

Kapitel 8

Resultate und Diskussion

Im letzten Kapitel wurde anhand der erzielten Meßergebnisse verdeutlicht, daß mit Hilfe von simultanen Lidarmessungen von Ozon und Aerosolen in der unteren Troposphäre ein interessanter Einblick in die photochemischen und dynamischen Prozesse der Entwicklung von Ozonsmog gewonnen wird. Ich möchte nun in diesem Kapitel versuchen diese Ergebnisse in einem breiteren Kontext und anhand weiterer Meßdaten zu diskutieren.

In der hier untersuchten Meßperiode gab es nur wenige Tage mit einer ausgeprägten Entwicklung von photochemischen Smog. Das in Kapitel 6 aufgeführte Beispiel vom 8.8.98 kann als eine klassische Sommersmogepisode angesehen werden. Diese Situation ist charakterisiert durch eine Mischungsschicht, in der die lokalen Emissionen unter dem Einfluß der solaren Strahlung zu einer erhöhten Ozonkonzentration führen und nur in geringem Umfang ein Austausch mit der freien Troposphäre stattfindet. Die Luftmasse der Grenzschicht stellt also den "Reaktionskessel" für die Ozonbildung dar.

Die Grenzschicht ist daher von großer Bedeutung und entsprechend wertvoll ist die Möglichkeit, mit einem Rückstreulidar Struktur und Dynamik der PBL, mit Hilfe der Aerosole als "Tracer", zu untersuchen.

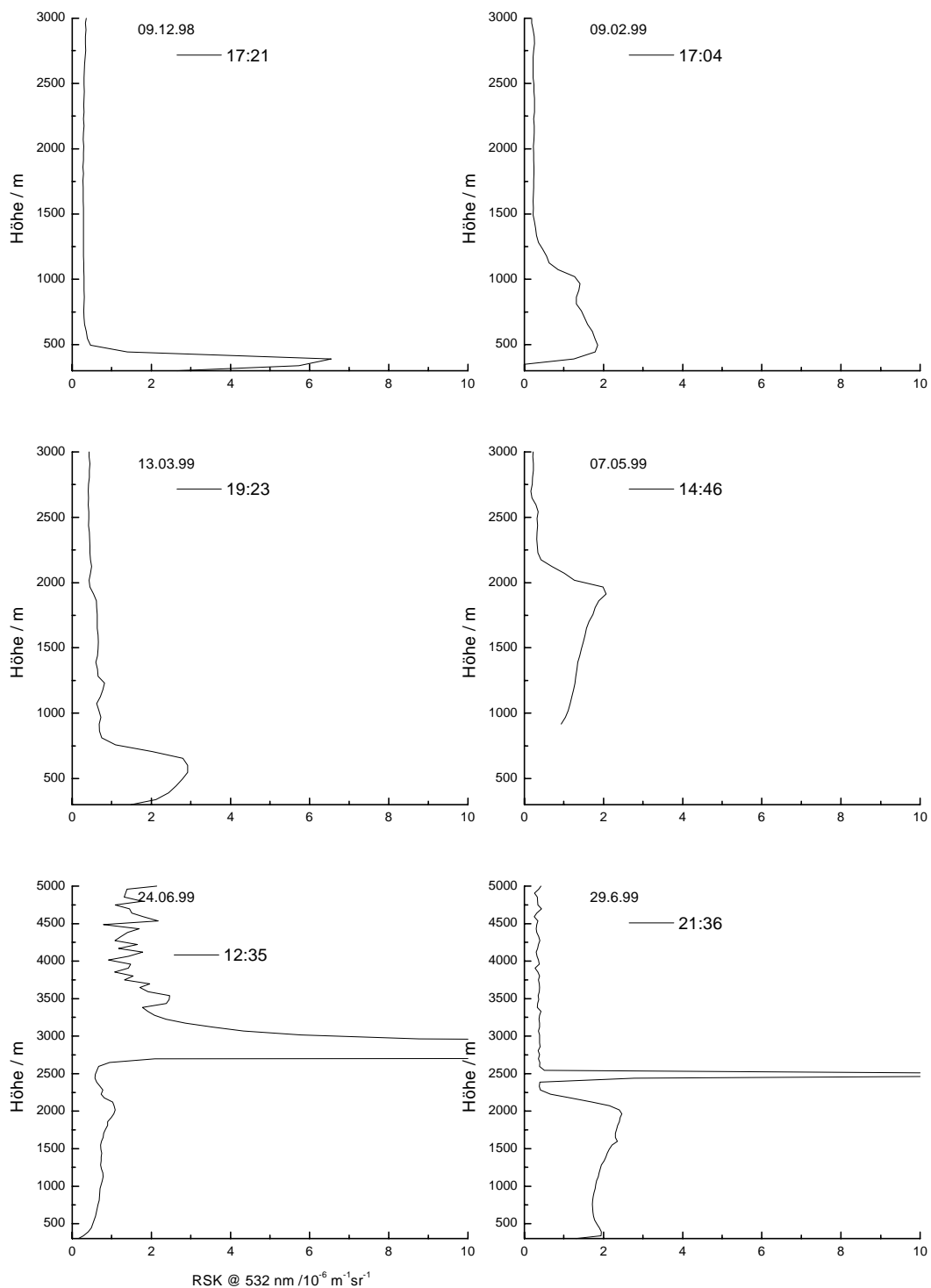


Abbildung 8.1 Aerosolrückstreuung an verschiedenen Tagen. Die Situation einer aerosolreichen Grenzschicht mit scharfer Abgrenzung zur freien Troposphäre ist typisch. Die Höhe dieser Grenze schwankt beträchtlich. Sie liegt im Winter unter 1000 m und kann im Sommer 3000 m erreichen. Vor allem im Sommer bilden sich oft Quellwolken in der oberen Grenzschicht.

8.1 Grenzschicht und photochemischer Smog

An allen Tagen, an denen Messungen mit dem Aerosol-Lidar (TAD) auf der Charité durchgeführt wurden, zeigt sich, daß eine klare Aufteilung der Troposphäre in eine aerosolarme freie Troposphäre und eine aerosolreiche Grenzschicht existiert (Abbildung 8.1). Die Höhe dieser Schicht schwankt zwischen 500 m im Winter und bis zu 3000 m im Sommer und ist in der Regel identisch mit der Grenzschichthöhe nach ihrer dynamischen Definition (vgl. Einleitung). Dies ist auch plausibel, da die Aerosolquellen am Erdboden liegen und das turbulente Regime der PBL die Partikel aufnimmt, während mit der darüber liegenden Schicht wenig Austausch stattfindet.

