

# 1 Die planetare Grenzschicht

Die unterste Schicht unserer Atmosphäre steht in direkter Wechselwirkung mit der Erdoberfläche. Sie ist im Sinne der Strömungsdynamik eine Grenzschicht und wird als *planetare Grenzschicht* (PGS oder auch PBL<sup>1</sup>, ABL<sup>2</sup>, MBL<sup>3</sup>) bezeichnet. Ihre Mächtigkeit ist einem täglichen Rhythmus unterworfen und schwankt zwischen einigen Metern und 5 km. Die Strömung der Luft ist hier turbulent. Dafür gibt es mechanische und thermische Ursachen, insbesondere Scherströmungen und Konvektion. Da sich unser Leben weitgehend innerhalb der planetaren Grenzschicht abspielt, sind wir mit ihren Eigenschaften gefühlsmäßig vertraut. Fragen nach ihrer vertikalen Struktur und Ausdehnung und danach, worin sie sich genau von anderen Schichten der Atmosphäre unterscheidet, können jedoch in zunehmendem Maße erst durch moderne Fernerkundungsmethoden seit der zweiten Hälfte des 20. Jahrhunderts beantwortet werden [Schwiesow, 1984].

Eine charakteristische Größe der planetaren Grenzschicht ist die *Mischungsschichthöhe*. Bis hier werden Emissionen vom Boden vertikal gut durchmischt und verteilt. Von der Bestimmung ihrer genauen räumlichen und zeitlichen Struktur hängt nicht nur die Qualität der Vorhersage meteorologischer Größen ab, sondern in ganz entscheidendem Maße auch die Vorhersage der Konzentration von unliebsamen Luftbeimengungen. Für gewöhnlich ist die Mischungsschicht wesentlich stärker verschmutzt als andere Luftschichten. Das Verdünnungspotenzial für bodennah emittierte Spurenstoffe ist von der vertikalen Mächtigkeit

- 
1. Planetary Boundary Layer
  2. Atmospheric Boundary Layer
  3. Marine Boundary Layer

des konvektiv durchmischten Raumes am Tage abhängig. Eine niedrige Mischungsschichthöhe führt zu einer Ausprägung bzw. Verschärfung lufthygienisch ungünstiger Bedingungen. Die Mischungsschichthöhe ist eine wesentliche Skalierungsgröße bei der Modellierung des vertikalen turbulenten Austauschkoefizienten und der zugehörigen turbulenten Vertikalflüsse von Wärme, Feuchtigkeit, Impuls und Stoffkonzentrationen. Nach Sonnenuntergang sinkt die Obergrenze auf wenige hundert Meter ab, und es bleibt eine *nächtliche Residualschicht*. Sie ist mitbestimmend für die Menge des verfügbaren Ozons, das in der Phase des Übergangs von der nächtlichen stabilen zur tagsüber meist labil geschichteten planetaren Grenzschicht eingemischt werden kann. Dieser Vorgang ist für die Modellierung des Eintrages von Luftbeimengungen aus der freien Troposphäre in die planetare Grenzschicht bedeutsam. Die *Entrainment-Geschwindigkeit* ergibt sich aus der totalen zeitlichen Änderung der Mischungsschichthöhe.

In diesem Kapitel werden die für die planetare Grenzschicht charakteristischen dynamischen und chemischen Prozesse beschrieben, soweit sie von Belang für das Verständnis der Ergebnisse der verwendeten Laser-Fernerkundungsverfahren sind. Gute ausführliche Darstellungen finden sich in Lehrbüchern [Stull, 1989, Seinfeld und Pandis, 1997, Roedel, 1994, Arya, 1988].

## 1.1 Zusammensetzung der Atmosphäre

Bei der Betrachtung der Zusammensetzung der Atmosphäre empfiehlt sich eine Einteilung in trockene Luft, Wasser und atmosphärisches Aerosol.

### 1.1.1 Trockene Luft

Stickstoff und Sauerstoff haben zusammen einen Anteil von über 99 % am Volumen der trockenen Luft. Nimmt man noch das Edelgas Argon dazu, so sind bereits 99,97 % erreicht. Zusammen mit dem Kohlendioxid, dessen Konzentration viel niedriger und etwas variabler ist, sind 99,997 % der trockenen Luft erfasst. Die übrigen 0,003 %, bzw. 30 ppm sind allerdings wichtig, da es sich dabei um reaktive Gase, wie z. B. Ozon und Stickoxide, handelt. In Tabelle 1-1 sind die aktuellen mittleren Konzentrationen der wichtigsten Gase der Troposphäre aufgeführt. Neben dem Volumenanteil eines Gases gibt es noch eine Reihe weiterer sinnvoller Klassifizierungen, insbesondere nach der Masse, der Variabilität der Konzentration, den chemischen Bestandteilen, der Aufenthaltsdauer in der Atmosphäre oder der Herkunft (z. B. natürlich, anthropogen, biologisch, chemische Bildung in der Atmosphäre). Das

Gas	Name	Molekülmasse g/mol	Mischungsverhältnis	Aufenthaltsdauer
Ar	Argon	39,9	0,934 %	
Ne	Neon	20,2	18 ppm <sup>a</sup>	
Kr	Krypton	83,8	1,1 ppm	5 - 10 Jahre
Xe	Xenon	131,3	90 ppb	
He	Helium	4,0	5,2 ppm	
CO <sub>2</sub>	Kohlendioxid	44,0	355 ppm	
N <sub>2</sub>	Stickstoff	28,0	78,0840 %	20 Millionen Jahre
O <sub>2</sub>	Sauerstoff	32,0	20,9460 %	
CH <sub>4</sub>	Methan	16,0	1,72 ppm	3 Jahre
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	Ethan	30,1	0 - 100 ppb	
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	Ethen	28,1	0 - 100 ppb	
C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	Propen	42,1	0 - 50 ppb	
C <sub>5</sub> H <sub>8</sub>	Isopren	68,1	0,2 - 30 ppb	
CH <sub>3</sub> COCH <sub>3</sub>	Azeton	58,1	0 - 10 ppb	
CFCl <sub>3</sub>	CFC-11	136,4	268 ppm	
CF <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub>	CFC-12	119,9	503 ppm	
CCl <sub>4</sub>	Tetrachlorkohlenstoff	153,8	132 ppm	
CH <sub>3</sub> CCl <sub>3</sub>	Methyl-Chloroform	133,4	160 ppm	
CF <sub>2</sub> HCl	HCFC-22	86,5	105 ppm	
CO	Kohlenmonoxid	28,0	180 ppb	0,35 Jahre
H <sub>2</sub>	Wasserstoff	2,0	580 ppb	< 200 Jahre
N <sub>2</sub> O	Lachgas	44,0	311 ppb	
SO <sub>2</sub>	Schwefeldioxid	64,1	10 - 100 ppt	10 Tage
NH <sub>3</sub>	Amoniak	17,0	0,1 - 1 ppb	5 Tage
NO	Stickstoffmonoxid	30,0	1 ppt - 10 ppb	
NO <sub>2</sub>	Stickstoffdioxid	46,0	1 ppt - 10 ppb	2 - 8 Tage
O <sub>3</sub>	Ozon	48,0	10 - 10000 ppb	
H <sub>2</sub> S	Schwefelwasserstoff	34,1	3,6 - 840 ppt	
H <sub>2</sub> O	Wasser	18,0	~ 1 % sehr variabel	

**Tab. 1-1** Gase der Atmosphäre (nach [Seinfeld und Pandis, 1997])

a. ppm: parts per million (z B. Molekül pro 10<sup>6</sup> Moleküle)

Mischungsverhältnis der chemisch stabilen Gase (wie Sauerstoff, Stickstoff und Edelgase) bleibt in der unteren Atmosphäre bis zu einer Höhe von ca. 80 km konstant.

