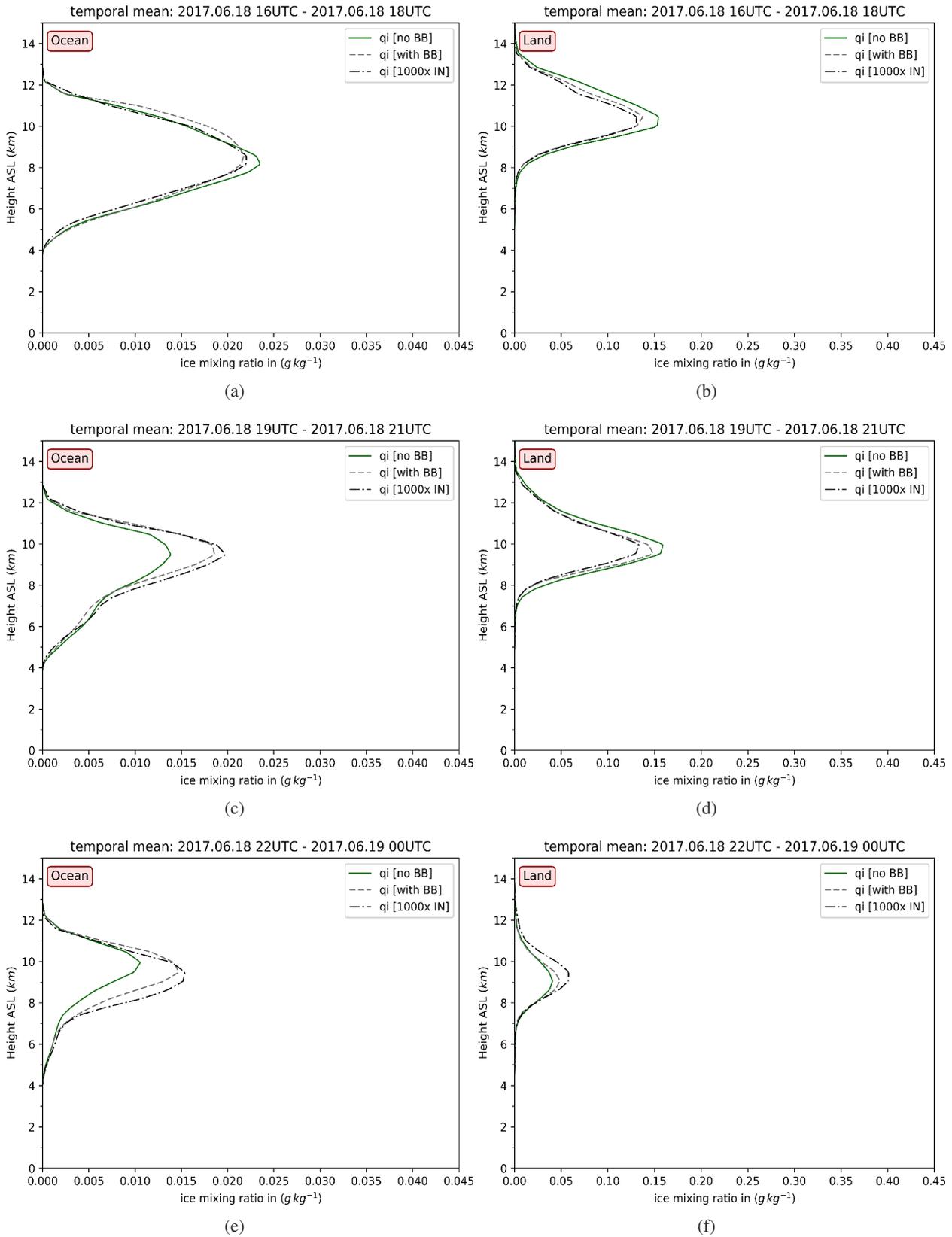


Abbildung 5.18: **Wolkeneisgehalt am 18.06.2017 ab 16 UTC.** Die dreistündig und über die Analysegebiete (a), (c), (e) „Ozean“ und (b), (d), (f) „Land“ gemittelten Profile des Wolkeneisgehalts aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

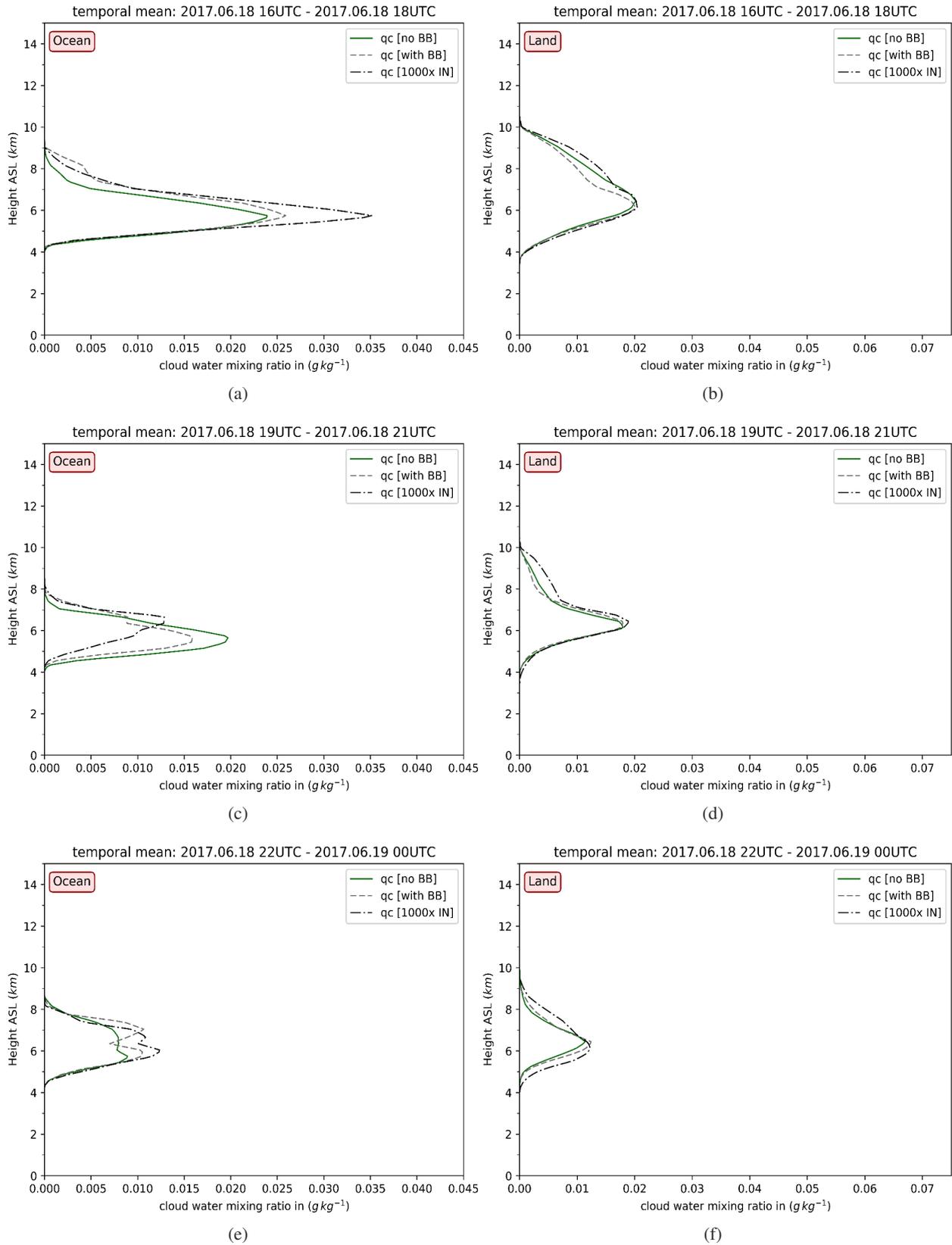


Abbildung 5.19: **Wolkenwassergehalt am 18.06.2017 ab 16 UTC.** Die dreistündig und über die Analysegebiete (a), (c), (e) „Ozean“ und (b), (d), (f) „Land“ gemittelten Profile des Wolkenwassergehalts aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.



## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Diese Arbeit beschäftigt sich mit den Auswirkungen von Vegetationsbränden auf die Atmosphäre anhand zweier durchgeführten Modellstudien, welche den Ferntransport von Vegetationsbrandaerosolen und deren Einfluss auf die Wolkeneisbildung untersuchen.

Die im Rahmen dieser Arbeit umgesetzte Implementierung einer Emissionsroutine für Vegetationsbrandaerosole nach Walter et al. (2016) in das numerische Wettermodell ICON-ART ermöglicht das Simulieren von Vegetationsbränden sowohl auf regionaler, als auch auf globaler Skala. Auf Grundlage dieser neuen Funktionalität werden mit ICON-ART zwei Fallstudien durchgeführt, welche unterschiedliche Raum- und Zeitskalen abdecken. Beide Studien beschäftigen sich mit den Auswirkungen der starken Waldbrandaktivität im Jahr 2017.

Im August 2017 sorgten starke Waldbrände in Nordamerika für einen hohen Eintrag an Aerosolen in die Atmosphäre, welche bis in die Stratosphäre gelangten. Aus den Messungen mit CALIOP und bodengestützten Fernerkundungsgeräten konnte über Europa erstmals eine stratosphärische Aerosolschicht zwischen 14km und 20km Höhe nachgewiesen werden, deren Ursprung in den nordamerikanischen Waldbränden liegt. Die erste Fallstudie beschäftigt sich mit der Simulation dieses Ferntransports und erfolgt mittels globalem Modellgitter und zweitägiger Reinitialisierung der meteorologischen Parameter, wobei Nordamerika als Quellgebiet von Ruß als Vegetationsbrandaerosol dient. Nach 17 Tagen Simulationszeit erstreckt sich über Europa eine detektierte Aerosolschicht ( $c_{\text{thrs}} = 0.01 \mu\text{g kg}^{-1}$ ) bis stellenweise 16km Höhe. Die vertikalen Rußkonzentrationen in den Simulationsdaten liefern jedoch keine deutlich abgehobene stratosphärische Rußschicht, wie sie aus dem Rückstreusignal der Lidar-Messungen folgt. Mögliche Gründe können modellseitig in zu niedrigen Emissionshöhen oder in unzureichend dargestellten Transportprozessen in die Stratosphäre liegen. Die ursprünglich bei der Entwicklung des Rauchfahnenmodells vorgesehenen Gitterpunktabstände im Modell von 40 bis 100km werden mittlerweile deutlich unterschritten. Daher ermöglicht die alleinige Berücksichtigung dieser Wechselwirkung in Verbindung mit konvektionserlaubenden Gitterpunktabständen ( $\Delta x < 3\text{km}$ ) vergleichbare oder sogar verbesserte Emissionshöhen, als das Rauchfahnenmodell.