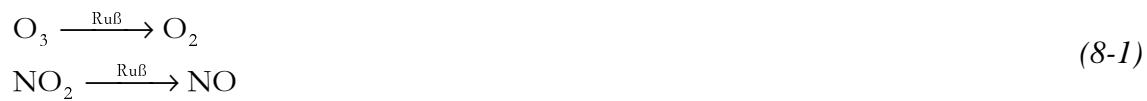
Da Lidarmessungen nur an Tagen mit geringer oder gar keiner Bewölkung durchgeführt werden können, ist zu berücksichtigen, daß dadurch eine Selektion der meteorologischen Bedingungen stattfindet, die hier untersucht werden können. Die hier angestellten Betrachtungen gelten daher nur für Situationen, in denen eine insgesamt stabile Hochdrucklage vorherrscht, entfernt von Frontensystemen. Da dies aber auch Vorbedingung für die Entwicklung photochemischen Smogs ist, ist die Lidar-Technik ein geeignetes Instrument zur Untersuchung dieses Phänomens.

Mit Hilfe der Charakterisierung von Aerosolen mit dem LASD-Verfahren (Kapitel 5) ist es möglich, die Partikel der Grenzschicht zu klassifizieren. Es kann damit unterschieden werden, ob das Aerosol durch urbane Einflüsse geprägt ist oder nicht. Das urbane Aerosol ist durch einen mittleren Partikelradius im Bereich der Kondensationsmode ($r_{\text{med}} < 0,1 \mu\text{m}$), hoher Anzahlkonzentration und dem Rußgehalt erkennbar. Im ruralen Aerosol dominiert dagegen die Akkumulationsmode ($r_{\text{med}} \approx 0,1 \mu\text{m}$) und man findet keine Rußbeimengungen.

Ein einfacher Zusammenhang zwischen urbaner, mit Schadstoffen belasteter Luft und Ozonsmog existiert indessen nicht. Dies war auch nicht zu erwarten, da der Bildung von photochemischen Smog ein sehr komplexes chemisch-dynamisches System mit einer großen Anzahl von Einflußfaktoren zugrunde liegt, die von den hier gezeigten Lidarmessungen allein nicht erfaßt werden können. Eine Analyse der Daten ist daher nur unter Hinzunahme weiterer Meßwerte, wie NO_x und VOC-Daten und mit Hilfe gekoppelter Chemie-Transport-Modelle (CTM) möglich. Dies ist Teil des BERLIOZ-Vorhabens und führt über den Rahmen dieser Arbeit weit hinaus. Es ergeben sich aber aus den hier vorgestellten Daten einige Aspekte, auf die ich an dieser Stelle hinweisen möchte.

In den Daten vom 8. August zeigt sich eine auffällige Antikorrelation zwischen dem Rußanteil des Aerosols und der Ozonkonzentration. Es wurde bereits darauf hingewiesen, daß urbaner Aerosolcharakter als Tracer für NO-reiche Luft verstanden werden kann, was eine Erklärung für diesen Sachverhalt bietet (Gl. 1-4). Es gibt aber noch weitere Aspekte, die hier eine Rolle spielen können. So weisen Lary et al. [1997] darauf hin, daß heterogene Reaktionen an Rußpartikeln signifikant in die Photochemie eingreifen können. Schwarzer Kohlenstoff ist ein effizientes Reduktionsmittel und kann somit ein Gegengewicht zu dem, von Oxidantien geprägten Sommersmog-Regime bilden.

Heterogene Reaktionen an Rußoberflächen, wie



führen zu einem unmittelbaren Rückgang der Ozonkonzentration. Wohingegen die Reduktion von Salpetersäure durch Ruß



die Ozonbildung fördern könnte. Die vorliegenden Meßdaten zeigen an, daß diese Reaktion eine untergeordnete Rolle spielt und 8-1 die wichtigere Rolle spielt.

Ein weiterer Effekt dieser Reaktionen ist, daß sie auch die Eigenschaften des Rußes selbst verändern. Durch die Oxidation kann die zunächst hydrophobe Oberfläche von Rußpartikeln chemisch so umgewandelt werden, daß sie sich besser als Kondensationskeim eignet [Kotzick et al., 1997]. Dadurch kann Ruß leichter durch feuchte Deposition aus der Atmosphäre entfernt werden. Ozon erweist sich einmal mehr als Putzmittel der Atmosphäre.

In den Lidarmessungen fällt auf, daß in der auffällig ozonreichen Luft, die bspw. am 8.8.98 oder am 20.7. nach ca. 19:00 UTC beobachtet wurde, kein Rußgehalt festgestellt werden konnte. Da die hohe Ozonkonzentration darauf hindeutet, daß diese Luftmasse Emissionen aus dem Verkehr ausgesetzt war, bleibt die Frage, was mit dem Ruß aus diesen Quellen passiert ist. Möglicherweise führen die oben genannten Oxidationsprozesse dazu, daß sich Ruß soweit in seinen optischen und chemischen Eigenschaften verändert, daß er in den Lidarmessungen nicht mehr als solcher erkannt werden kann, so daß dies ein weiteres Indiz dafür darstellt, das diese Oxidationsprozesse eine wichtige Rolle spielen können.

Ein weiterer Effekt, der im Zusammenhang mit Ruß eine Rolle spielt, ist sein Einfluß auf den Strahlungsfluß mit den entsprechenden Rückkopplungen auf die Photochemie. Dickerson et al. [1997] berichten von Studien, die zeigen, daß durch rußhaltige Aerosole die solare UV-Strahlung soweit absorbiert werden kann, daß die Bildung photochemischen Smogs deutlich unterdrückt wird. Darauf werde ich weiter unten noch genauer eingehen.

Insgesamt ist aus diesen Betrachtungen zu folgern, daß urbanes Aerosol einen merklichen Einfluß auf die Photochemie ausüben kann. Eine quantitative Analyse dieser Prozesse geht aus den oben genannten Gründen über den Rahmen dieser Arbeit hinaus. Die hier vorgelegten Ergebnisse weisen aber deutlich darauf hin, daß das Aerosol auch in dieser Hinsicht mit in Betracht gezogen werden sollte.

Die Beobachtungen, die hier vorgelegt wurden, sind zusammen mit der Modellierung sicherlich geeignet unser Verständnis von der Entwicklung photochemischen Smogs zu vertiefen und gegebenenfalls zu korrigieren.