Die trockene Luft kann als ideales Gas angesehen werden [Pruppacher und Klett, 1980]. Bei Standarddruck und -temperatur ( $p_s = 1013,25 \text{ hPa}$ ,  $T_s = 288,15 \text{ K}$ ) am Boden ergibt die Zustandsgleichung eine Konzentration von  $2,546 \cdot 10^{19}$  Molekülen pro  $\text{cm}^3$ .

$$p \cdot V = N \cdot k \cdot T \quad \text{oder} \quad \rho = \frac{p}{k \cdot T} \quad \text{Gl. 1-1}$$

Dabei bezeichnet  $p$  den Druck,  $V$  das Volumen,  $N$  die Anzahl der Moleküle,  $k$  die Boltzmann-Konstante,  $\rho$  die Dichte und  $T$  die Temperatur.

### 1.1.2 Wasser

Wasser tritt als einzige Substanz unter natürlichen Bedingungen auf der Erde in allen drei Aggregatzuständen auf. Als Wasserdampf wird die Gasphase und nicht etwa der Tröpfchennebel, wie er über dem Kochtopf entsteht, bezeichnet. Wegen des Wärmeumsatzes bei den Phasenübergängen und wegen seiner hohen Wärmekapazität spielt Wasser eine bedeutende Rolle in der Thermodynamik der Atmosphäre. Durch starke Absorptionsbanden im infraroten Bereich des Spektrums der Sonnen- und Erdstrahlung beeinflusst Wasserdampf entscheidend den Strahlungshaushalt der Erde.

Um für bestimmte thermodynamische Bedingungen den Wasserdampfgehalt der Atmosphäre zu berechnen, benötigt man den Sättigungsdampfdruck  $p_{\text{H}_2\text{O}}^s$ . Er ist etwas unterschiedlich über Oberflächen aus flüssigem Wasser und Eis (vgl. Abbildung 1-1). Für die Temperaturabhängigkeit des Sättigungsdampfdrucks über Wasser gilt näherungsweise die Magnus-Formel [Warnecke, 1991] mit den Konstanten  $a$  und  $b$  aus Tabelle 1-2:

$$p_{\text{H}_2\text{O}}^s [\text{hPa}] = 6,107 \cdot 10^{\frac{a \cdot T [^\circ\text{C}]}{b + T [^\circ\text{C}]}} \quad \text{Gl. 1-2}$$

	<b>a</b>	<b>b / °C</b>
bei Sättigung über Wasser		
oberhalb des Gefrierpunktes	7,5	235
unterhalb des Gefrierpunktes	7,6	240,7
bei Sättigung über Eis	9,5	265,5

**Tab. 1-2** Konstanten der Magnus-Formel [Warnecke, 1991]

Die Temperatur, bei der Wasserdampfsättigung eintritt, wird Taupunkt-Temperatur  $\tau$  genannt. Bei Radiosonden-Aufstiegen und anderen meteorologischen Wasserdampfmessun-

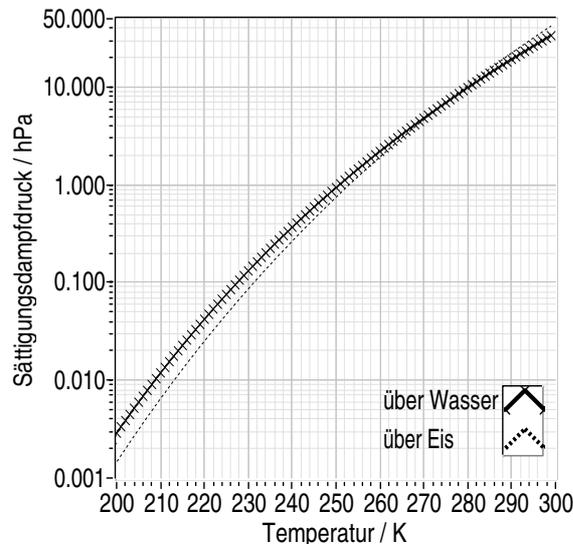


Abb. 1-1 Sättigungsdampfdruck über flüssigem und gefrorenem Wasser nach Gleichung 1-2

gen ist dies die am häufigsten bestimmte Messgröße. Für die Wasserdampfkonzentrationen werden auch folgende Größen häufig verwendet:

- Dampfdruck (Partialdruck des Wasserdampfes):  $p_{\text{H}_2\text{O}} / \text{hPa}$
- relative Luftfeuchtigkeit:  $\text{RH} / \% = p_{\text{H}_2\text{O}} / p_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{S}} \cdot 100$
- Mischungsverhältnis:  $\xi_{\text{H}_2\text{O}} / \text{ppm} = 10^4 \cdot \text{RH} \cdot p_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{S}} / p$

Feuchte Luft hat bei gleicher Temperatur und gleichem Druck eine geringere Dichte als trockene Luft. Die Differenz wird durch die Einführung der virtuellen Temperatur  $T_{\text{V}}$  in der Gasgleichung ausgeglichen [Warnecke, 1991]:

$$\rho = \frac{p}{k \cdot T \cdot [1 - (3/8 \cdot p_{\text{H}_2\text{O}}/p)]^{-1}} = \frac{p}{k \cdot T_{\text{V}}}, \quad T_{\text{V}} = \frac{T}{1 - (3/8 \cdot p_{\text{H}_2\text{O}}/p)}. \quad \text{Gl. 1-3}$$

Die virtuelle Temperatur  $T_{\text{V}}$  ist die Temperatur, die ein Volumen trockener Luft annehmen müsste, um bei gleichem Druck die gleiche Dichte zu haben wie feuchte Luft.