Die Untersuchung des Einflusses von Vegetationsbrandaerosolen auf das Wolkeneis erfolgt in der zweiten Fallstudie anhand eines konvektiven Systems, welches am 17. und 18. Juni 2017 über der iberischen Halbinsel bestand und dort Vegetationsbrände auslöste. Die Simulation findet in ICON-ART mit einem konvektionserlaubenden LAM-Gitter statt, wobei ebenfalls Ruß als Vegetationsbrandaerosol dient. Zusätzlich wird die Aerosoldynamik mit dem Zwei-Momenten-Schema im Modell abgebildet, welches Ruß als Eiskeim behandelt und so die heterogene Wolkeneisbildung beeinflusst. Der Simulationslauf mit Vegetationsbrandaerosolen (withBB) wird anhand von Satellitenbeobachtungsdaten validiert. Sowohl eine quantitative Validierung der abgeleiteten Wolkenoberseitentemperatur aus den Simulationsdaten mit entsprechenden Satellitenprodukten,

als auch die qualitativen Validierungen des Säulengehalts der Wolkenkondensate mit Infrarot-Satellitenbilder und des Säulengehalts von Ruß mit der AOD schließen auf eine gute Repräsentation der Beobachtungen durch das Modell. Besonders der Zeitraum der konvektiven Entwicklung sowie die Lage der konvektiven Systeme und deren weitere Zugbahn stimmen gut überein. Die Hinzunahme einer zusätzlichen Referenzsimulation ohne Vegetationsbrandaerosole (noBB) und einer Simulation mit erhöhter Anzahl an Rußeiskeimen (1000xIN) ermöglicht die Quantifizierung des modellierten Rußeffekts auf die Wolkeneisbildung. Die Zweitagesmittel zweier Auswertgebiete zeigen über Land einen Rückgang des Wolkeneisgehalts um 3.6% und über Ozean eine Zunahme um 0.7% sobald Ruß als Eiskeim wirkt. Eine detaillierte Untersuchung der gebietsgemittelten Vertikalprofile von Wolkeneis und deren zeitliche Entwicklung ergibt jedoch keinen eindeutigen systematischen Effekt, selbst bei 1000-facher Anzahl an Rußeiskeimen. Die Zu- und Abnahme des Wolkeneises entsteht hauptsächlich in den letzten sechs Stunden der zweitägigen Simulationen. Sowohl in den Vertikalprofilen von Wolkenwasser, als auch in der Häufigkeitsverteilung der Vertikalgeschwindigkeiten kann ebenfalls kein systematischer Effekt festgestellt werden. Möglicherweise erzeugt die durch Ruß verursachte kleine Störung in der Eisnukleation an anderer Stelle große Änderungen, allein aufgrund der internen Modellvariabilität. Ebenfalls erzeugt der Einfluss einer angenommenen Hintergrundstaubkonzentration bei der heterogenen Nukleationsparametrisierung Unsicherheiten im Bezug auf den Einfluss von Ruß. Die in dieser Studie durchgeführten Sensitivitätsläufe reichen demnach nicht aus, um die interne Modellvariabilität abzubilden. Vielmehr wäre die Durchführung einer Ensemblerechnung notwendig, woraus die tatsächliche statistische Signifikanz des Aerosoleffekts von Ruß auf die Eisnukleation angegeben werden kann (Liu et al., 2018).

Neben der Verbesserung der statistischen Auswertemethodik, können ebenfalls modellseitige Anpassungen getroffen werden. Ruß wird im Modell als eine Aerosolmode bestehend aus reinem Kohlenstoff behandelt. Das Anlagern von weiteren löslichen Substanzen auf dem Rußaerosol verändert dessen Eigenschaften deutlich, vor allem im Hinblick auf die Wirkung als Eiskeim oder Kondensationskeim zu wirken. Neben der Eisnukleation kann es dann ebenfalls als effektiver Kondensationskeim im Modell behandelt werden (Hodzic und Duvel, 2017; Camponogara et al., 2018).

Des Weiteren sind die optischen Eigenschaften der Rußaerosole noch nicht berücksichtigt, wobei Ruß durch seinen hohen Kohlenstoffgehalt stark absorbiert und so die Strahlungsflüsse deutlich verändert.

Der Temperatur- und Übersättigungsbereich in welchem Vegetationsbrandaerosole als Eiskeime wirken können, weist aktuell noch große Unsicherheiten auf. Eine detaillierte Erkenntnisgewinnung aus Messungen würde sich ebenfalls auf die Güte der Modellierungsergebnisse durch eine verbesserte Darstellung der Eisnukleation positiv auswirken.

Die durchgeführten Fallbeispiele stellen den aktuellen Stand im Hinblick auf den Ferntransport und den Einfluss auf die Eisnukleation der Vegetationsbrandaerosole in ICON-ART dar und geben Anhaltspunkte zur weiteren Entwicklung. Neben der akademischen Anwendung zur Erlangung eines besseren Prozessverständnisses zwischen Vegetationsbränden und Atmosphäre, ermöglicht das Modellsetup bereits die Vorhersage der Rußbelastung in Regionen mit vorherrschenden Ve-

getationsbränden. Bei der zunehmenden Anzahl und Stärke der Vegetationsbrände, besonders in bewohnten Gebieten, dienen verlässliche Vorhersagen zur Verbesserung des Notfallmanagements vor Ort und letztlich dem Wohle der Betroffenen.

Daher lohnt sich eine weitere Entwicklung der Behandlung von Vegetationsbrandaerosolen in ICON-ART.



# A Anhang

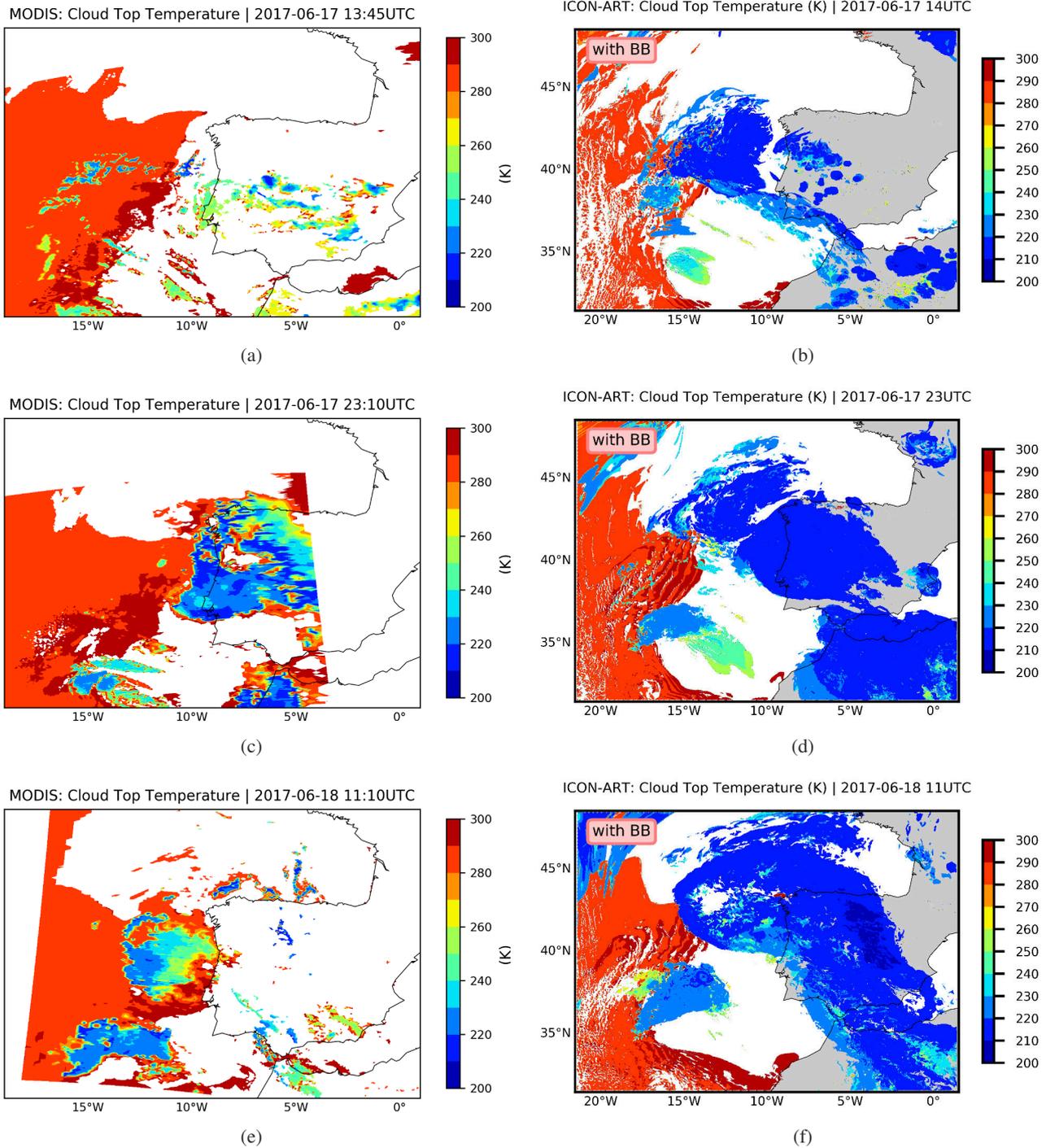


Abbildung A.1: **Wolkenoberseitentemperatur von MODIS und ICON-ART.** (a), (c), (e) zeigen die Wolkenoberseitentemperatur von MODIS; (b), (d), (f) stellen eine abgeleitete Wolkenoberseitentemperatur aus den Simulationen mit ICON-ART und Vegetationsbränden dar. Hierfür wird ein Schwellenwert von  $q_{hi,thr} > 0.1 \text{ \# liter}^{-1}$  verwendet. Die MODIS-Daten sind für diese Zeitpunkte für das gesamte Gebiet nicht flächendeckend vorhanden.