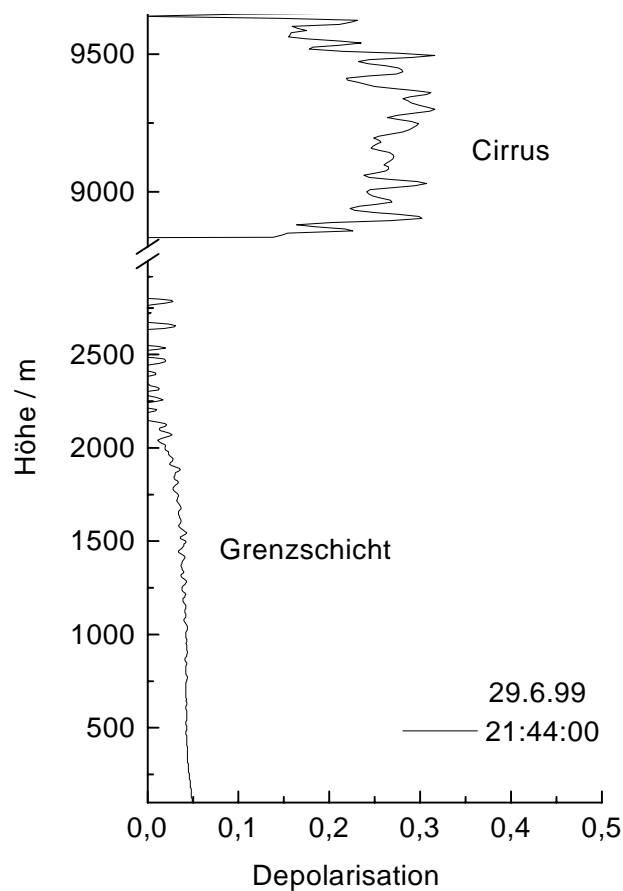


Abbildung 8.2 Gesamtdepolarisation am 29.6.99. Das Aerosol in der Grenzschicht liegt mit 3-5% knapp an der Nachweisgrenze. Ein Zirrus in 9 km Höhe zeigt die für Eispartikel erwarteten 30 % Depolarisation.

8.2 Depolarisations-Messung

Die Polarisation des zurückgestreuten Lichtes beinhaltet, wie in Abschnitt 2.3.2 dargelegt wurde, interessante Information über die Gestalt bzw. Phase der Partikel. Leider war während der BERLIOZ-Kampagne eine polarisationsselektive Detektion nicht möglich, da eine Hardwarekomponente, die den Laser mit dem rotierenden Polarisationsfilter synchronisiert, nicht funktionsfähig war.

Ich möchte deshalb hier einige Messungen der Aerosoldepolarisation zeigen, die zu späteren Zeitpunkten durchgeführt wurden. Daraus wird ersichtlich, daß die Depolarisationseigenschaften des Aerosols in der Grenzschicht keinen großen Schwankungen ausgesetzt sind, so daß diese Daten auf die BERLIOZ-Messungen übertragen werden können.

Der experimentelle Aufbau zur polarisationsabhängigen Messung wurde in Kapitel 3 vorgestellt. Diese Ausführung wurde so realisiert, daß das parallel und das senkrecht zur Laserpolarisation orientierte Rückstreusignal mit derselben Detektionskette nachgewiesen wird, da lediglich der Polarisationsfilter gedreht wird. Dies bietet den Vorteil, daß man eine absolute Messung der Depolarisation durchführt und keine Kalibration der einzelnen Si-

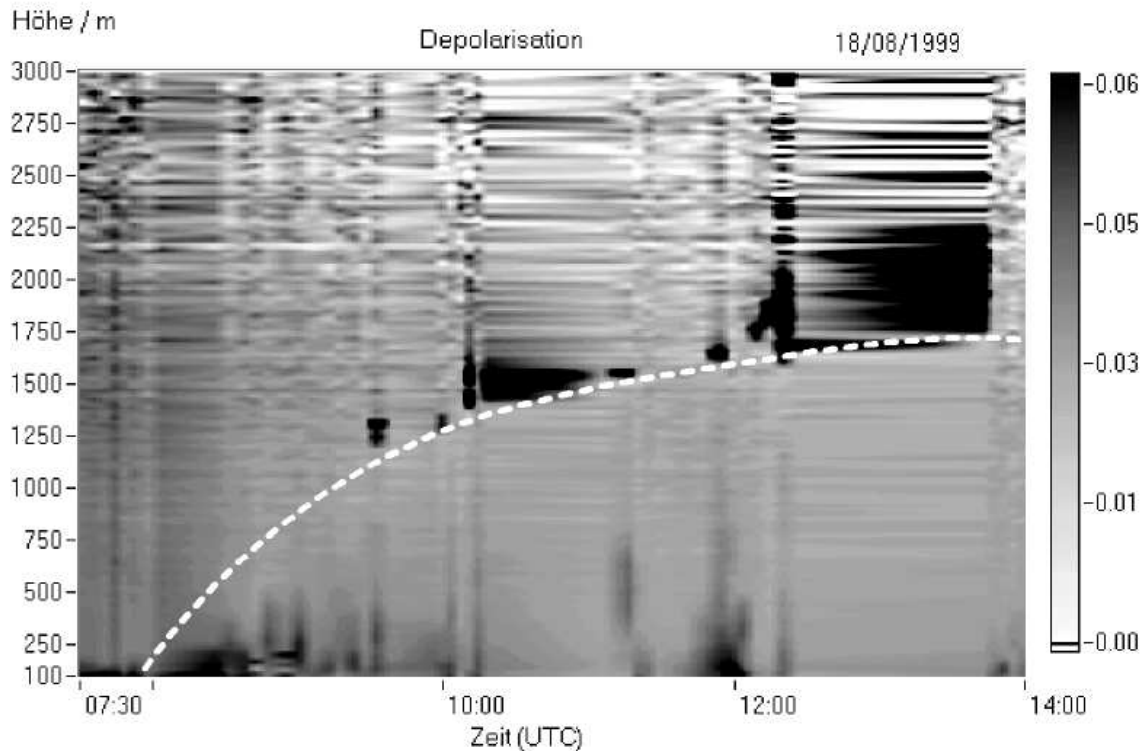


Abbildung 8.3 Lidarmessung der Depolarisation als Funktion der Zeit und der Höhe vom 18.8.99. Die Grenzschichthöhe lag bei etwa 1700 m. Die gestrichelte Linie markiert die Obergrenze der Mischungsschicht. Um 8:00 hebt die Mischungsschicht an, erreicht um 10:00 UTC 1200 m und um 12:00 UTC ist die Grenzschicht durchmischt. Die Wolken, die an der Obergrenze der Mischungsschicht gelegentlich zu beobachten sind, zeigen eine hohe Depolarisation (ca.20%). Das Aerosol in der Grenzschicht zeigt eine kaum meßbare Depolarisation, von sporadischen Schwaden in Bodennähe abgesehen

gnale P^- und P^+ erforderlich ist. Die Gesamdepolarisation ergibt sich einfach aus dem Verhältnis des parallelen und des senkrechten Lidarsignals:

$$d(r) = \frac{P^+(r)}{P^-(r) + P^+(r)} \quad (8-3)$$

Diese gemessene Depolarisation kann durch drei Prozesse verursacht werden: durch Molekülstreuung, durch Streuung an Partikeln und durch die unerwünschten Depolarisationseffekte in der Sende- bzw. Detektionsoptik. Die Depolarisation bei Streuung an Molekülen ist, sofern die rotationellen Raman-Linien durch schmalbandige Filter unterdrückt werden, sehr gering und kann aus Literaturwerten bestimmt werden. sie beträgt in der elastischen Streuung (Cabannes-Linie) etwa 0,3 % [Wedekind, 1997].