Für die Berechnung der Streuintensität von Laserstrahlung in der Atmosphäre benötigt man das Dichteprofil. Wenn die Messungen von Radiosonden, die täglich an vielen Stellen der Erde durchgeführt werden, zur Berechnung benutzt werden, bietet sich das Konzept der virtuellen Temperatur an, um die Dichteschwankungen durch inhomogene Wasserdampfverteilung zu berücksichtigen. In § 1.1.3 wird das Aufquellen des Aerosols in feuchter Luft behandelt. Die dadurch hervorgerufenen Veränderungen sind auch bei der Simulation von Laserlicht-Streuung nicht vernachlässigbar.

### 1.1.3 Aerosol

Neben den gasförmigen Bestandteilen kommen in der Atmosphäre auch Partikel vor, die sehr viel größer sind als Einzelmoleküle, aber noch so klein, dass sie wegen ihrer geringen Sinkgeschwindigkeit lange schweben. Die Größe dieser Partikel liegt in der Troposphäre zwischen 10 nm und 100  $\mu\text{m}$  und ihre Konzentration variiert zwischen  $10^2$  und  $10^5$  pro  $\text{cm}^{-3}$ . Diese Schwebeteilchen werden *atmosphärisches Aerosol*, im Folgenden kurz *Aerosol*, genannt. In Abbildung 1-3 sind Teilchengrößenverteilungen atmosphärischer Aerosol-Typen [Jänicke, 1993] dargestellt. Man erkennt hier, dass Partikel mit einem Radius von ca. 0,1  $\mu\text{m}$  besonders häufig vorkommen, größere Partikel als 10  $\mu\text{m}$  hingegen äußerst selten. Ihre Sinkgeschwindigkeit ist so groß, dass sie schon nahe der Quelle wieder zur Erdoberfläche zurückkehren. Auch sehr kleine Partikel kommen nicht häufig vor, da sie sich schnell zu größeren zusammenlagern. Die Aerosol-Konzentration ist in der planetaren Grenzschicht am höchsten und nimmt darüber stark ab. Laser-Fernerkundungsverfahren sind prädestiniert, die optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften dieses sehr ungleichmäßig verteilten Bestandteils der Atmosphäre zu untersuchen. Auch Messungen anderer Größen (z. B. Spurengaskonzentrationen) mit diesen Messverfahren erfordern Kenntnisse über die Streueigenschaften des Aerosols. An dieser Stelle werden zunächst wichtige Eigenschaften wie Zusammensetzung und Größenspektrum behandelt, bevor im nächsten Kapitel in § 2.1.2 die Lichtstreuung betrachtet wird.

Nun zunächst zur Entstehung von Aerosol. Grundsätzlich kann es auf zwei verschiedene Arten in die Atmosphäre gelangen.

- Zum einen entsteht Aerosol durch *homogene Nukleation*, d. h. durch Kondensation übersättigter Dämpfe. Dabei kann es sich z. B. um Schwefeldioxid handeln, aus dem sich Schwefelsäure bildet. Eine andere wichtige Reaktion beginnt mit der Bildung von atomarem Sauerstoff und Hydroxylradikalen (OH) bei der Umwandlung von Stickoxiden zu Ozon. Diese reaktiven Substanzen oxidieren dann die in Abgasen enthaltenen Kohlenwasserstoffe und bilden eine Vielzahl von organischen Verbindungen wie z. B. Säuren, Peroxide und Aldehyde. Die zum Teil als übersättigte Dämpfe vorliegenden Reaktionsprodukte kondensieren zu Aerosol und bilden die als Los-Angeles-Smog<sup>1</sup> berüchtigte giftige und trübe Luftbrühe. Die durch homogene Kondensation entstandenen Primärteilchen stellen die kleinste Fraktion im Größenspektrum des Aerosols.

---

1. SMOG: SMOke + foG

- Zum anderen führt Aufwirbelung von Material von der Erdoberfläche, wobei es sich z. B. um Mineralstaub oder Seesalz-Spray handeln kann, zur Aerosolbildung. Dieser Vorgang wird als *Dispersion* bezeichnet. So gebildetes Aerosol stellt mit Durchmessern zwischen 1 und 20  $\mu\text{m}$  die größeren Partikel im Größenspektrum.

Für die Partikelbildung durch homogene Nukleation ist die Überschreitung einer gewissen Mindestgröße einer zufälligen Ansammlung aus mehreren Molekülen notwendig. Das kann durch thermodynamische Betrachtung des Prozesses verstanden werden. Damit das Partikel spontan weiter wächst, muss die freie Enthalpie  $G = U + p \cdot V - T \cdot S$  bei dem Prozess abnehmen. Dabei ist  $U$  die innere Energie,  $V$  das Volumen und  $S$  die Entropie. Für die Veränderung der freien Enthalpie bei der Kondensation gilt folgende Gleichung [Roedel, 1994]:

$$\Delta G = -N \cdot k \cdot T \cdot \ln \frac{p_x}{p_x^s} + \sigma \cdot A = -\frac{4\pi r^3 \cdot \rho_{\text{Fl}}}{3M} \cdot R \cdot T \cdot \ln \frac{p_x}{p_x^s} + 4\pi \cdot r^2 \cdot \sigma. \quad \text{Gl. 1-4}$$

Dabei steht  $p_x$  für den Partial- und  $p_x^s$  für den Sättigungsdampfdruck der Substanz  $x$ ,  $N$  für die Anzahl der kondensierten Moleküle,  $\sigma$  für die Oberflächenspannung,  $A$  für die Oberfläche,  $\rho_{\text{Fl}}$  für die Dichte der Tröpfchenflüssigkeit,  $M$  für die Molmasse und  $R$  für die Gaskonstante. Durch Berechnung des Sattelpunktes der freien Enthalpie ( $d\Delta G/dr|_{r=r^*} = 0$ ) erhält man das kritische Dampfdruckverhältnis  $(p_x/p_x^s)^*$  bzw. den kritischen Radius  $r^*$  für die Nukleation.

$$r^* = \frac{2 \cdot \sigma \cdot M}{R \cdot T \cdot \rho_{\text{Fl}} \cdot \ln(p_x/p_x^s)^*}, \quad \frac{p_x}{p_x^s} = e^{\frac{2\sigma M}{RT\rho_{\text{Fl}}r^*}} \quad \text{Gl. 1-5}$$

Dieser Zusammenhang ist auch als Kelvin-Gleichung bekannt. Kommt es durch eine Überschreitung des kritischen Radius zur Nukleation, ist ein neues Partikel geboren.

Durch Nukleation und Dispersion entsteht also das Primär-Aerosol. Einmal gebildet, führen *Koagulation, heterogene Kondensation, Wolken- und Nebelbildung* und *chemische Reaktionen* zur allmählichen Veränderung. Entstehen keine kleinen Partikel mehr durch Nukleation, so verschwindet der Nukleationsmode, die kleinste Fraktion aus der Größenverteilung, da die Teilchen durch Koagulation anwachsen. An seiner Abwesenheit erkennt man älteres Aerosol. Das Aerosol mit den größten Teilchendurchmessern ist durch Dispersion in die Atmosphäre gelangt. Je größer die Partikel werden, desto schneller sinken sie nach unten.