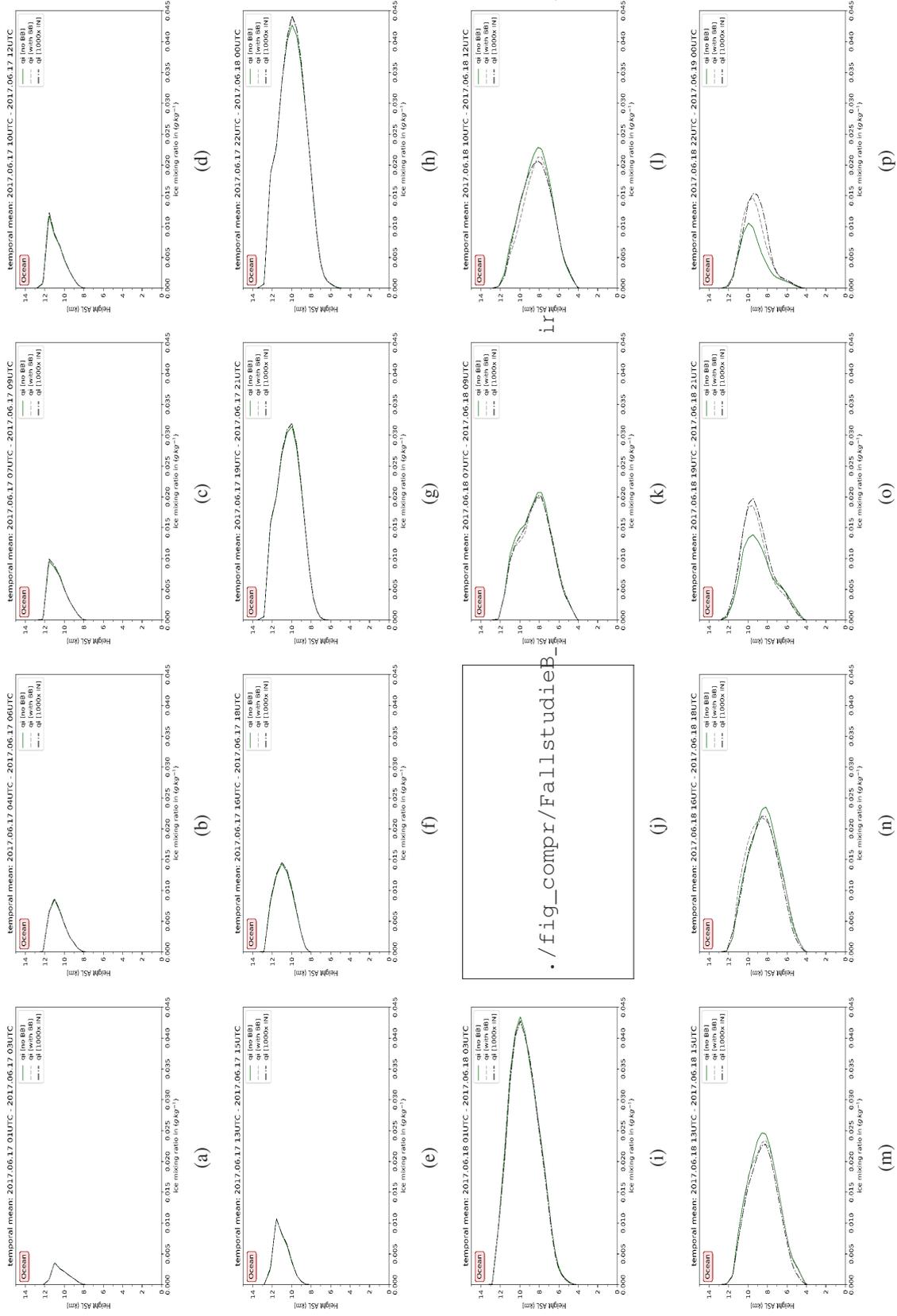


Abbildung A.2: Wolkeneisgehalt über „Ozean“. Die über drei Stunden und das Analysegebiet „Ozean“ gemittelten Profile der Masse von Wolkeneis aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

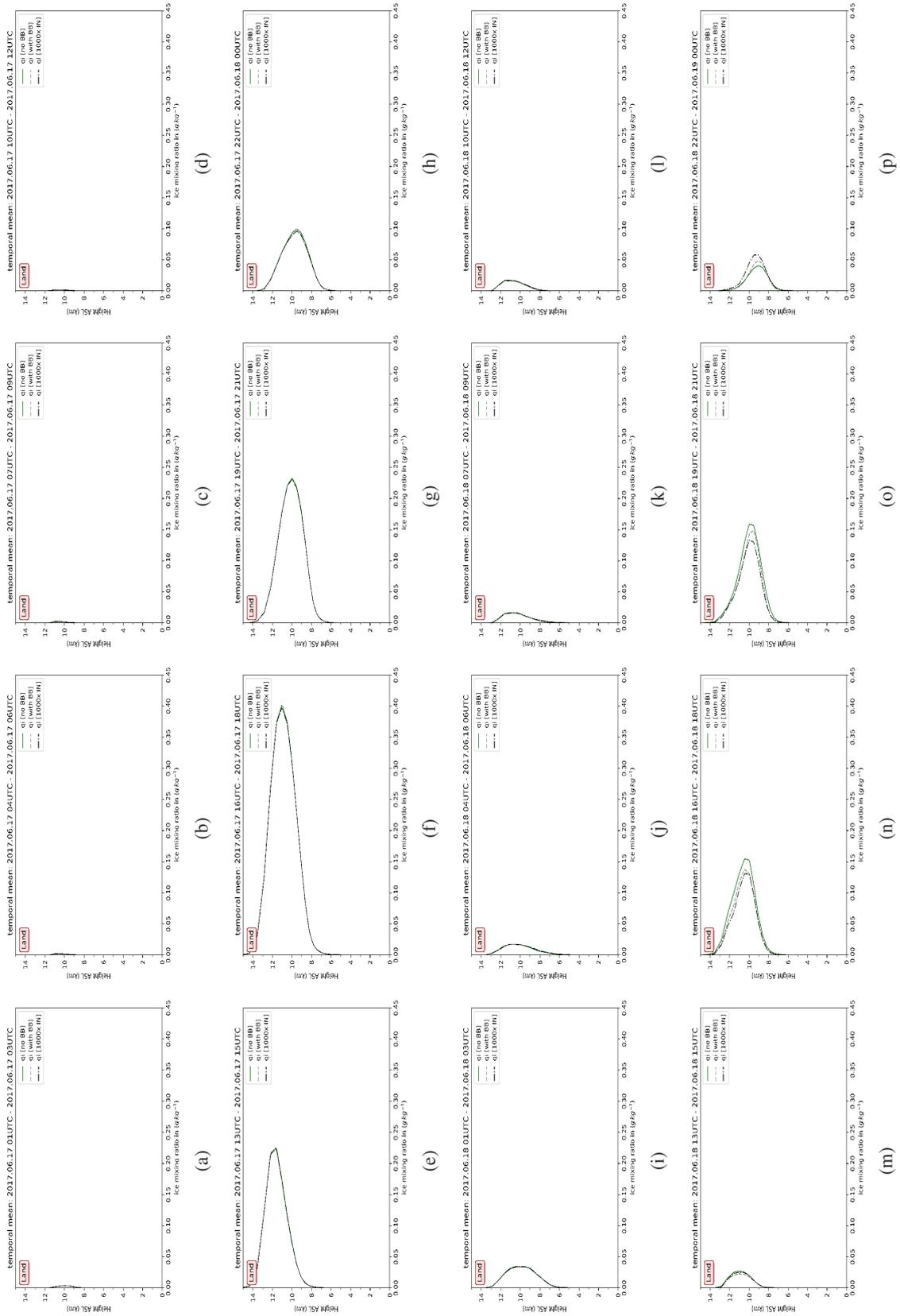


Abbildung A.3: **Wolkeneisgehalt über „Land“**. Die über drei Stunden und das Analysegebiet „Land“ gemittelten Profile der Masse von Wolkeneis aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

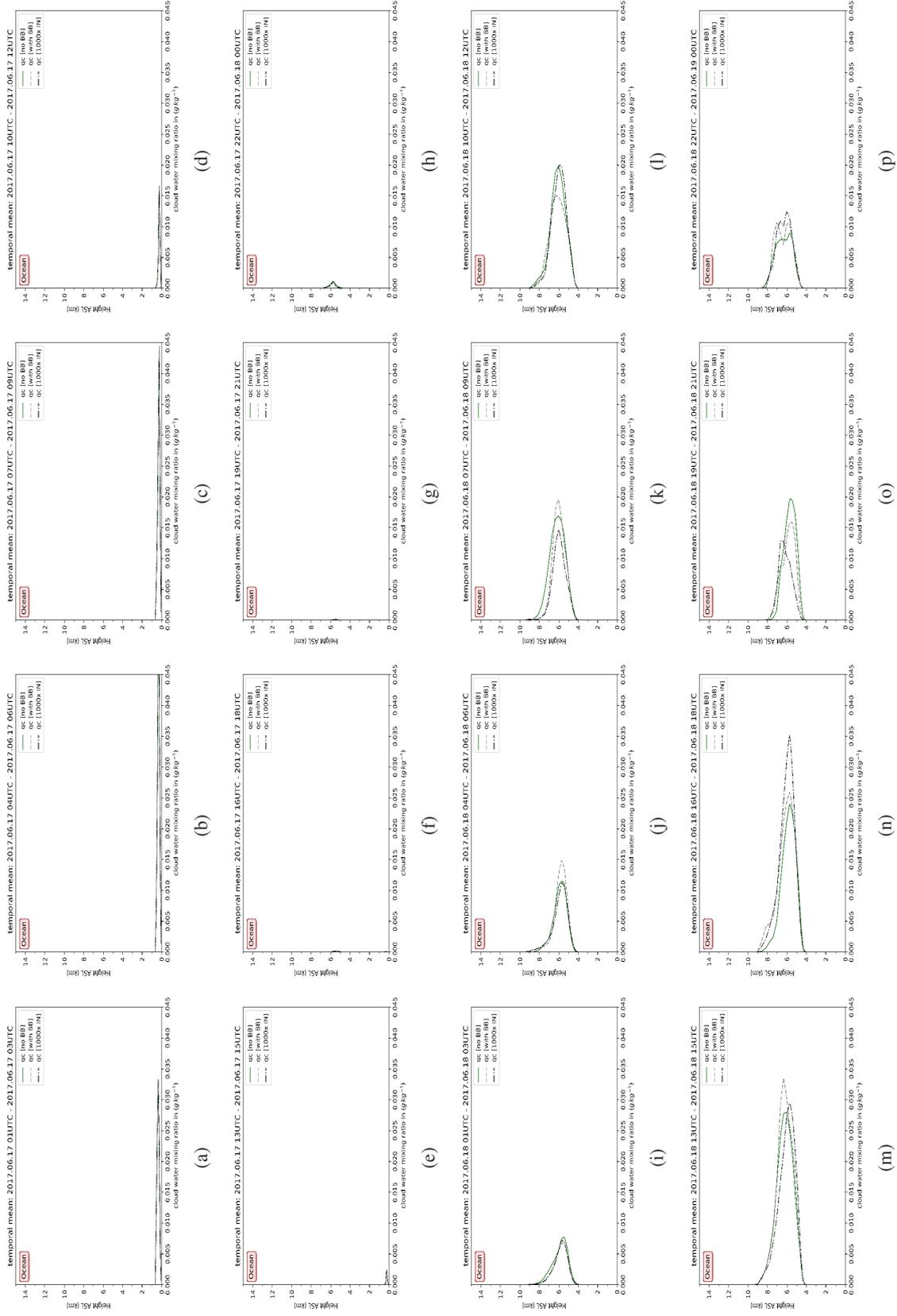


Abbildung A.4: **Wolkenwassergehalt über „Ozean“**. Die über drei Stunden und das Analysegebiet „Ozean“ gemittelten Profile der Masse von Wolkenwasser aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