Durch die endlichen Krümmungsradien in einem, wegen der Verwendung von Off-Axis-Paraboloiden asymmetrischen, optischen Empfangssystem, wird eine unerwünschte Depolarisation hervorgerufen, die Laserstrahlung selbst ist nach Herstellerangaben bei 532 nm nur zu etwa 97% linear polarisiert. Daraus ergibt sich das Detektionslimit des Instrumentes

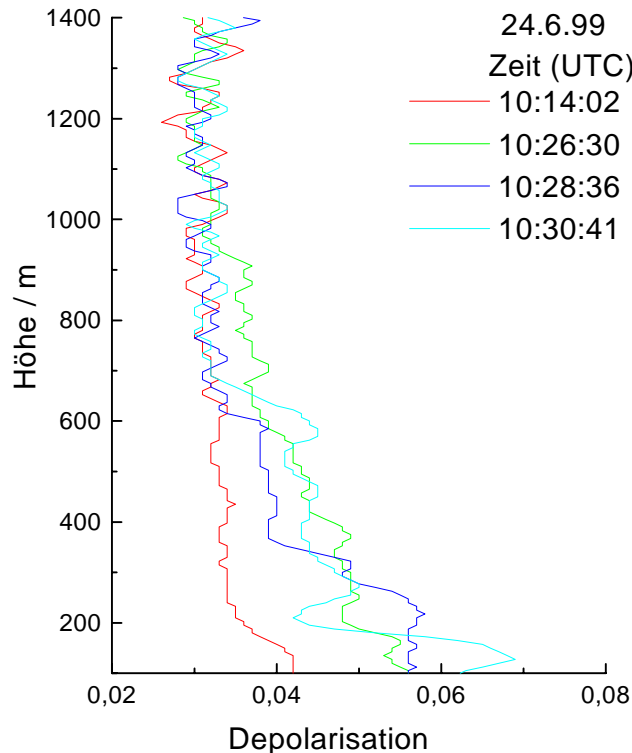


Abbildung 8.4 Die mit Hilfe der Depolarisation nachweisbaren Staubemissionen unterliegen einer starken räumlichen und zeitlichen Schwankung. Mit einer Meßdauer im Bereich von Minuten kann die Ausbreitung dieser Partikel zeitlich nicht mehr aufgelöst werden.

für die Aerosoldepolarisation von etwa 3 - 4%. Diesen Wert mißt man regelmäßig in der freien Troposphäre, so daß dort offensichtlich keine meßbare Gesamdepolarisation auftritt.

Aus Labormessungen geht hervor, daß die Depolarisation an gefrorenen Tröpfchen etwa 30% beträgt [Krämer, 1998]. Das hier verwendete Instrument ist also sensitiv genug, um feste Partikel von flüssigen zu unterscheiden. Abbildung 8.2 zeigt ein Depolarisationsprofil von einer Messung in der ein Zirrus in 9 km Höhe zu beobachten war. Das zurückgestreute Licht aus dieser Wolke ist in der Tat zu 30% depolarisiert.

Die Gesamdepolarisation in der Grenzschicht liegt für alle durchgeführten Messungen bei etwa 3-5 %, also knapp am Detektionslimit. Ein signifikanter Unterschied in der Depolarisation zwischen der Grenzschicht und der wolkenlosen freien Troposphäre ist nicht zu erkennen (vgl. Abbildung 8.3)

Innerhalb der Grenzschicht befinden sich also keine oder wenig Partikel, die die nötige Voraussetzung besitzen um die Laserstrahlung zu depolarisieren, welche die Asphärizität bei einer Größe im Bereich der Wellenlänge oder darüber ist. Die Tatsache, daß innerhalb der Grenzschicht in der Regel keine Depolarisation nachgewiesen werden kann, ist also insbesondere damit verträglich, daß das Gros der Partikel deutlich kleiner ist, als $0,532 \mu\text{m}$. wie es aus der Bestimmung der Aerosol-Größenverteilungen mit dem LASD-Verfahren auch hervorgeht.

Tabelle 8.1 Aus Lidar-Signalen bestimmte Extinktionskoeffizienten des Hintergrund-Aerosols

Tag, Uhrzeit	EK@355 nm / 10^{-5} m^{-1}	Δ EK@355 nm / 10^{-5} m^{-1}	EK@532 nm / 10^{-5} m^{-1}	Δ EK@532 nm / 10^{-5} m^{-1}
09.12.98, 17:21	1,0	0,7	0,4	0,05
09.02.99, 17:04	0,6	0,3	0,2	0,1
13.03.99, 19:23	1,3	0,1	1,0	0,3
07.05.99, 14:46	0,2	0,8	0,2	0,2
24.06.99, 12:35	2,6	1,4	-	-
29.06.99, 21:36	2,6	1,4	0,7	0,3

Sehr interessant ist eine weitere Beobachtung, die mit Hilfe der Depolarisationsmessung gemacht werden kann. Innerhalb der Grenzschicht zeigen sich - in Abbildung 8.3 gut zu erkennen - in Bodennähe immer wieder Bereiche erhöhter Depolarisation bis zu 10 %, die eine starke räumliche und zeitliche Variation aufweisen. Diese sind besonders stark am Morgen in der nicht durchmischten Grenzschicht in Bodennähe zu sehen und verlieren sich mit zunehmender Durchmischung der Grenzschicht. Offensichtlich beobachtet man hier die Emission von festen, depolarisierenden Partikeln, etwa Staub von Baustellen oder ähnlichen Quellen, deren Intensität aber nicht ausreicht, um sich in einer gut durchmischten Grenzschicht deutlich bemerkbar zu machen. Der Effekt bleibt daher auf die Bereiche in Bodennähe beschränkt.

In der parallelen Rückstreuung sind diese Staubschwaden nicht oder kaum zu bemerken, so daß dieses Meßresultat der hohen Sensitivität zu verdanken ist, mit der der senkrecht polarisierte Meßkanal auf feste Teilchen reagiert.

In Abbildung 8.4 sind Einzelprofile der Depolarisation vom 24.6.98 dargestellt. Man ersieht daraus, daß die Staubpartikel im wesentlichen in untersten 500 m der Grenzschicht auftauchen und starken zeitlichen Schwankungen ausgesetzt sind.

Wir hatten im vorhergehenden Kapitel, im Zusammenhang mit der Vergleichsmessung zur Qualitätssicherung der Ozondaten, diskutiert, daß auch in einer durchmischten Grenzschicht Inhomogenitäten zu beobachten sind, die sich insbesondere in Bodennähe bemerkbar machen. Horizontalprofile von Ozon weisen oft erhebliche Konzentrationsschwankungen auf (Abbildung 6-22). Wir sehen in den Depolarisationsmessungen nun einen erneuten Hinweis darauf, daß in Bodennähe in einer urbanen Atmosphäre mit erheblichen Inhomogenitäten zu rechnen ist. Es ist anzunehmen, daß diese depolarisierenden Luftpakete, die zunächst nur auf eine unterschiedliche Belastung mit festen Partikeln hinweisen, auch im Hinblick auf gasförmige Emissionen anders belastet sind, als die sie umgebende Luft.