So halten sich drei Größenklassen die Waage. Trimodale Spektren mit Nukleations-, Koagulations- und Dispersionsmode werden als Whitby-Spektren bezeichnet.

Woraus besteht nun das Aerosol? Aerosol hat gegenüber vielen Gasen eine sehr kurze Verweildauer in der Atmosphäre - die Lebenszeit einer Aerosol-Wolke liegt im Bereich von Minuten bis Wochen, im Gegensatz zu der von CO<sub>2</sub>-Molekülen, die Jahrzehnte bis Jahrhunderte überleben. Daher ist die Zusammensetzung stark regional durch die kurze Entstehungsgeschichte geprägt. Die Partikel der *Nukleations- und Koagulations-Mode* enthalten vor allem Wasser, Sulfat-, Nitrat-, Ammonium- und Wasserstoff-Ionen, elementaren Kohlenstoff (Ruß), organische Verbindungen und Metalle (Pb, Cd, V, Ni, Cu, Zn, Mn, Fe u. a.). Sie entstehen bei Verbrennungsprozessen von Kohle, Öl, Benzin, Diesel und Holz, durch Feinstaub in der Nähe von Schmelzhütten und Mühlen und durch Gas-zu-Partikel-Konvertierung, insbesondere aus NO<sub>x</sub>, SO<sub>3</sub> und flüchtigen Kohlenwasserstoffen. Während ihrer Lebenszeit von Tagen bis Wochen werden sie über hunderte bis tausende Kilometer weit verbreitet. Die groben Partikel der *Dispersionsmode* entstehen durch Wiederaufwirbelung von Industriestaub und Boden in der Landwirtschaft, auf unbefestigten Straßen und im Bergbau, aus biologischen Quellen, bei Errichtung und Abriss von Bauwerken oder durch Sandstürme und Salzwasser-Spray. Bei hoher Windgeschwindigkeit entstehen an der Ozeanoberfläche Luftblasen, die beim Platzen viele kleine Wassertropfen freisetzen. Wenn diese verdunsten, bleibt Seesalz-Aerosol übrig. Die Bestandteile groben Aerosols sind vor allem Staub, Kohlen- und Öl-Flugasche, Elemente der Erdkruste (Si, Al, Ti, Fe), Oxide, Kalk, Speisesalz, Pollen, Schimmel, Sporen, Pflanzen- und Tiererteile und Reifenabrieb. Durch ihre Größe werden sie schneller am Boden deponiert und haben bei einer durchschnittlichen Lebenserwartung von Minuten bis Tagen einen Ausbreitungsradius von weniger als einigen 100 km.

Neben der Kenntnis der chemischen Zusammensetzung, die auch die effektive Brechzahl des Aerosols bestimmt, ist eine quantitative Beschreibung des Größenspektrums zur Ableitung der Wechselwirkung zwischen Licht und Aerosol notwendig. Es gibt mehrere Ansätze, die Aerosol-Größenverteilung durch analytische Funktionen darzustellen. Christian Junge schlug eine einfache Potenzfunktion vor [Junge, 1963]:

$$n_N(\log D_p) = \frac{dn_N(D_p)}{d(\log D_p)} = \frac{C}{(D_p)^j} \quad \text{Gl. 1-6}$$

Die Partikelgrößenverteilung  $n_N$  in Abhängigkeit vom Logarithmus des Durchmessers  $D_p$  wird so durch die Konstanten  $C$  und  $j$  beschrieben. Der Index  $N$  zeigt an, dass es sich um eine Anzahlverteilung und nicht um die im Folgenden ebenfalls betrachteten Volumen-, Oberflächen- und Massenverteilungen handelt. Mit dem Junge-Spektrum können Verteilungen in beschränkten Größenbereichen, besonders für größere Teilchen, recht gut angenähert werden. Da die Funktion jedoch eine monotone Abnahme der Partikelanzahl mit zunehmendem Durchmesser voraussetzt, wird das Maximum nicht wiedergegeben. In einer doppelt logarithmischen Darstellung passt die der Junge-Verteilung entsprechende Gerade mit dem Anstieg  $j$  aber recht gut an die Flanke der gemessenen Verteilungen auf der Seite großer Partikeldurchmesser.

Außerdem wird gelegentlich ein Ansatz mit einer etwas modifizierten Gammafunktion benutzt [Seinfeld und Pandis, 1997]. Die vier wählbaren Parameter bieten ausreichend Flexibilität, die Funktion an Messwerte anzupassen. Das Ergebnis ist aber schwer zu deuten. Die im Bereich der Luftreinhalte häufig verwendete kumulative Einteilung fasst alle Partikel zu einer Klasse zusammen, die kleiner oder gleich einer bestimmten Größe sind (z. B. PM 10  $\Rightarrow D_p \leq 10 \mu\text{m}$ , PM 2,5  $\Rightarrow D_p \leq 2.5 \mu\text{m}$ ). Diese Vorgehensweise entspricht den bisher eingesetzten einfachen Filter-Messverfahren bei der Routineüberwachung der Luftverschmutzung.

Die Größenverteilung vieler beobachteter Aerosoltypen lässt sich durch die Summe mehrerer Lognormal-Verteilungen sehr gut beschreiben:

$$n(\log D_p) = \frac{dN}{d \log D_p} = \sum_{i=1}^m \left\{ \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log(\sigma_g)_i} e^{-\frac{[\log(D_p/D_p^{\text{med}})_i]^2}{2(\log(\sigma_g)_i)^2}} \right\}. \quad \text{Gl. 1-7}$$

Es wird sowohl der dekadische als auch der natürliche Logarithmus verwendet. Diese Art der analytischen Behandlung besticht durch die mathematische Eleganz der Funktion und die damit verbundene einfache Interpretierbarkeit der Ergebnisse. Der Medianwert  $D_p^{\text{med}}$  und der Breitenparameter  $\sigma_g$  sind mit den gewohnten Parametern Mittelwert  $\bar{D}$  und Standardabweichung  $\sigma$  der Gauß-Verteilung folgendermaßen verknüpft:

$$\bar{D}_p = D_p^{\text{med}} e^{\frac{1}{2}(\ln \sigma_g)^2}, \quad \sigma = \sqrt{(D_p^{\text{med}})^2 e^{2(\ln \sigma_g)^2} - \bar{D}_p^2}. \quad \text{Gl. 1-8}$$

Typen	Mode I			Mode II			Mode III		
	N / cm <sup>-3</sup>	D <sub>p</sub> / μm	log σ	N / cm <sup>-3</sup>	D <sub>p</sub> / μm	log σ	N / cm <sup>-3</sup>	D <sub>p</sub> / μm	log σ
Urban	9,93·10 <sup>4</sup>	0,013	0,245	1,11·10 <sup>3</sup>	0,014	0,666	3,64·10 <sup>4</sup>	0,05	0,337
Maritim	133	0,008	0,657	66,6	0,266	0,210	3,1	0,58	0,396
Rural	6650	0,015	0,225	147	0,054	0,557	1990	0,084	0,266
Reinluft, kontinental	3200	0,02	0,161	2900	0,116	0,217	0,3	1,8	0,380
Freie Troposphäre	129	0,007	0,645	59,7	0,25	0,253	63,5	0,52	0,425
Polar	21,7	0,138	0,245	0,186	0,075	0,3	3·10 <sup>-4</sup>	8,6	0,291
Wüste	726	0,002	0,247	114	0,038	0,77	0,178	21,6	0,438

**Tab. 1-3** Parameter für typische dreimodale Größenverteilungen verschiedener Aerosoltypen der planetaren Grenzschicht und der freien Troposphäre [Jänicke, 1993], Darstellung siehe Abbildung 1-3.