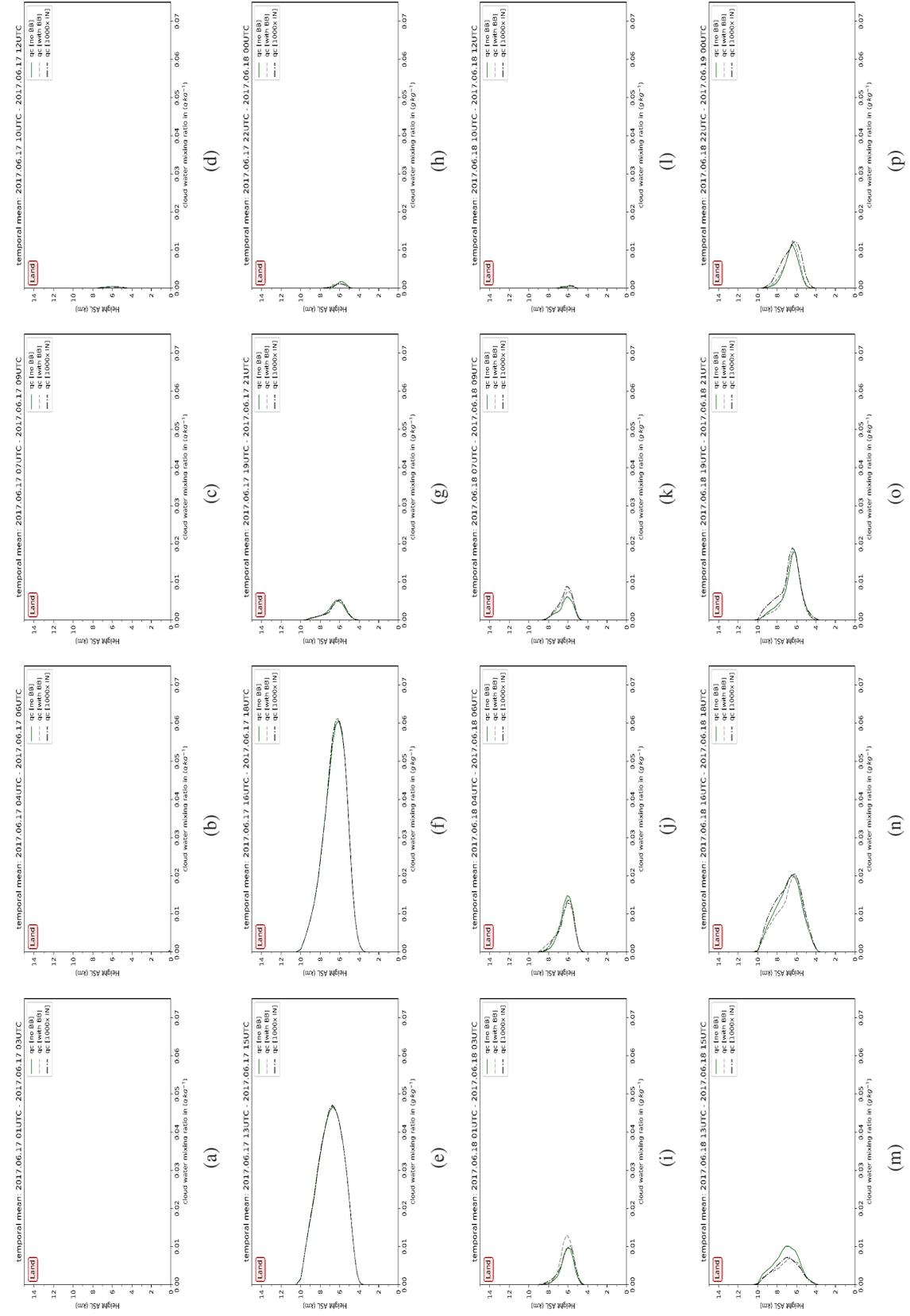


Abbildung A.5: Wolkenwassergehalt über „Land“. Die über drei Stunden und das Analysegebiet „Land“ gemittelten Profile der Masse von Wolkenwasser aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

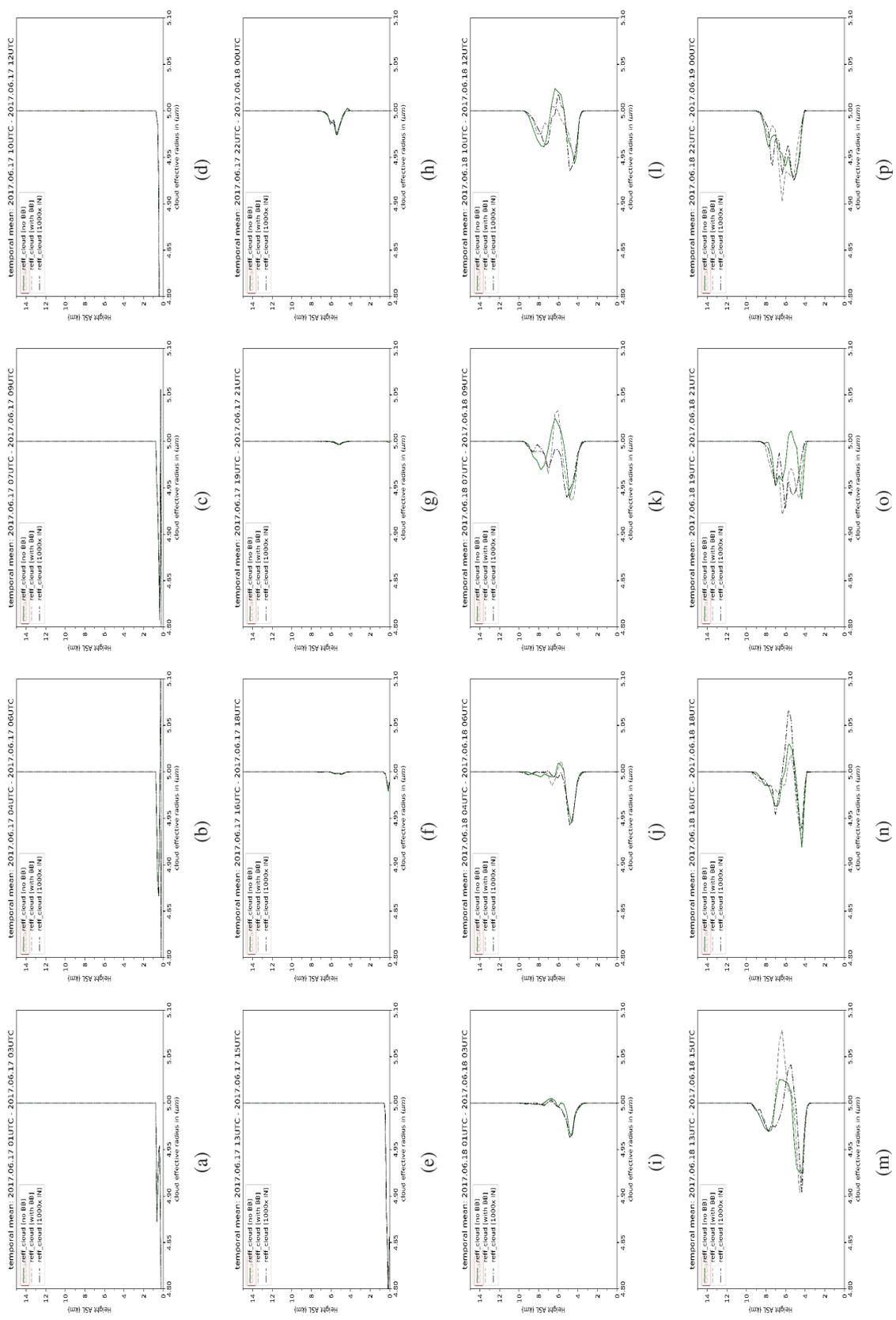


Abbildung A.6: Wolkenwassergehalt, Gebiet Ocean

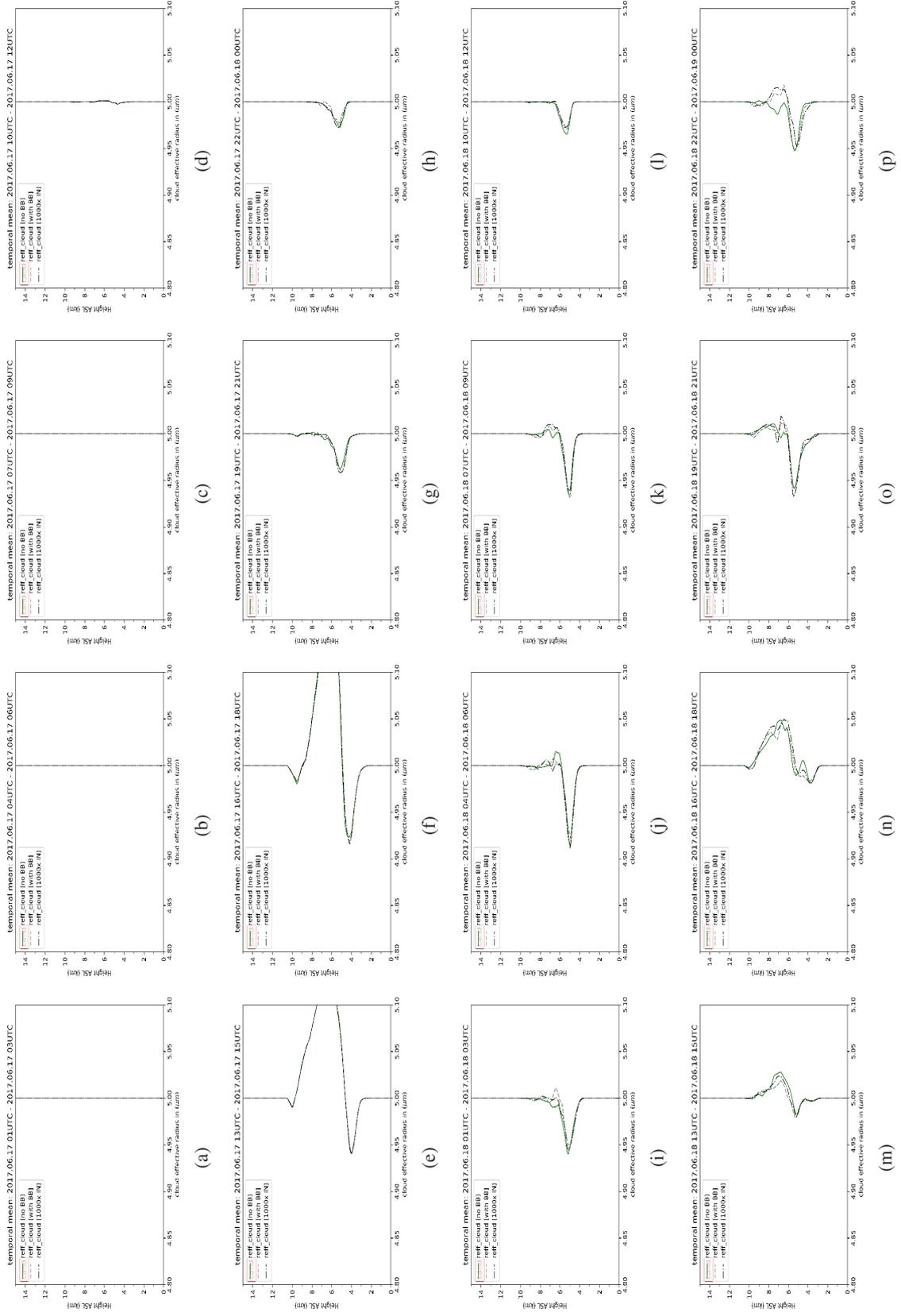


Abbildung A.7: **Effektiver Radius von Wolkentropfen über „Land“**. Die über drei Stunden und das Analysegebiet „Land“ gemittelten Profile des effektiven Radius von Wolkenwasser aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