Auf diesem Hintergrund ist es plausibel, daß bei Ozonmessungen in den unteren 500 m der Grenzschicht erhebliche Variationen festgestellt werden. Da zeitlichen Schwankungen dieser Inhomogenitäten deutlich schneller sind als eine einzelne Lidarmessung dauert, können bei Profilmessungen entsprechende Verzerrungen auftreten, die durch weiträumige Mittelwertbildung wieder ausgeglichen werden. Auf dieser Grundlage sind die im vorhergehenden Kapitel vorgelegten Resultate von Ozonmessungen innerhalb der Grenzschicht gut nachzuvollziehen.

8.3 Die freie Troposphäre

Es wurde bereits erwähnt, daß die freie Troposphäre in aller Regel als aerosolarm angesehen werden kann. Dennoch findet sich dort eine gewisse Menge an Hintergrund-Aerosol, daß für die Auswertung der Lidardaten berücksichtigt werden muß. Ich bin im entsprechenden Abschnitt in Kapitel 4.1.2 darauf eingegangen. Der glatte Verlauf der Aerosolrückstreuung oberhalb der Grenzschicht (Abbildung 8.1) läßt darauf schließen, daß dieses Hintergrund-Aerosol relativ gleichmäßig in der freien Troposphäre verteilt ist.

In Kapitel 4.1 wurde eine Methode beschrieben, wie unter diesen Bedingungen der Extinktionskoeffizient des Hintergrund-Aerosols mit Hilfe der Lidar-Signale bestimmt werden kann. In Tabelle 8.1 sind Werte für die in Abbildung 8.1 dargestellten Rückstreuprofile angegeben, die auf diese Weise gewonnen wurden. Man erkennt daraus, daß die Extinktion gerade am oder knapp oberhalb des Detektionslimits dieses Verfahrens liegt, so daß man mit diesem Meßergebnis keine weitere Charakterisierung des Hintergrund-Aerosols vornehmen kann. Die Ursache dafür ist, daß das Aerosol-Lidar für Messungen innerhalb der Grenzschicht konstruiert wurde und das Signal in der oberen Troposphäre nicht mehr sehr hoch ist. Es kann jedoch ein Maximalwert für die Aerosolextinktion in der freien Troposphäre angegeben werden.

Der Vergleich mit den Werten der Modellaerosole für die freie Troposphäre (Tabelle 4.2) zeigt, daß die Aerosollast der freien Troposphäre von diesen tendenziell überschätzt wird. Am ehesten stimmen die Werte des Modells von Jaenicke mit den Lidar-Beobachtungen überein. Extinktionswerte von über $2 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ bei 532 nm können anhand der Lidarmessungen nicht nachvollzogen werden. Das Hintergrund-Modell von Shettle und Fenn [1979] gibt daher die Aerosolkonzentration zu hoch an, es ist durchaus denkbar, daß die Aerosolbelastung aufgrund sinkender SO_2 -Emissionen seit den siebziger Jahren deutlich zurückgegangen ist. Viel zu hoch sind die Angaben von Nyeki et al. [1998], die auf In-Situ-Messungen am Standort Jungfraujoch (3454 m) bei geeigneten Wetterbedingungen beruhen (vgl. Tabelle 4.2). Offensichtlich ist hier immer ein deutlicher Einfluß lokaler Quellen zu berücksichtigen und diese Daten können nicht als repräsentativ für die freie Troposphäre angesehen werden.

Die mit dem Lidar gemessene Mie-Extinktion überschreitet die Marke von $1 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ bei 532 nm nie (Tabelle 8.1). Daraus läßt sich die maximale optische Dicke τ der freien Troposphäre mit

$$\tau = \int_{\text{freie Troposphäre}} \alpha(r) dr \leq 0,1 \quad (8-4)$$

bei 532 nm unter wolkenfreien Bedingungen abschätzen. Die optische Dicke der Aerosole in der Grenzschicht schwankt zwischen 0,1 und 0,5, so daß für Betrachtungen des Einflusses troposphärischer Aerosole z.B. auf die Strahlung zunächst die Partikel in der Grenzschicht untersucht werden müssen, während die freie Troposphäre hier eine untergeordnete Rolle spielt.

Ozonmessungen in der freien Troposphäre waren mit dem hier verwendeten System nicht möglich. Die Messungen deuten aber an, daß ein Austausch zwischen Grenzschicht und freier Troposphäre in der Regel eine untergeordnete Rolle spielt.