Genau die Hälfte der Partikel einer solchen Verteilung ist kleiner und die andere Hälfte größer als der Medianradius. Der Breitenparameter entspricht der geometrischen Standardabweichung, d. h. 67 % der Partikel haben eine Größe im Bereich  $\bar{D}_p/\sigma_g < D_p < \bar{D}_p \cdot \sigma_g$  und 95 % im Bereich  $\bar{D}_p/2\sigma_g < D_p < 2\bar{D}_p \cdot \sigma_g$ .

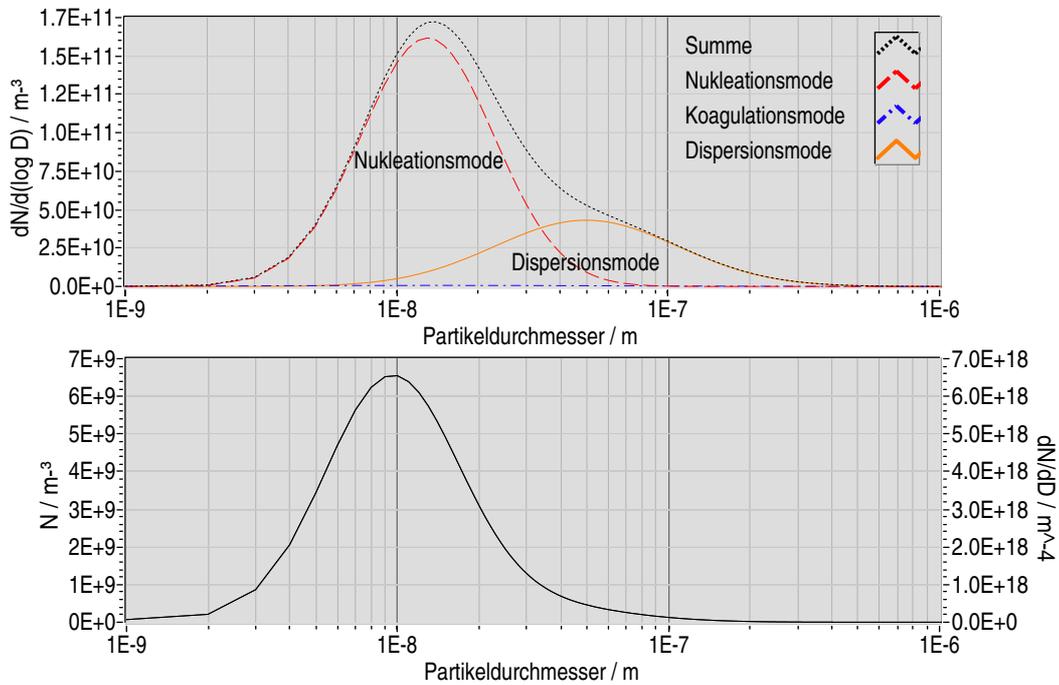
Die einer lognormalen Größenverteilung entsprechende Oberflächenverteilung  $n_S(D_p) = \pi D_p^2 n_N(D_p)$  und Volumenverteilung  $n_V(D_p) = (\pi/6) D_p^3 n_N(D_p)$  sind ebenfalls Lognormal-Verteilungen und haben den gleichen Breitenparameter. Für Teilchen gleicher Dichte  $\rho_p$  lässt sich nun auch die Massenverteilung  $n_M(D_p) = \rho_p/10^6 \cdot n_V(D_p) = \rho_p/10^6 \cdot \pi/6 \cdot D_p^3 n_N(D_p)$  angeben.

Mit der Beziehung:  $n_N(D_p) = \frac{dN}{d \log(D_p)} = D_p \cdot \ln 10 \cdot \frac{dN}{dD_p}$ , kann die lognormale Größenverteilung als Funktion des Partikeldurchmessers ausgedrückt werden. Durch Integration über die Breite der Größenklasse erhält man schließlich die Anzahlkonzentration:  $N(D_p) = \frac{1}{\ln 10} \cdot \int \frac{n_N(D_p)}{D_p} dD_p$ .

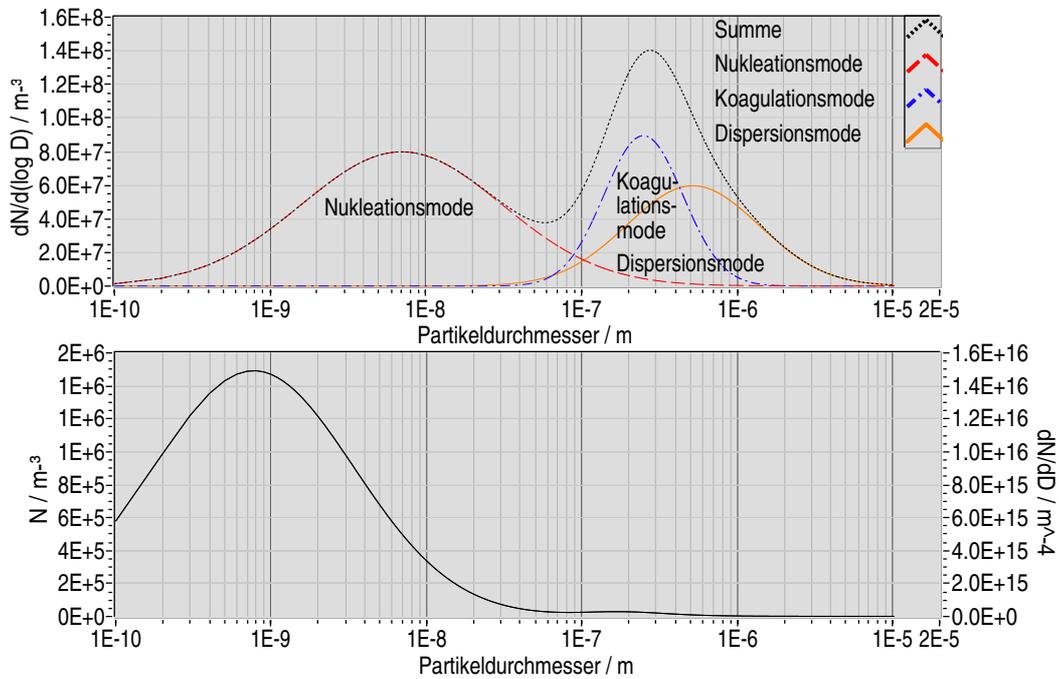
Für weitere Berechnungen werden die in Tabelle 1-3 angegebenen Größenverteilungen troposphärischer Aerosole nach Jänicke [Jänicke, 1993] verwendet. Die Beschränkung auf genau drei Moden für lognormale Größenverteilungen atmosphärischen Aerosols ist durch die beschriebenen physikalischen Bildungs-, Alterungs- und Ausscheidungsprozesse begründet.