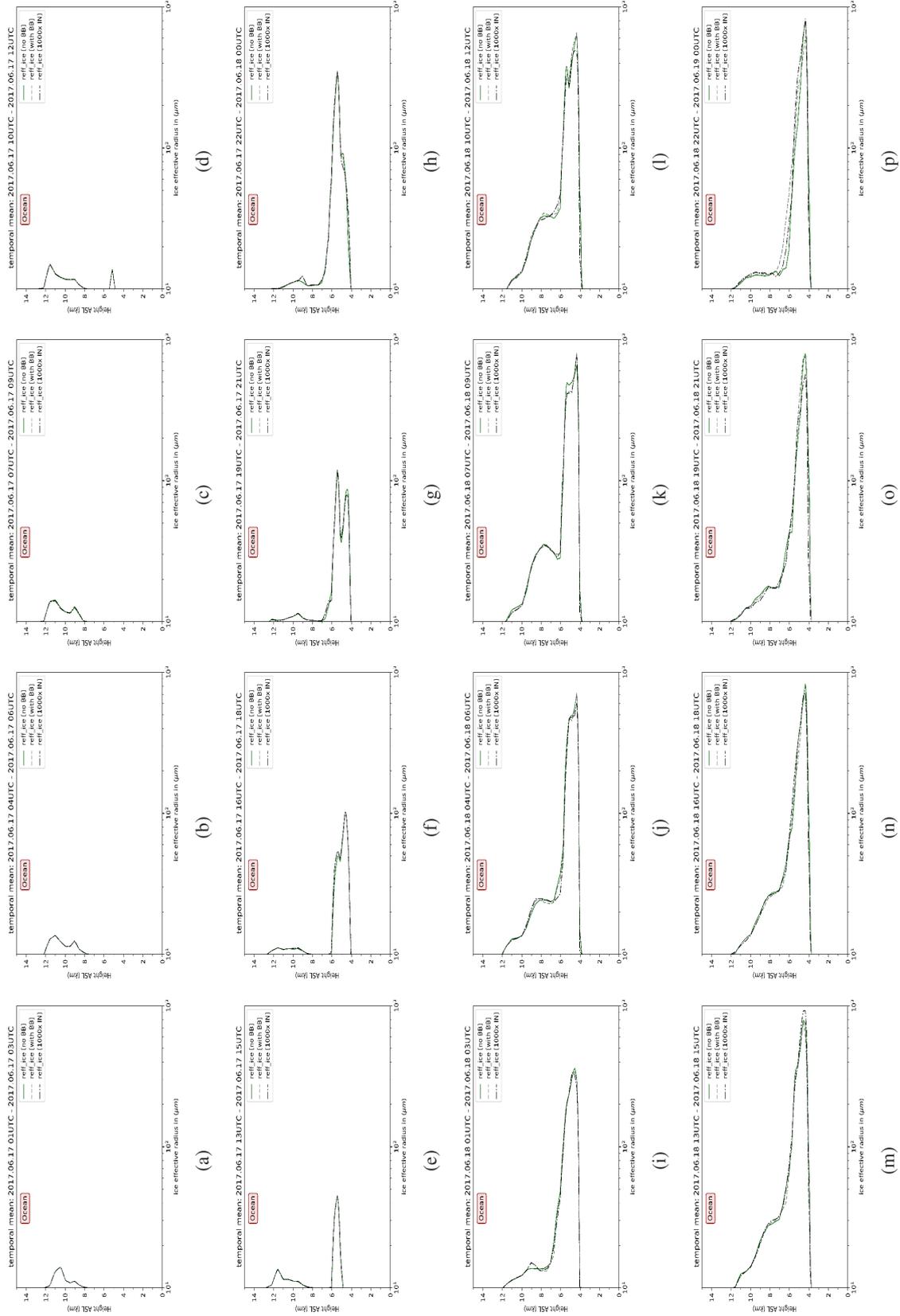


Abbildung A.8: Effektiver Radius der Wolkeneispartikel über „Ozean“. Die über drei Stunden und das Analysegebiet „Ozean“ gemittelten Profile des effektiven Radius von Wolkeneis aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

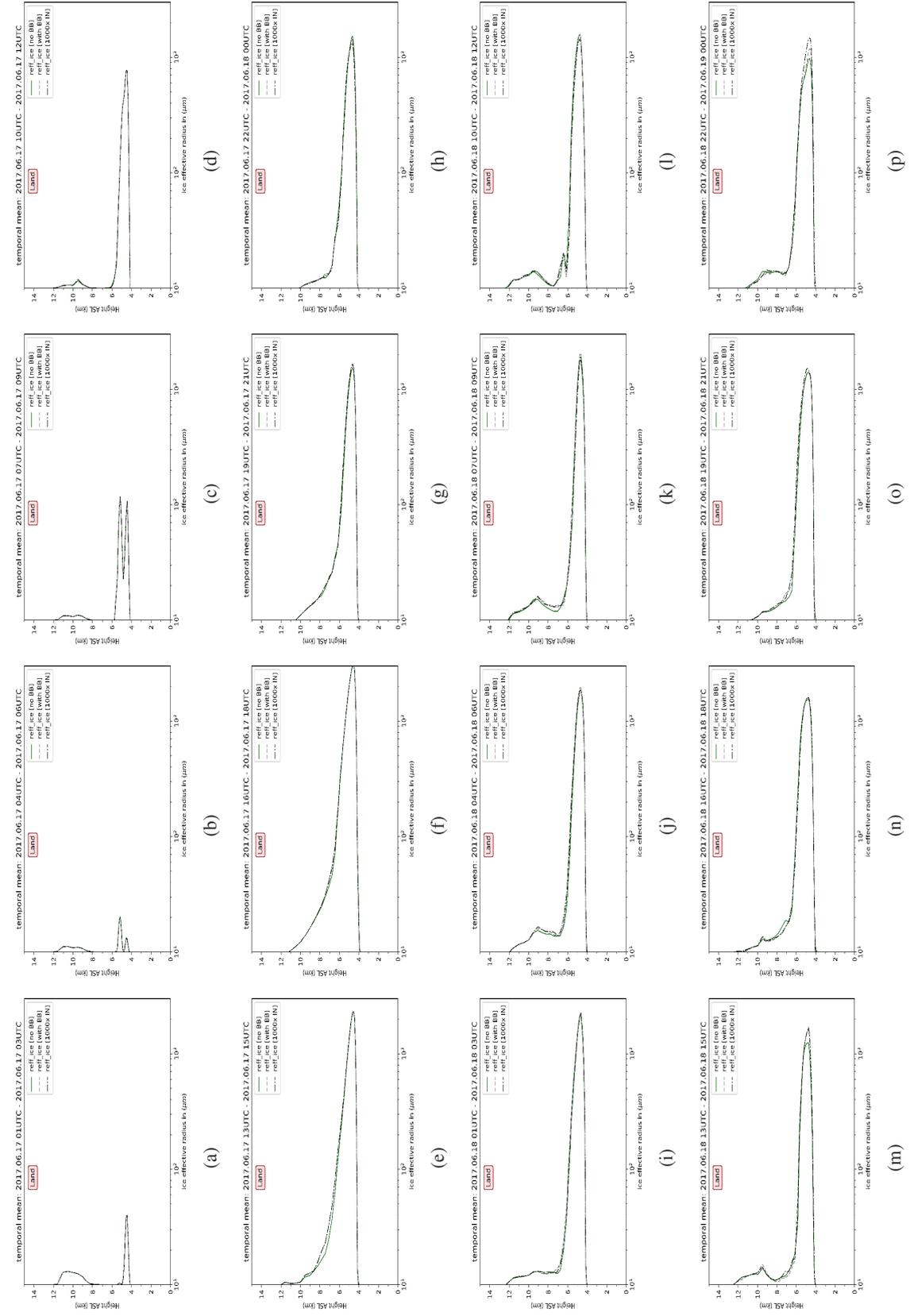


Abbildung A.9: **Effektiver Radius der Wolkeneispartikel über „Land“**. Die über drei Stunden und das Analysegebiet „Land“ gemittelten Profile des effektiven Radius von Wolkeneis aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

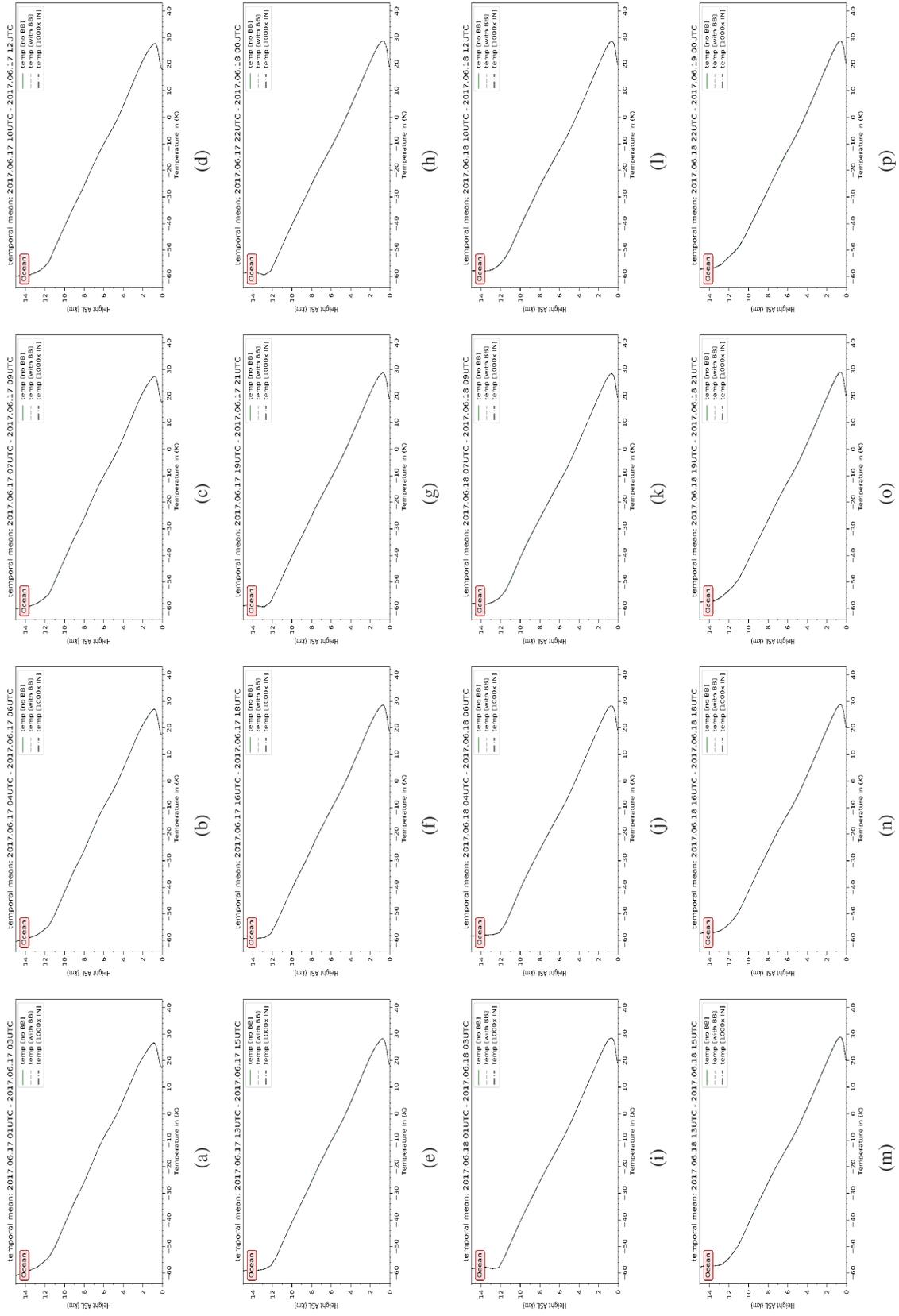


Abbildung A.10: Temperaturprofil über „Ozean“. Das über drei Stunden und das Analysegebiet „Ozean“ gemittelte Temperaturprofile aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