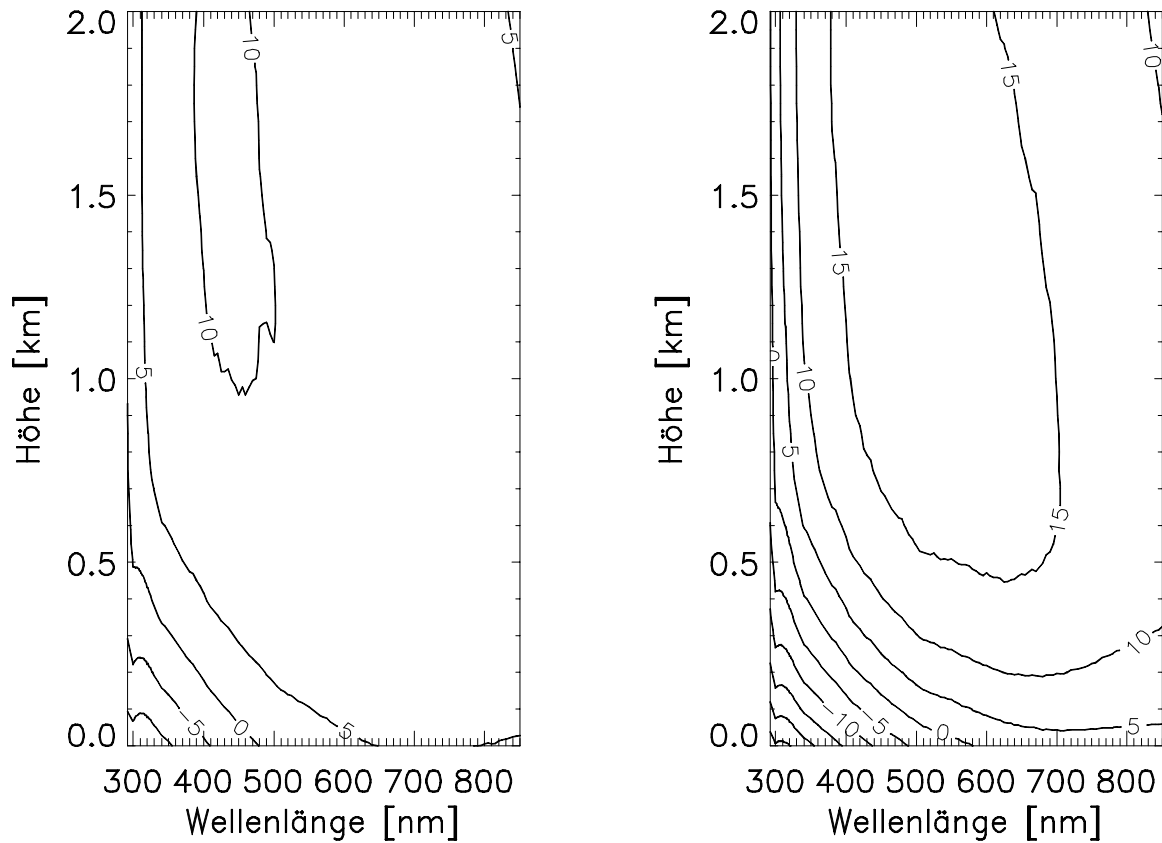


Abbildung 8.5 Veränderung des aktinischen Flusses durch Aerosole. Angegeben ist die Abweichung von einer aerosolfreien Atmosphäre in Prozent, links durch ein einfaches Standard-Aerosol (rurales Modell nach Jaenicke) recht mit doppelter Aerosollast. Diese Daten sind das Ergebnis von Strahlungstransferrechnungen von Barbara Früh, Universität Mainz [priv. Kommunikation].

Tabelle 8.2 Parameter von mit dem Lidar gemessenen Aerosolen vom 8.8.98 (Streukoeffizienten bei 355 nm)

Aerosol:	r_{med} / μm	Δr_{med} / μm	r_{mean} / μm	N / cm^{-3}	EK / 10^{-4} m^{-1}	Absorb./ 10^{-4} m^{-1}	RSK / 10^{-4} m^{-1}
rural	0,072	0,0363	0,12	1086	1,68	0,07	4,7
urban	0,016	0,0212	0,032	1,28E+5	6,6	1,8	5,8

8.4 Aerosole und Strahlung

Der Effekt von Aerosolstreuung auf die Strahlung geht auf zwei Prozesse zurück, die eine gegensätzliche Wirkung erzielen. Durch die Absorption solarer Strahlung durch Partikel wird der aktinische Fluß verringert. Streuung führt dagegen zu einer Erhöhung des aktinischen Flusses, da durch die Verlängerung der optischen Wege in der Summe mehr Strahlung innerhalb des Aerosols unterwegs ist. Es hängt nun u.a. von den optischen Eigenschaften der Partikel ab, welcher Effekt überwiegt. Abbildung 8.5 zeigt den Einfluß von Aerosolen in der Grenzschicht auf den aktinischen Fluß als prozentuale Abweichung zu einer aerosolfreien Atmosphäre. Im oberen Bereich der Grenzschicht nimmt der Strahlungsfluß aufgrund der Streuung um bis zu 15% zu. In Bodennähe überwiegt dagegen bei den kürzeren Wellenlängen die abschirmende Wirkung der Partikel und die Strahlung wird geringer.

Wie bereits am Ende des 1. Kapitels erwähnt wurde, kann durch troposphärisches Ozon und Aerosol die Globalstrahlung am Boden erheblich beeinflusst werden. Neuere Veröffentlichungen berichten von einem Rückgang der Bestrahlungsintensität von über 20% durch eine Zunahme des Aerosols in den letzten 40 Jahren [Reuder und Schwander, 1999]. Dies trifft insbesondere auch auf die UV-B-Strahlung zu, so daß ein negativer Trend im stratosphärischen Ozon durch die anthropogen verursachte Partikelbildung kompensiert werden könnte und daher keine Zunahme der Strahlenbelastung durch UV-B in den letzten Jahrzehnten festgestellt werden konnte. Da dies aber nur für die Bestrahlungsstärke am Boden gilt und der Strahlungsfluß schon in einigen hundert Metern Höhe durch das Aerosol vergrößert wird, kann das Aerosol einen wichtigen Einfluß auf die Bildung troposphärischen Ozons haben und so maßgeblich an der globalen Zunahme beteiligt sein [Dickerson et al., 1997].

Mit Hilfe der mit dem Lidar gemessenen Aerosoldaten können diese Aussagen nun an einem konkreten Beispiel in einer urbanen Umgebung überprüft werden, da die optischen Parameter mit Hilfe der ASD-Methode nun bekannt sind. Diese sind für die verschiedenen Aerosoltypen sehr unterschiedlich, insbesondere dann, wenn sie sich im Rußgehalt unterscheiden. Der rural geprägte Typ, der am 8.8. detektiert wurde (Tabelle 8.2) kann nur weniger als 1% der Strahlung (bei 355 nm) absorbieren, während urbane, rußhaltige Partikel bis zu 10% dieser Strahlung in der Grenzschicht absorbieren. Eine genaue Berechnung der Strahlungsfelder ist jeweils nur mit Hilfe von Strahlungstransfermodellen möglich.

Die Ergebnisse, die ich hierzu an dieser Stelle vorlegen kann, haben lediglich einen vorläufigen Charakter, da die Untersuchungen und Modellierungen der Daten noch nicht abgeschlossen sind. Ich verweise hierzu auf die Forschungsergebnisse der Kooperationspartner, die im kommenden Jahr im Rahmen von Promotionen vorliegen werden. Eva Eckstein vom Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz, führte die Radiometermessungen auf der Station Charité durch und Barbara Früh (Universität Mainz) modelliert den Strahlungstransfer basierend auf den Aerosolprofilen, die mit dem Lidar bestimmt wurden.

Nachdem man anhand der weiter oben asugeführten Überlegungen einen deutlichen Einfluß der Aerosole auf die Strahlung erwarten würde, erstaunt das Ergebnis der Radiometermessungen. In Abbildung 8.6 sind diese Daten zusammen mit den Ergebnissen der Modellrechnungen in Form der Photolysefrequenz von J_{NO_2} vom 8.8.98 dargestellt. Man erhält diese, für die Ozonbildung bedeutende Größe, indem die spektral aufgelösten Radiome-