Enthält das atmosphärische Aerosol lösliche bzw. hygroskopische Bestandteile, so verändert sich die Größenverteilung in Abhängigkeit von der Luftfeuchtigkeit. Die Situation wird

Urbanes Aerosol

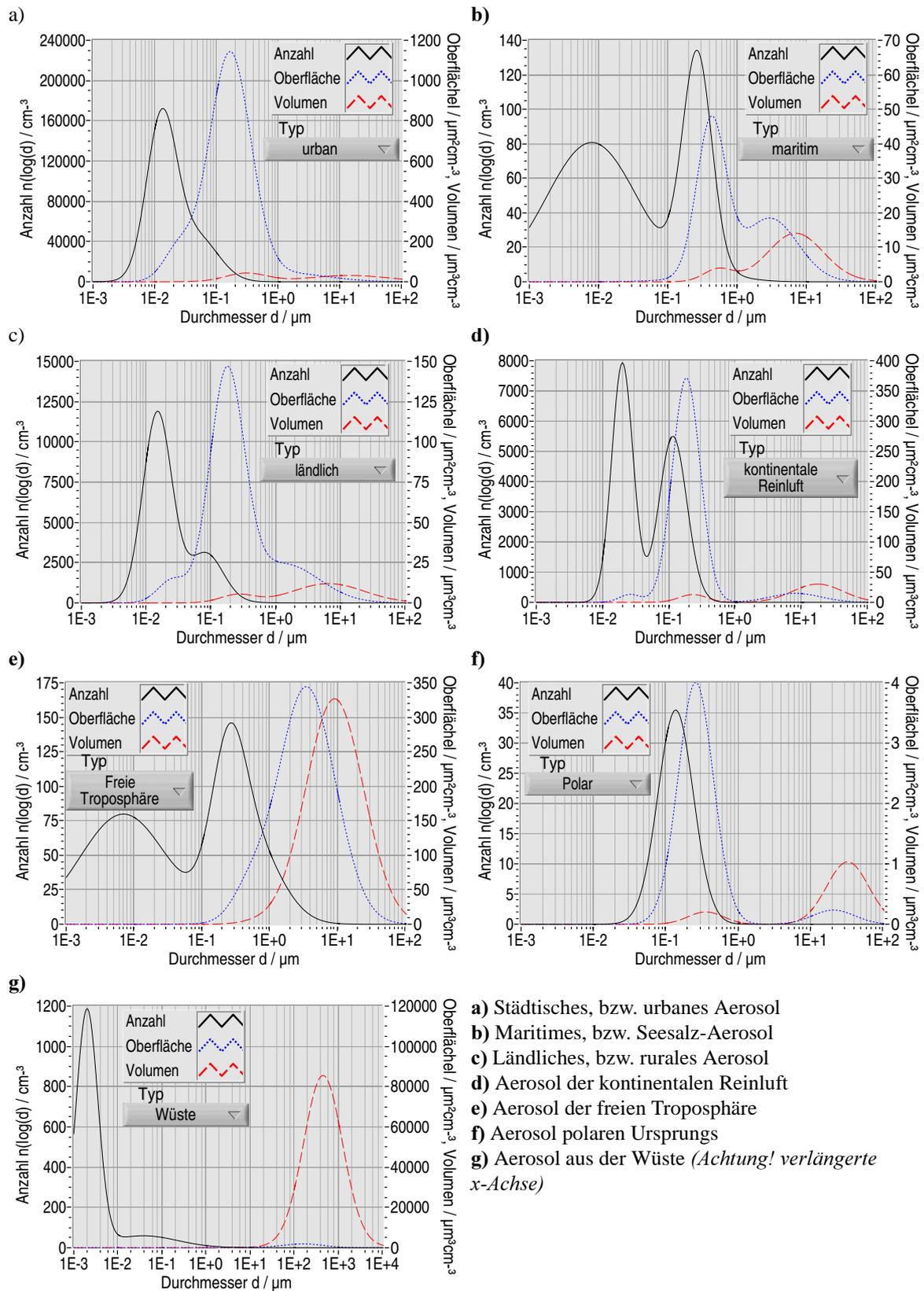


Aerosol der freien Troposphäre



**Abb. 1-2** Die wichtigsten Aerosol-typen im Zusammenhang dieser Arbeit sind der urbane und der der freien Troposphäre. Hier sind die einzelnen Moden der lognormalen Verteilung [Jänicke, 1993], deren Summe und die daraus resultierende Partikelanzahl in dem relevanten Größenintervall dargestellt.

durch die Überlagerung von zwei Vorgängen bestimmt: die Lösung von Aerosol-Bestandteilen in Wasser und die Veränderung des Dampfdrucks in Abhängigkeit von der Krümmung der Partikeloberfläche, also dem Durchmesser. Mit der Magnus-Formel (Gleichung 1-2) lässt sich der Sättigungsdampfdruck über einer planen Wasseroberfläche



**Abb. 1-3** Typische dreimodale Aerosol-Größenverteilungen der Troposphäre. Sie wurden nach den in Tabelle 1-3 angegebenen Parametern [Jänicke, 1993] berechnet. Die durchgezogene schwarze Kurve ist die Anzahlverteilung  $n_N(\log D_p)$  (linke Skala), die gepunktete blaue und die gestrichelte rote Kurve sind die entsprechenden Oberflächen-  $n_S(\log D_p)$  und Volumenverteilungen  $n_V(\log D_p)$  (rechte Skala).

berechnen, und die Kelvin-Gleichung (Gleichung 1-5) ergibt das Dampfdruckverhältnis in Abhängigkeit vom Partikelradius. Die Köhler-Gleichung beschreibt den Dampfdruck über einem Tropfen einer Lösung. Für eine wässrige Lösung gilt [Seinfeld und Pandis, 1997]:

$$\ln\left(\frac{p_{\text{H}_2\text{O}}(D_p)}{p^s}\right) = \ln\left(\frac{\text{RH}}{100}\right) = \frac{A}{D_p} - \frac{B}{D_p^3 - d_u^3}. \quad \text{Gl. 1-9}$$