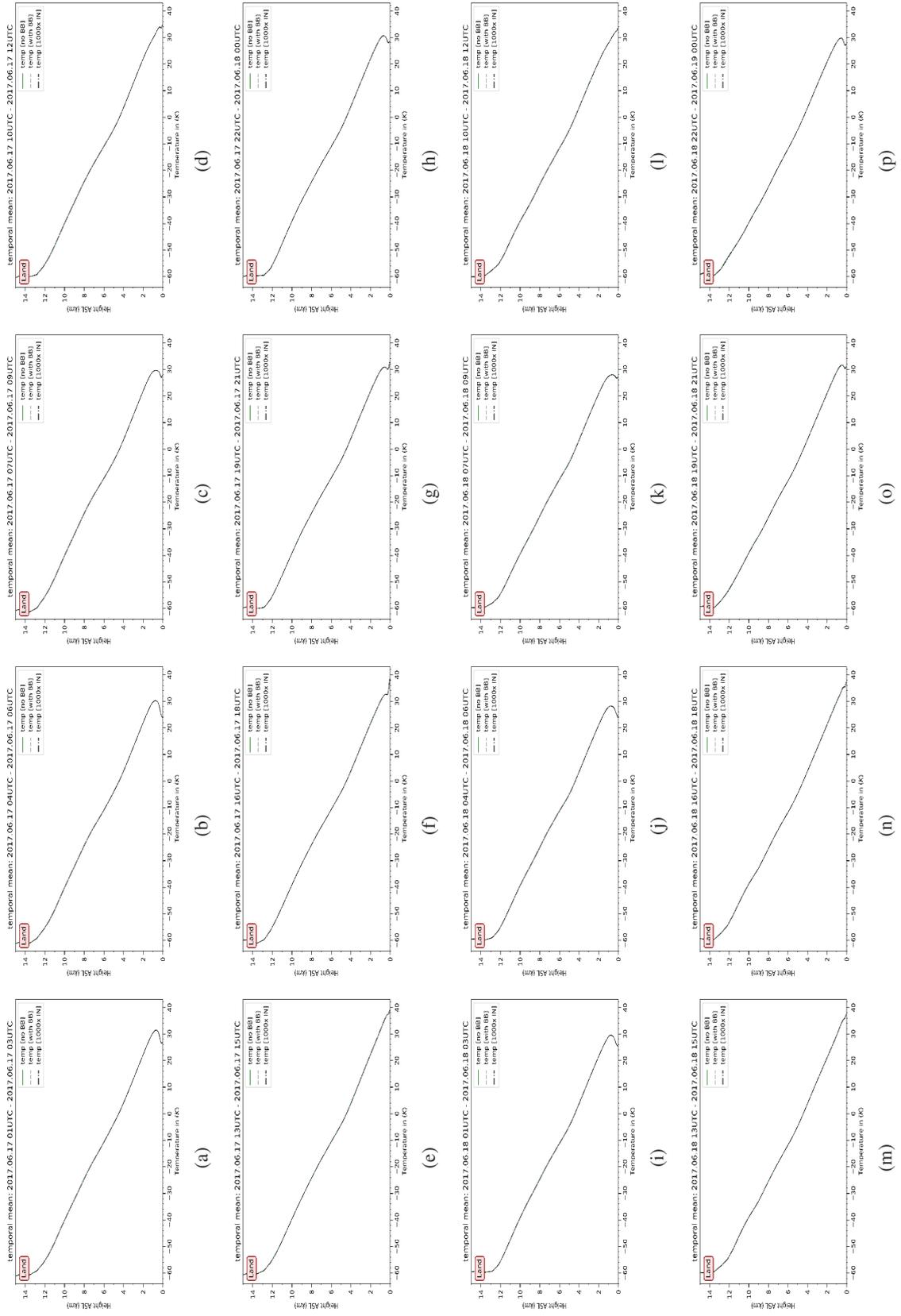


Abbildung A.11: Temperaturprofil über „Land“. Das über drei Stunden und das Analysegebiet „Land“ gemittelte Temperaturprofile aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

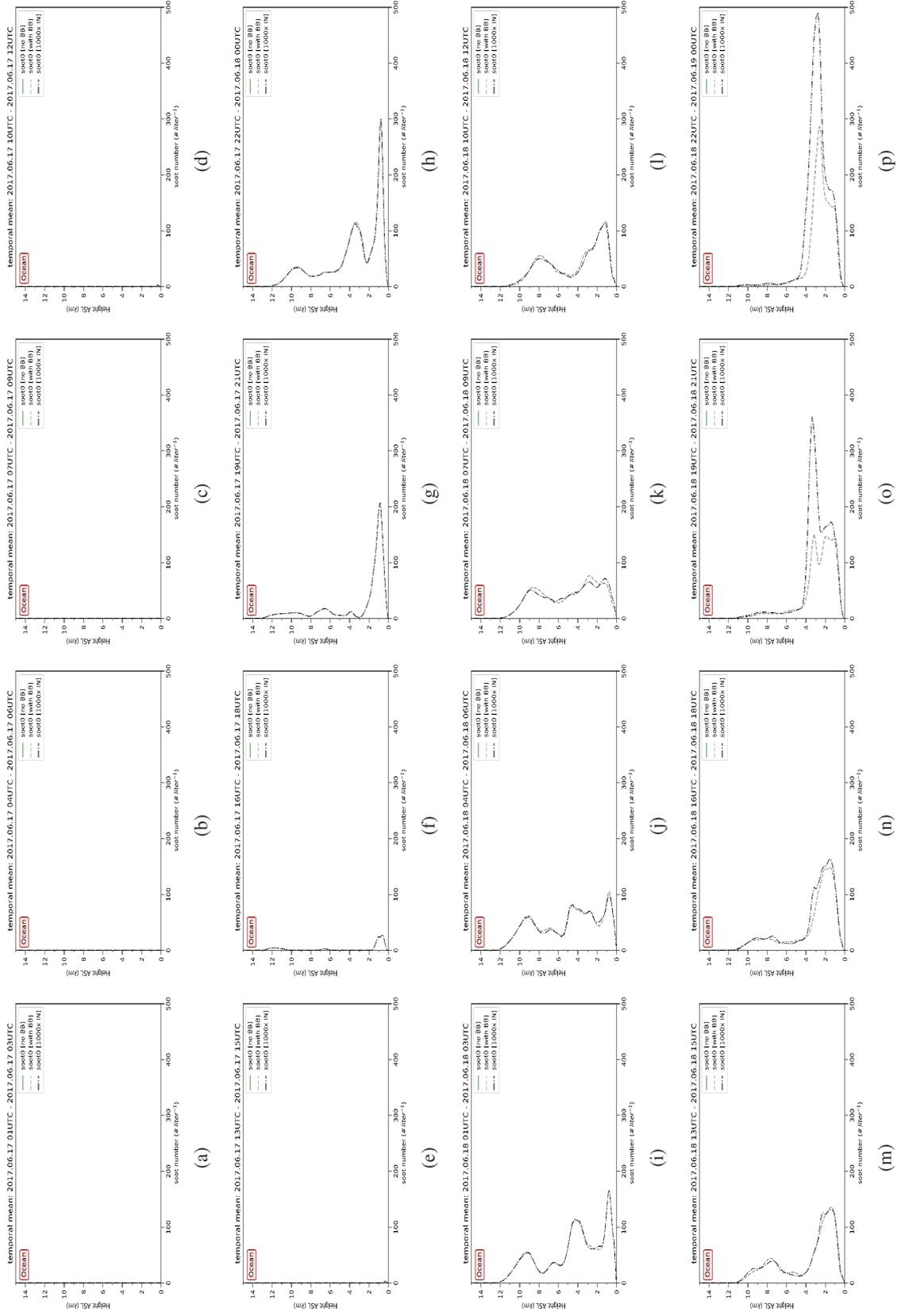


Abbildung A.12: Rußanzahlkonzentration über „Ozean“. Das über drei Stunden und das Analysegebiet „Ozean“ gemittelte Vertikalprofil der Rußanzahlkonzentration aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

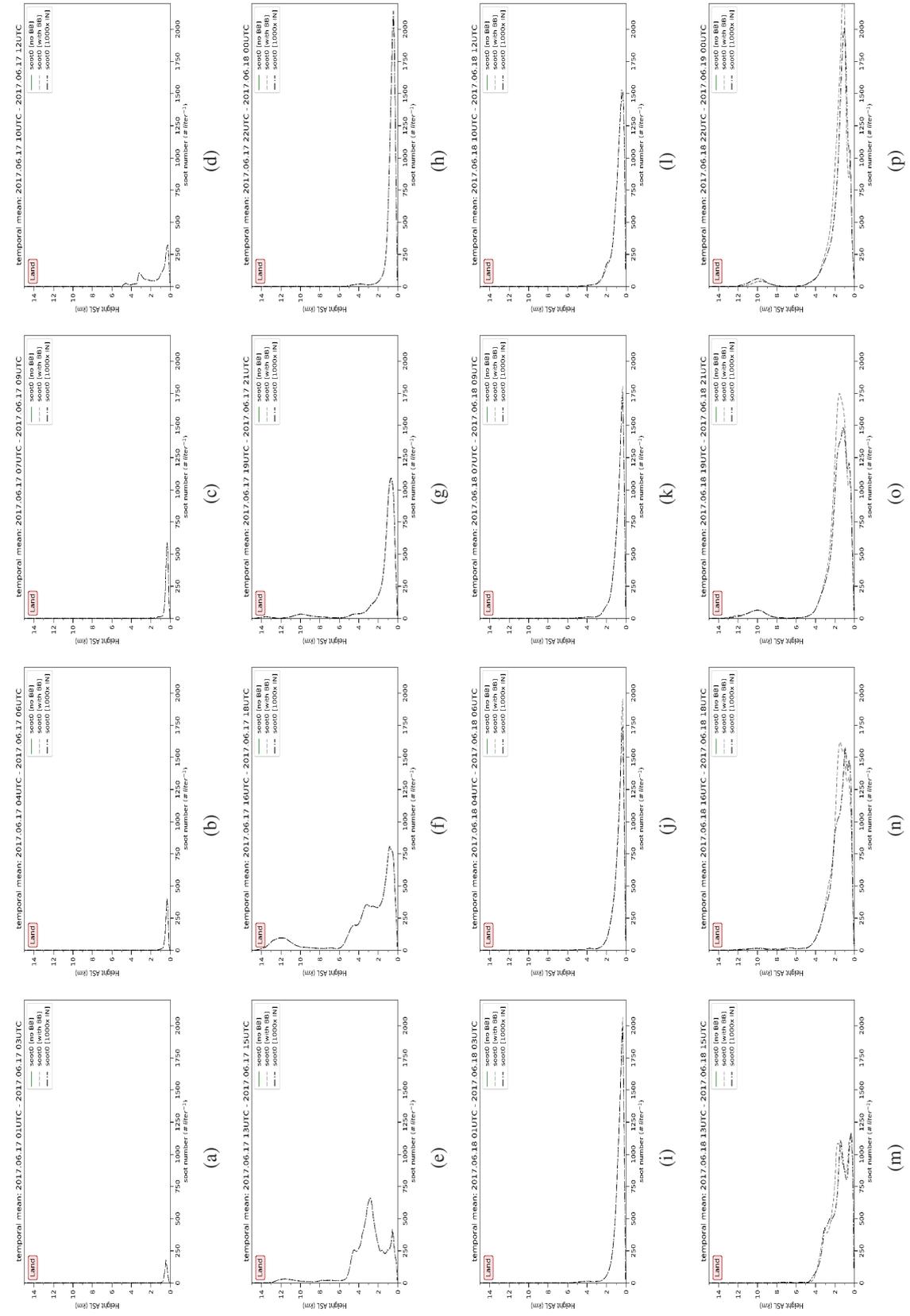


Abbildung A.13: Rußanzahlkonzentration über „Land“. Das über drei Stunden und das Analysegebiet „Land“ gemittelte Vertikalprofil der Rußanzahlkonzentration aus den Simulationsläufen mit ICON-ART.