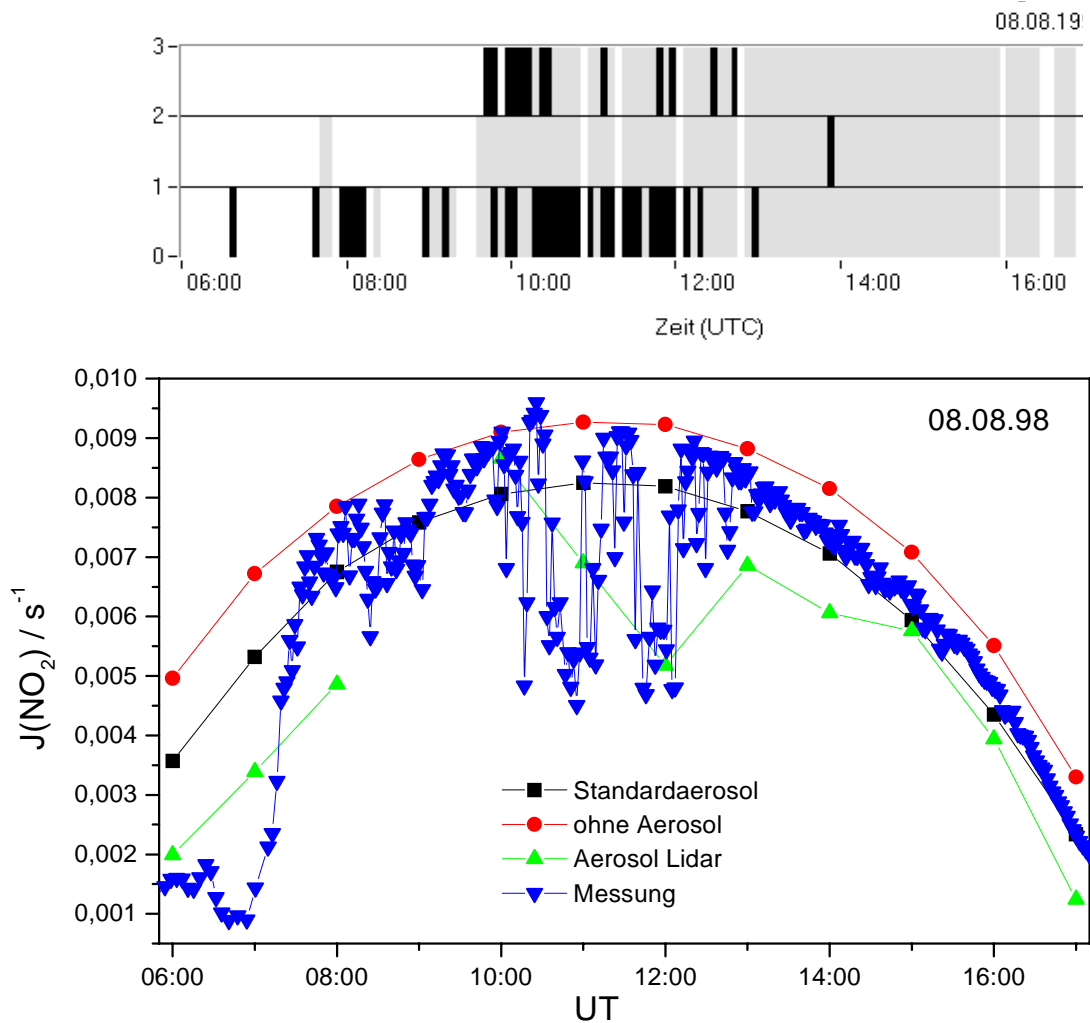


Abbildung 8.6 Photolysefrequenz (J_{NO_2}) vom 8.8.98, Vergleich der Meßergebnisse der Radiometer-Messungen mit Strahlungstransferrechnungen. Die obere Grafik zeigt das Auftreten von Wolken an (vgl. Abschnitt 0)

terdaten, mit der Quantenausbeute der Stickstoffdioxid-Photolyse gewichtet, integriert werden. Der Meßfehler wurde mit 10% angegeben.

Man erkennt in Abbildung 8.6, daß während der wolkenfreien oder -armen Perioden kein signifikanter Effekt zu sehen ist. Die Modellierung wurde mit verschiedenen Aerosolszenarien durchgeführt. Die gemessene Photolysefrequenz liegt zwischen dem aerosolfreien Fall und einem Standard-Profil, das von dem Hintergrund-Aerosolmodell nach Jaenicke und einem rurealem Modell für die Grenzschicht ausgeht.

Wird die Strahlung anhand der mit dem Lidar gemessenen Aerosolparameter modelliert, so wird die Photolyserate vor allem dort deutlich unterschätzt, wo dieses Aerosol einen urbanen Charakter aufweist. Dieses Ergebnis ist umso erstaunlicher, wenn man beachtet, daß die entsprechenden Aerosolmodelle nur einen moderat urbanen Charakter aufweisen und nicht die hohen Rußbelastung zeigen, die für urbanes Aerosol aus Standardmodellen angenommen wird. Die Rußbelastung, die sich aus den Lidardaten ergibt, liegt in der Größen-