Die Konstanten A und B,

$$A = \frac{4\sigma_w M_w}{RT\rho_w}, \quad B = \frac{6N_{\text{Mol}} M_w}{\pi\rho_w}, \quad \text{Gl. 1-10}$$

enthalten die molare Masse  $M_w$ , die Dichte  $\rho_w$  und die Oberflächenspannung  $\sigma_w$  von Wasser, die Gaskonstante  $R$ , die Temperatur  $T$  der umgebenden Luft und die Anzahl der Ionen  $N_{\text{Mol}}$ , in welche das Molekül in der Lösung dissoziiert. Der Kelvin-Effekt erhöht den Dampfdruck, und der Lösungs-Effekt verringert ihn. Beide Effekte werden stärker, je kleiner der Tropfendurchmesser ist. Enthält das Partikel auch einen nichtlöslichen Anteil in Form einer Kugel mit dem Durchmesser  $D_u$ , so verstärkt das den Lösungseffekt.

Durch den Wasseranteil  $\xi$  im feuchten Aerosol verändern sich die effektive Brechzahl und die Größenverteilung, da größere Partikel auch schneller wachsen als kleinere. Das Integral des mit der Größenverteilung des feuchten Aerosols gewichteten Wasseranteils über den gesamten Radiusbereich ergibt den mittleren Wasseranteil:

$$\xi = \int_0^{\infty} \frac{dn_N}{d\log r} \xi(r) dr. \quad \text{Gl. 1-11}$$

Ist  $\xi = 0$ , so bestehen die Partikel aus reinem Aerosol, sind also nicht gequollen. Ist  $\xi = 1$ , so bestehen die Partikel aus reinem Wasser.

## 1.2 Die Schichtung der Erdatmosphäre

Auf Fotos der Erde aus dem Weltall ist die Atmosphäre als hauchdünner blauer Schleier zu erkennen. Aus unserer Perspektive hingegen liegt sie mächtig über uns. Unser Erfahrungsbereich beschränkt sich auf die untersten Meter, Bergsteiger und Flieger dringen auch in ein paar tausend Meter Höhe vor. Die Dichte über den höchsten Bergen ist bereits so gering, dass der Sauerstoff nicht mehr zum Überleben ausreicht. Druck und Dichte nehmen bis zum Weltraum kontinuierlich ab. Betrachtet man den Verlauf der Temperatur, so lassen sich Schichten unterscheiden, in denen sie fällt oder steigt. Daraus ergibt sich die gebräuchlich-

ste Höhereinteilung. Die planetare Grenzschicht hingegen ist nicht durch einen speziellen Temperaturgradienten, sondern durch die Turbulenz gekennzeichnet.

### 1.2.1 Luftdruck

Der Druck  $p(z)$  fällt mit der Höhe  $z$  entsprechend der abnehmenden Erdanziehung:

$$\frac{d}{dz}p(z) = -\rho(z)g = -\frac{M_{\text{Luft}}p(z)}{RT(z)}g. \quad \text{Gl. 1-12}$$

Dabei ist  $M_{\text{Luft}}$  die molare Masse der Luft (durchschnittlich 28,97 g/mol),  $R$  die molare Gaskonstante (8,314 J/mol/K) und  $g$  die Erdbeschleunigung (9,81 m/s<sup>2</sup>). Die Größen auf der rechten Seite werden zur Skalenhöhe  $H(z)$  zusammengefasst.

$$\frac{d}{dz}\ln p(z) = -\frac{1}{H(z)}, \quad H(z) = \frac{R \cdot T(z)}{M_{\text{Luft}} \cdot g} = \frac{k \cdot T(z)}{m \cdot g} \quad \text{Gl. 1-13}$$

Das Einsetzen der Standardwerte ergibt eine Skalenhöhe von ca. 8 km. Die Integration von Gleichung 1-13 unter Einbeziehung der Höhenabhängigkeit der Temperatur ergibt das Integral  $\int_0^z (1/T)dz = \overline{(1/T)}$ , das sogenannte harmonische Mittel von  $T$ . Da sich die Temperatur insgesamt nur um weniger als einen Faktor 2 ändert, der Druck im gleichen Höhenbereich aber um mehr als 6 Größenordnungen abnimmt, kann man sie in erster Näherung als konstant ansehen. Der sich ergebende Unterschied zwischen der Verwendung des harmonischen und des arithmetischen Mittels ist vernachlässigbar [Roedel, 1994]. Die barometrische Höhenformel lautet somit:

$$p(z) = p_0 e^{-\frac{z}{H}}. \quad \text{Gl. 1-14}$$

Ausgehend vom Bodendruck  $p_0$  folgt eine exponentielle Abnahme des Drucks mit der Höhe. In Abbildung 1-4 ist der Druckverlauf der US-Standard-Atmosphäre [Seinfeld und Pandis, 1997] in schwarz mit logarithmischer Skala eingezeichnet.

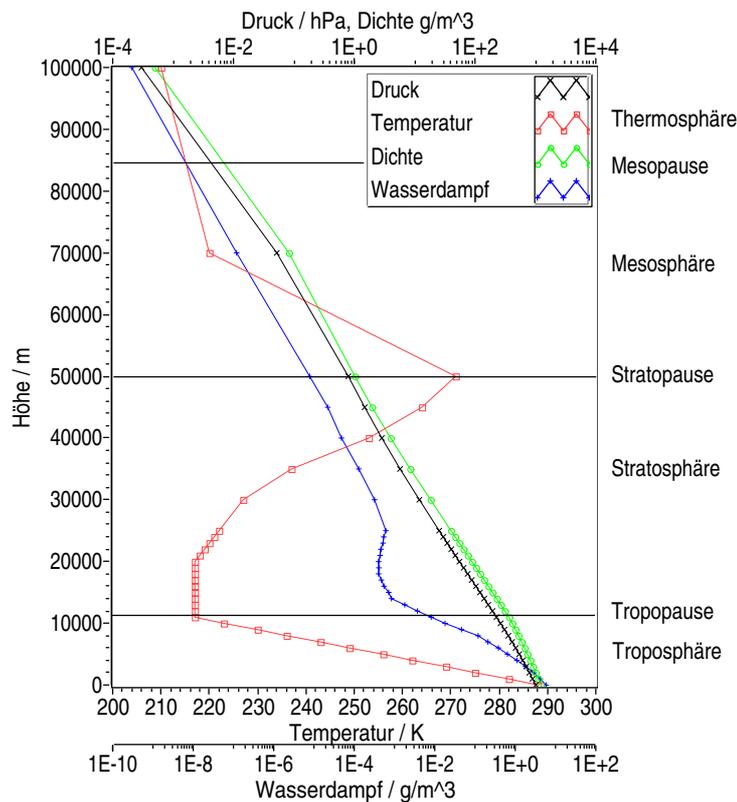
Die Skalenhöhe  $H$  ist auf den ersten Blick nur die Höhe, bei der der Druck auf den e-ten Teil abgefallen ist. Eine weitere Bedeutung erschließt sich, wenn man mit Hilfe der barometrischen Höhenformel die Gesamtmasse  $M_0 = \int_0^\infty \rho(z)dz = \rho_0 \int_0^\infty e^{-z/H} dz = \rho_0 H$  der Atmosphäre berechnet. Eine homogene Atmosphäre mit der Dichte  $\rho_0$  hätte also gerade eine Mächtigkeit entsprechend der Skalenhöhe  $H$ .