# Literaturverzeichnis

- Akagi, S. K., R. J. Yokelson, C. Wiedinmyer, M. J. Alvarado, J. S. Reid, T. Karl, J. D. Crouse, und P. O. Wennberg, 2011: Emission factors for open and domestic biomass burning for use in atmospheric models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **11** (9), 4039–4072.
- Andreae, M. und D. Rosenfeld, 2008: Aerosol-cloud-precipitation interactions. part 1. the nature and sources of cloud-active aerosols. *Earth-Science Reviews*, **89** (1), 13 – 41.
- Andreae, M. O. und A. Gelencsér, 2006: Black carbon or brown carbon? the nature of light-absorbing carbonaceous aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6** (10), 3131–3148.
- Andreae, M. O. und P. Merlet, 2001: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochemical Cycles*, **15** (4), 955–966.
- Andreae, M. O., et al., 2001: Transport of biomass burning smoke to the upper troposphere by deep convection in the equatorial region. *Geophysical Research Letters*, **28** (6), 951–954.
- Ansmann, A., et al., 2018: Extreme levels of canadian wildfire smoke in the stratosphere over central europe – part 1: Aeronet, modis and lidar observations. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **2018**, 1–21.
- Baldauf, M., A. Seifert, J. Förstner, D. Majewski, M. Raschendorfer, und T. Reinhardt, 2011: Operational convective-scale numerical weather prediction with the cosmo model: Description and sensitivities. *Monthly Weather Review*, **139** (12), 3887–3905.
- Bangert, M. J., 2012: Interaction of aerosol, clouds, and radiation on the regional scale. Doktorarbeit, 12.01.02; LK 01.
- Barahona, D. und A. Nenes, 2009: Parameterizing the competition between homogeneous and heterogeneous freezing in ice cloud formation - polydisperse ice nuclei. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **9** (16), 5933–5948.
- Bechtold, P., M. Köhler, T. Jung, F. Doblas-Reyes, M. Leutbecher, M. J. Rodwell, F. Vitart, und G. Balsamo, 2008: Advances in simulating atmospheric variability with the ECMWF model: From synoptic to decadal time-scales. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **134** (634), 1337–1351.
- Binkowski, F. S. und U. Shankar, 1995: The regional particulate matter model: 1. Model description and preliminary results. *J. Geophys. Res.: Atmospheres*, **100** (D12), 26 191–26 209.
- Blitzortung.org, 2018: [http://de.blitzortung.org/historical\\_maps.php](http://de.blitzortung.org/historical_maps.php) [Online; 03.12.2018], [http://de.blitzortung.org/historical\\_maps.php](http://de.blitzortung.org/historical_maps.php) [Online; 03.12.2018].
- Boucher, O., 2015a: *Aerosol–Cloud Interactions*, 193–226. Springer Netherlands, Dordrecht.

- Boucher, O., 2015b: *Aerosol–Radiation Interactions*, 173–192. Springer Netherlands, Dordrecht.
- Camponogara, G., M. A. Faus da Silva Dias, und G. G. Carrió, 2018: Biomass burning can enhance the dynamics of a mesoscale convective system over the la plata basin: a numerical approach. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **18** (3), 2081–2096.
- Capes, G., B. Johnson, G. McFiggans, P. I. Williams, J. Haywood, und H. Coe, 2008: Aging of biomass burning aerosols over west africa: Aircraft measurements of chemical composition, microphysical properties, and emission ratios. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **113** (D00C15).
- Cassie, A. B. D., 1948: Contact angles. *Discuss. Faraday Soc.*, **3**, 11–16.
- Colella, P. und P. R. Woodward, 1984: The Piecewise Parabolic Method (PPM) for gas-dynamical simulations. *J. Comput. Phys.*, **54** (1), 174 – 201.
- Crutzen, P. J. und M. O. Andreae, 1990: Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. **250** (4988), 1669–1678.
- DeMott, P. J., M. D. Petters, A. J. Prenni, C. M. Carrico, S. M. Kreidenweis, J. L. Collett, und H. Moosmüller, 2009: Ice nucleation behavior of biomass combustion particles at cirrus temperatures. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **114** (D16).
- Fountoukis, C. und A. Nenes, 2005: Continued development of a cloud droplet formation parameterization for global climate models. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **110** (D11).
- Freitas, S. R., K. M. Longo, und M. O. Andreae, 2006: Impact of including the plume rise of vegetation fires in numerical simulations of associated atmospheric pollutants. *Geophysical Research Letters*, **33** (17), 117808.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, J. Trentmann, und D. Latham, 2010: Technical note: Sensitivity of 1-d smoke plume rise models to the inclusion of environmental wind drag. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **10** (2), 585–594.
- Freitas, S. R., et al., 2007: Including the sub-grid scale plume rise of vegetation fires in low resolution atmospheric transport models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **7** (13), 3385–3398.
- Fromm, M. D. und R. Servranckx, 2003: Transport of forest fire smoke above the tropopause by supercell convection. *Geophysical Research Letters*, **30** (10).
- Gassmann, A. und H.-J. Herzog, 2008: Towards a consistent numerical compressible non-hydrostatic model using generalized Hamiltonian tools. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **134** (635), 1597–1613.
- Gilman, J. B., et al., 2015: Biomass burning emissions and potential air quality impacts of volatile organic compounds and other trace gases from fuels common in the us. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15** (24), 13 915–13 938.

- Haarig, M., A. Ansmann, H. Baars, C. Jimenez, I. Veselovskii, R. Engelmann, und D. Althausen, 2018: Extreme levels of canadian wildfire smoke in the stratosphere over central europe – part 2: Lidar study of depolarization and lidar ratios at 355, 532, and 1064 nm and of microphysical properties. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **2018**, 1–22.
- Hallett, J. und S. Mossop, 1974: Production of secondary ice particles during the riming process. *Nature*, **249 (5452)**, 26.
- Hays, M. D., P. M. Fine, C. D. Geron, M. J. Kleeman, und B. K. Gullett, 2005: Open burning of agricultural biomass: Physical and chemical properties of particle-phase emissions. *Atmospheric Environment*, **39 (36)**, 6747 – 6764.
- Hodzic, A. und J. P. Duvel, 2017: Impact of biomass burning aerosols on the diurnal cycle of convective clouds and precipitation over a tropical island. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **123 (2)**, 1017–1036.
- Hoose, C. und O. Möhler, 2012: Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols: a review of results from laboratory experiments. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **12 (20)**, 9817–9854.
- Hu, Q., et al., 2018: A study of long-range transported smoke aerosols in the upper troposphere/lower stratosphere. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/acp-2018-655>, in review, **25**.
- Huang, R., X. Zhang, D. Chan, S. Kondragunta, A. G. Russell, und M. T. Odman, 2018: Burned area comparisons between prescribed burning permits in southeastern united states and two satellite-derived products. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **123 (9)**, 4746–4757.
- Ichoku, C. und Y. J. Kaufman, 2005: A method to derive smoke emission rates from modis fire radiative energy measurements. **43**, 2636 – 2649.
- Janhäll, S., M. O. Andreae, und U. Pöschl, 2010: Biomass burning aerosol emissions from vegetation fires: particle number and mass emission factors and size distributions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **10 (3)**, 1427–1439.
- Kaiser, J. W., et al., 2012: Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power. *Biogeosciences*, **9 (1)**, 527–554.
- Kaufman, Y. J., et al., 1998: Potential global fire monitoring from eos-modis. *J. Geophys. Res.*, **103**.
- Khaykin, S. M., S. Godin-Beekmann, A. Hauchecorne, J. Pelon, F. Ravetta, und P. Keckhut, 2018: Stratospheric smoke with unprecedentedly high backscatter observed by lidars above southern france. *Geophysical Research Letters*, **45 (3)**, 1639–1646.
- Knopf, D. A. und Y. J. Rigg, 2011: Homogeneous ice nucleation from aqueous inorganic/organic particles representative of biomass burning: Water activity, freezing temperatures, nucleation rates. *The Journal of Physical Chemistry A*, **115 (5)**, 762–773, pMID: 21235213.

- Kumar, P., I. N. Sokolik, und A. Nenes, 2009: Parameterization of cloud droplet formation for global and regional models: including adsorption activation from insoluble ccn. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **9** (7), 2517–2532.
- Lack, D., J. Langridge, R. Bahreini, C. A. Brock, A. Middlebrook, und J. Schwarz, 2012: Brown carbon and internal mixing in biomass burning particles. **In Press**.
- Liu, P. F., et al., 2011: Hygroscopic properties of aerosol particles at high relative humidity and their diurnal variations in the north china plain. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **11** (7), 3479–3494.
- Liu, Y., et al., 2018: Investigation of short-term effective radiative forcing of fire aerosols over north america using nudged hindcast ensembles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **18** (1), 31–47.
- Lohmann, U., 2006: Aerosol effects on clouds and climate. *Space Science Reviews*, **125** (1), 129–137.
- Luderer, G., J. Trentmann, T. Winterrath, C. Textor, M. Herzog, H. F. Graf, und M. O. Andreae, 2006: Modeling of biomass smoke injection into the lower stratosphere by a large forest fire (part ii): sensitivity studies. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6** (12), 5261–5277.
- Markowicz, K., et al., 2016: Study of aerosol optical properties during long-range transport of biomass burning from canada to central europe in july 2013. *Journal of Aerosol Science*, **101**, 156 – 173.
- Marlon, J., et al., 2008: Erratum : Climate and human influences on global biomass burning over the past two millennia (nature geoscience (2009) 1:697-702). *Nature Geoscience*, **1**, 697–702.
- Matthias, V., C. Böckmann, V. Freudenthaler, G. Pappalardo, und J. Bösenberg, 2002: Lidar intercomparisons on algorithm and system level in the frame of earlinet. Tech. rep., Max Planck Institut for Meteorology.
- McCluskey, C. S., et al., 2012: Characteristics of atmospheric ice nucleating particles associated with biomass burning in the us: Prescribed burns and wildfires. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **119** (17), 10 458–10 470.
- McLean, L., 2017: 'unprecedented' wildfire season poised to continue into fall. <https://www.theweathernetwork.com/news/articles/british-columbia-2017-wildfire-season-devastating-record-breaking-in-comparison-to-previous-years-bc-wildfire-service-sustained-rain-needed-forecast/85964> [Online; posted 2017-09-10], <https://www.theweathernetwork.com/news/articles/british-columbia-2017-wildfire-season-devastating-record-breaking-in-comparison-to-previous-years-bc-wildfire-service-sustained-rain-needed-forecast/85964> [Online; posted 2017-09-10].
- Morrison, H., J. A. Curry, und V. I. Khvorostyanov, 2005: A new double-moment microphysics parameterization for application in cloud and climate models. part i: Description. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **62** (6), 1665–1677.