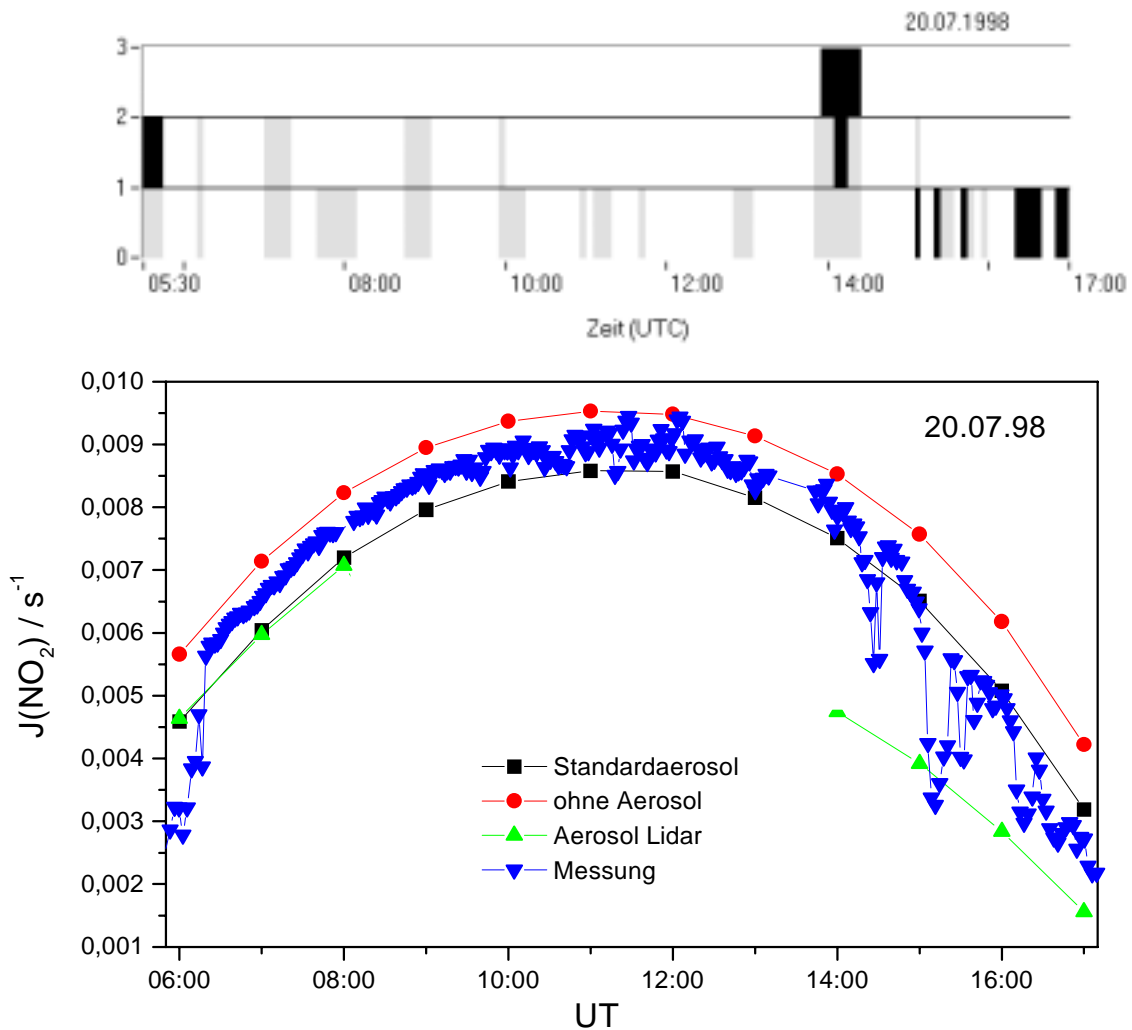


Abbildung 8.7 Photolyseraten und Bewölkung am 20.7.98.

ordnung von unter $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und damit in einem Bereich, der angesichts der $5\text{-}15 \mu\text{m}/\text{m}^3$, die von den Bodenmeßstation des BLUME-Meßnetzes gemessen werden, plausibel erscheint.

Die Diskrepanz, die zwischen den Messungen und den modellierten Strahlungsdaten auftritt, hängt insbesondere damit zusammen, daß die Absorptionsfähigkeit des Aerosols überschätzt wird. Da der Rußgehalt für die urbane Umgebung aber sehr wahrscheinlich ist, wird dessen Einfluß auf die Photolyseraten durch das Modell offensichtlich überschätzt.

Insgesamt gewinnt man den Eindruck, daß der Einfluß des Aerosols auf die Strahlung von dem Strahlungstransfermodell zu hoch berechnet wird. Sicherlich spielt eine Reduzierung der Ozonbildung aufgrund eines Aerosol-Effektes auf die Photolyseraten, für die hier betrachteten Smogtage, keine Rolle. Die weiter oben erwähnten Überlegungen diesbezüglich kommen daher nicht in Betracht.

Gleiches gilt auch für die Strahlung im UV-B-Bereich. Abbildung 8.8 (unten) zeigt die mit der Erythem-Funktion gewichteten Integrale der Strahlung im Bereich von 280 nm bis 320 nm. Obwohl die Situationen an den dargestellten Tagen bezüglich der Aerosol- und Ozonverteilung in der Grenzschicht sehr unterschiedlich waren, ist eine deutliche Auswirkung auf die UV-B-Belastung nicht erkennbar. Die geringen nachweisbaren Unterschiede

sind in erster Linie Folge von Schwankungen im stratosphärischen Ozon (Abbildung 8.8, unten).

Insgesamt werfen diese Daten die Frage auf, inwieweit die in Kapitel 1.4.2 besprochen Auswirkungen von Aerosolen auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre im Bereich des UV-A und -B tatsächlich stichhaltig sind. Ein anthropogen verursachter Effekt auf überregionaler Skala sollte sich bei Messungen in der urbanen Atmosphäre besonders deutlich zeigen! Da die hier vorgestellten Daten noch kein geschlossenes Bild bezüglich der Wirkung troposphärischer Aerosole auf die Strahlung ergeben, kann noch keine eindeutige Aussage hierüber abgeleitet werden und es bleiben zunächst die endgültigen Ergebnisse der oben erwähnten Forschungsarbeiten abzuwarten.

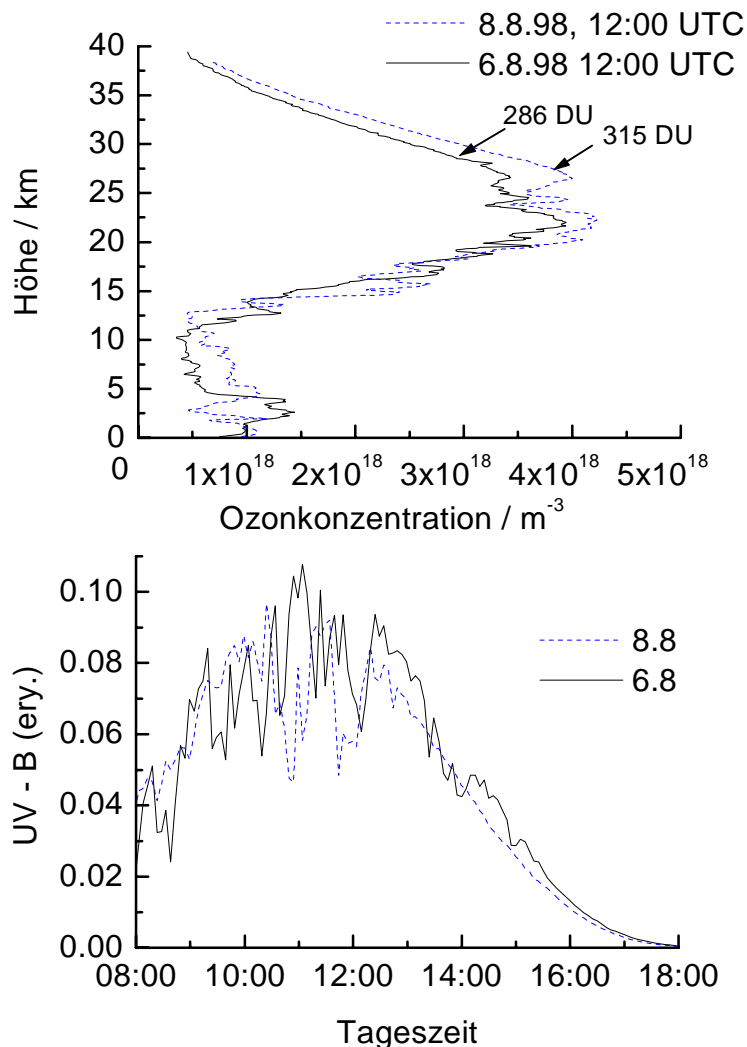


Abbildung 8.8 Erythem-gewichtete UV-B-Strahlung (unten), Station Charité, gemessen mit dem UV-B Spektralradiometer des Alfred-Wegener-Instituts, Bremerhaven [Groß, priv. Kommunikation]. Die Einbrüche sind auf Wolken zurückzuführen. Am Nachmittag war es an allen dargestellten Tagen überwiegend wolkenlos. Oben sind Radiosondenmessung der Ozonkonzentration vom DWD in Lindenberg dargestellt (BERLIOZ-Daten).