- Müller, D., I. Mattis, U. Wandinger, A. Ansmann, D. Althausen, und A. Stohl, 2005: Raman lidar observations of aged siberian and canadian forest fire smoke in the free troposphere over germany in 2003: Microphysical particle characterization. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **110** (D17).
- MunichRE, 2018: Natcatservice.
- NASA Worldview, 2018: <https://worldview.earthdata.nasa.gov/> [Online; 21.11.2018], <https://worldview.earthdata.nasa.gov/> [Online; 21.11.2018].
- Natural Resources Canada, C. F. S., 2017: The state of canada's forests: Annual report 2017. P. 14, <http://cfs.nrcan.gc.ca/publications/download-pdf/39336>, p. 14.
- Natural Resources Canada, C. F. S., 2018: The state of canada's forests: Annual report 2018. P. 33, <http://cfs.nrcan.gc.ca/publications/download-pdf/39336>, p. 33.
- Nenes, A. und J. H. Seinfeld, 2003: Parameterization of cloud droplet formation in global climate models. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **108** (D14).
- Niederschlagsradar.de, 2018: [www2.sat24.com/history.aspx](http://www2.sat24.com/history.aspx) [Online; 21.11.2018], [www2.sat24.com/history.aspx](http://www2.sat24.com/history.aspx) [Online; 21.11.2018].
- Noppel, H., U. Blahak, A. Seifert, und K. D. Beheng, 2010: Simulations of a hailstorm and the impact of ccn using an advanced two-moment cloud microphysical scheme. *Atmospheric Research*, **96** (2), 286 – 301, 15th International Conference on Clouds and Precipitation.
- Ortiz-Amezcuca, P., et al., 2017: Microphysical characterization of long-range transported biomass burning particles from north america at three earlinet stations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **17** (9), 5931–5946.
- Peterson, D., J. Campbell, E. Hyer, M. Fromm, G. Kablick, J. Cossuth, und M. DeLand, 2018: Wildfire-driven thunderstorms cause a volcano-like stratospheric injection of smoke. *NPJ Clim. Atmos. Sci.*, **1**.
- Peterson, D., E. Hyer, J. R. Campbell, J. Solbrig, und M. D. Fromm, 2016: A conceptual model for development of intense pyrocumulonimbus in western north america. **145**.
- Petters, M. D., C. M. Carrico, S. M. Kreidenweis, A. J. Prenni, P. J. DeMott, J. L. Collett, und H. Moosmüller, 2009a: Cloud condensation nucleation activity of biomass burning aerosol. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **114** (D22).
- Petters, M. D., et al., 2009b: Ice nuclei emissions from biomass burning. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **114** (D7).
- Phillips, V. T. J., P. J. Demott, C. Andronache, K. A. Pratt, K. A. Prather, R. Subramanian, und C. Twohy, 2013: Improvements to an empirical parameterization of heterogeneous ice nucleation and its comparison with observations. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **70** (2), 378–409.

- Pósfai, M., R. Simonics, J. Li, P. V. Hobbs, und P. R. Buseck, 2003: Individual aerosol particles from biomass burning in southern africa: 1. compositions and size distributions of carbonaceous particles. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, **108** (D13).
- Prenni, A. J., P. J. DeMott, A. P. Sullivan, R. C. Sullivan, S. M. Kreidenweis, und D. C. Rogers, 2012: Biomass burning as a potential source for atmospheric ice nuclei: Western wildfires and prescribed burns. *Geophysical Research Letters*, **39** (11).
- Pruppacher, H. R. und J. D. Klett, 1997: *Microphysics of clouds and precipitation*. 2. ed., Atmospheric and oceanographic sciences library ; 18, Kluwer, Dordrecht [u.a.], 509-512 S.
- Psichoudaki, M., A. Nenes, K. Florou, C. Kaltsonoudis, und S. N. Pandis, 2018: Hygroscopic properties of atmospheric particles emitted during wintertime biomass burning episodes in athens. *Atmospheric Environment*, **178**, 66 – 72.
- Raschendorfer, M., 2001: The new turbulence parameterization of LM. *COSMO newsletter*, **1**, 89–97.
- Reid, J. S., R. Koppmann, T. F. Eck, und D. P. Eleuterio, 2005: A review of biomass burning emissions part ii: intensive physical properties of biomass burning particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5** (3), 799–825.
- Reinert, D., F. Prill, H. Frank, und G. Zängl, 2016: ICON Database Reference Manual. Tech. Rep. 1.1.7, Forschung und Entwicklung beim Deutschen Wetterdienst.
- Rieger, D., et al., 2015: ICON-ART 1.0—a new online-coupled model system from the global to regional scale. *Geosci. Model Dev.*, **8** (6), 1659–1676.
- Rieger, D. V., 2017: *Der Einfluss von natürlichem Aerosol auf Wolken über Mitteleuropa*. Wissenschaftliche Berichte des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung des Karlsruher Instituts für Technologie ; 71, KIT Scientific Publishing, Karlsruhe.
- Rissler, J., A. Vestin, E. Swietlicki, G. Fisch, J. Zhou, P. Artaxo, und M. O. Andreae, 2006: Size distribution and hygroscopic properties of aerosol particles from dry-season biomass burning in amazonia. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6** (2), 471–491.
- Rose, D., et al., 2010: Cloud condensation nuclei in polluted air and biomass burning smoke near the mega-city guangzhou, china - part 1: Size-resolved measurements and implications for the modeling of aerosol particle hygroscopicity and ccn activity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **10** (7), 3365–3383.
- Rosenfeld, D., U. Lohmann, G. B. Raga, C. D. O’Dowd, M. Kulmala, S. Fuzzi, A. Reissell, und M. O. Andreae, 2008: Flood or drought: How do aerosols affect precipitation? *Science*, **321** (5894), 1309–1313.
- Rosenfeld, D., et al., 2011: Glaciation temperatures of convective clouds ingesting desert dust, air pollution and smoke from forest fires. *Geophysical Research Letters*, **38** (21).

- Saleh, R., C. J. Hennigan, G. R. McMeeking, W. K. Chuang, E. S. Robinson, H. Coe, N. M. Donahue, und A. L. Robinson, 2013: Absorptivity of brown carbon in fresh and photo-chemically aged biomass-burning emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **13** (15), 7683–7693.
- Saleh, R., et al., 2014: Brownness of organics in aerosols from biomass burning linked to their black carbon content. *7*, 647–650.
- Saunders, C. und A. Hosseini, 2001: A laboratory study of the effect of velocity on hallett-mossop ice crystal multiplication. *Atmospheric Research*, **59-60**, 3 – 14, 13th International Conference on Clouds and Precipitation.
- Schuster, G. L., O. Dubovik, und A. Arola, 2016: Remote sensing of soot carbon – part 1: Distinguishing different absorbing aerosol species. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **16** (3), 1565–1585.
- Seifert, A. und K. D. Beheng, 2006: A two-moment cloud microphysics parameterization for mixed-phase clouds. part 1: Model description. *Meteorology and Atmospheric Physics*, **92** (1), 45–66.
- Stein, A. F., R. R. Draxler, G. D. Rolph, B. J. B. Stunder, M. D. Cohen, und F. Ngan, 2015: NOAA's hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system. *Bulletin of the American Meteorological Society*, **96** (12), 2059–2077.
- Twohy, C. H., et al., 2010: Relationships of biomass-burning aerosols to ice in orographic wave clouds. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **67** (8), 2437–2450.
- Valor, G. B., 2018: Natcatservice. <https://www.theweathernetwork.com/news/articles/british-columbia-2017-wildfire-season-devastating-record-breaking-in-comparison-to-previous-years-bc-wildfire-service-sustained-rain-needed-forecast/85964> [Online; posted 2017-09-10], <https://www.theweathernetwork.com/news/articles/british-columbia-2017-wildfire-season-devastating-record-breaking-in-comparison-to-previous-years-bc-wildfire-service-sustained-rain-needed-forecast/85964> [Online; posted 2017-09-10].
- van der Werf, G. R., et al., 2017: Global fire emissions estimates during 1997–2016. *Earth System Science Data*, **9** (2), 697–720.
- Vogel, B., H. Vogel, D. Bäumer, M. Bangert, K. Lundgren, R. Rinke, und T. Stanelle, 2009: The comprehensive model system cosmo-art - radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **9** (22), 8661–8680.
- Wagner, R., M. Jähn, und K. Schepanski, 2018: Wildfires as a source of airborne mineral dust – revisiting a conceptual model using large-eddy simulation (les). *Atmospheric Chemistry and Physics*, **18** (16), 11 863–11 884.
- Walter, C., S. R. Freitas, C. Kottmeier, I. Kraut, D. Rieger, H. Vogel, und B. Vogel, 2016: The importance of plume rise on the concentrations and atmospheric impacts of biomass burning aerosol. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **16** (14), 9201–9219.

- Winker, D., C. Hostetler, M. Vaughan, und A. Omar, 2006: Caliop algorithm theoretical basis document, part 1: Caliop instrument, and algorithms overview, release. *J. Atmos. Ocean. Tech.*, **26**, 2310–2323.
- Wu, Y., et al., 2017: An agricultural biomass burning episode in eastern china: Transport, optical properties, and impacts on regional air quality. *Journal of Geophysical Research*, **122** (4), 2304–2324, cited By :1.
- Zängl, G., 2013: ICON: The icosahedral nonhydrostatic modelling framework of DWD and MPI-M. *Proc. ECMWF Seminar on Numerical Methods for Atmosphere and Ocean Modelling*.
- Zängl, G., D. Reinert, P. Rípodas, und M. Baldauf, 2015: The ICON (ICOsahedral Non-hydrostatic) modelling framework of DWD and MPI-M: Description of the non-hydrostatic dynamical core. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **141** (687), 563–579.

## B Danksagung

Es gilt Dank zu sagen, all jenen, die in den zurückliegenden Jahren, Monaten, Tagen und Stunden zum Gelingen dieser Arbeit ihren besonderen Anteil haben.

Meinen Referenten Prof. Dr. Ch. Kottmeier und Prof. Dr. M. Kunz für die Begleitung und Hilfe bei fachlichen Themen und auch administrativen Angelegenheiten während dieser Arbeit.

Der gesamten Arbeitsgruppe „Spurenstoffmodellierung und Klimaprozesse“ (in aktueller und ehemaliger Besetzung) für die letzten vier Jahre während meiner Hiwi-Zeit, Bachelorarbeit und schließlich Masterarbeit. Auf eure ständige fachliche, technische, strategische und vor allem moralische Hilfsbereitschaft und Unterstützung war stets Verlass. Vielen Dank an Bernhard für deine Betreuung dieser Arbeit und dein hilfreiches Korrekturlesen.

Der gesamten ICON-ART-Gruppe am IMK, dem ICON-Entwicklungsteam beim DWD.

Vielen Dank an die fleißigen Korrekturlesenden, im großen und kleinen Stile.

Und all jenen, die sich bis jetzt in dieser Aufzählung nicht wiederfinden und trotzdem zu erwähnen sind.



# Erklärung

Ich versichere wahrheitsgemäß, die Arbeit selbstständig verfasst, alle benutzten Hilfsmittel vollständig und genau angegeben und alles kenntlich gemacht zu haben, was aus Arbeiten anderer unverändert oder mit Abänderungen entnommen wurde sowie die Satzung des KIT zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis in der jeweils gültigen Fassung beachtet zu haben.

Karlsruhe, den 07.01.2019

Jonas Straub