Eine formal äquivalente Beziehung lässt sich herleiten, wenn man statt der Gesamtmasse aller Moleküle für jedes einzelne im Schwerfeld der Erde eine potentielle Energie

$E = m \cdot g \cdot z$  mit einer Boltzmann-Verteilung im Energieintervall  $E$  bis  $E + dE$  annimmt. Auf diese Weise erhält man für die Molekülanzahl pro Volumen  $N(z)$  folgende Beziehung:

$$N(z) = n_0 e^{-\frac{z}{H}} \quad \text{Gl. 1-15}$$

Die Äquivalenz wird ersichtlich, sobald man  $N$  durch  $p$  nach der Beziehung  $N(z)/N_0 = p(z)/p_0$  ersetzt. Die in der Schicht bis zur Skalenhöhe enthaltene Masse ist nun aufgeteilt auf die einzelnen Moleküle mit unterschiedlichen Massen. Da es somit für jedes Molekül eine andere Skalenhöhe gibt, sollte es zu einer Entmischung der verschiedenen Gase der Atmosphäre kommen. Dieser Effekt kann aber in der unteren Atmosphäre bis in eine Höhe von etwa 80 km nicht beobachtet werden. Dies beweist zwingend, dass für die Mischungs- und Transportvorgänge in der Atmosphäre turbulente Prozesse verantwortlich sind und dass diesen gegenüber molekular-kinetische Prozesse ganz in den Hintergrund treten [Roedel, 1994].



**Abb. 1-4** Druck, Temperatur, Dichte und Wasserdampfkonzentration der US-Standard-Atmosphäre 1976 [Seinfeld und Pandis, 1997].  
 Als Referenz hat sich die in den USA definierte Standard-Atmosphäre für mittlere Breiten durchgesetzt. Luftdruck auf Meeresniveau 1013.25 hPa, Lufttemperatur auf Meeresniveau 15 °C, Tropopausenhöhe 11 km, Temperatur an der Tropopause -56.5 °C, Temperaturabnahme mit der Höhe 0.65 K/100 m.

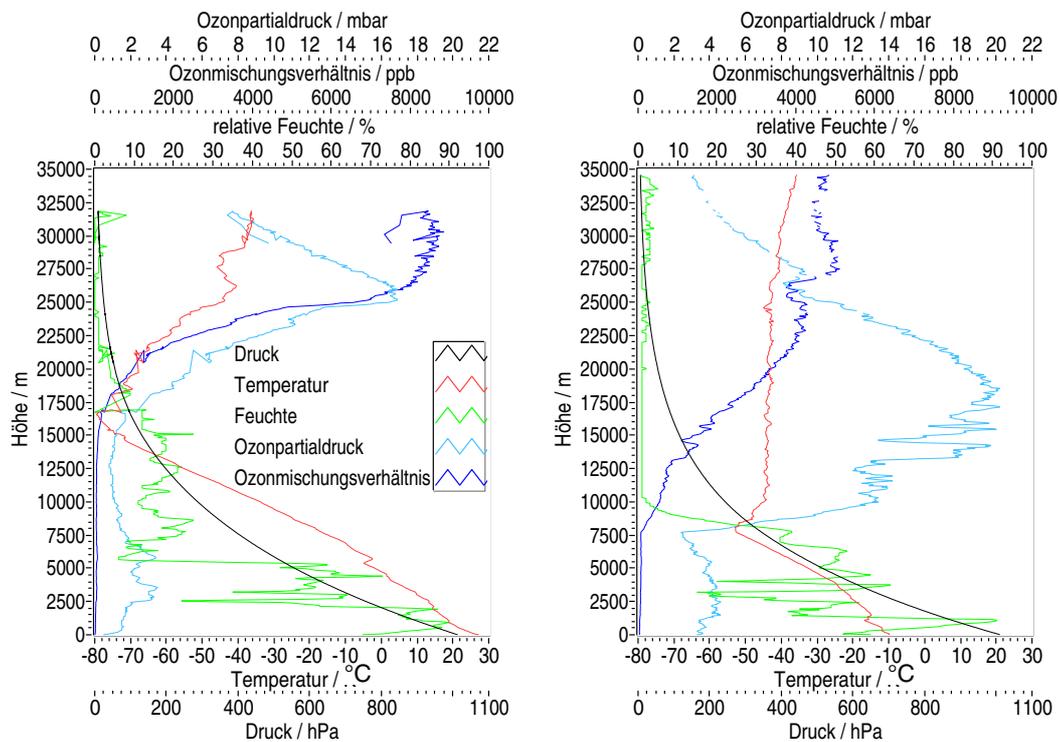
### 1.2.2 Lufttemperatur

Mit zunehmender Entfernung vom Erdboden nimmt die Temperatur zunächst annähernd adiabatisch ab. Diese unterste Schicht bezeichnet man als *Troposphäre*. Die Höhe der Tropopause, ihrer Obergrenze, ist abhängig von Wettersystemen, Breitengrad und Jahreszeit. Die in Abbildung 1-5 dargestellten Ballonsondierungen des Alfred-Wegener-Instituts für Polar- und Meeresforschung wurden zum einen in den Tropen und zum anderen im hohen Norden aufgenommen. Hier sind Beispiele für extrem unterschiedliche Profile der wichtigsten atmosphärischen Parameter dargestellt. In den Tropen liegt die Tropopause in einer Höhe von bis zu 18 km, an den Polen dagegen bereits bei ca. 8 km. Die Temperaturen an der Tropopause liegen zwischen  $-50\text{ °C}$  und  $-80\text{ °C}$ . Etwa 2 km oberhalb endet mit der Hygropause auch der wasserdampfhaltige Bereich der Atmosphäre (relative Feuchtigkeit in grün in Abbildung 1-5).

Darüber befindet sich die *Stratosphäre*. Der Transmission des ultravioleten Anteils des Sonnenlichts wird dort ein jähes Ende gesetzt. Strahlung mit Wellenlängen kleiner als 240 nm führt zur Photodissoziation von molekularem Sauerstoff. Der entstandene freie Sauerstoff reagiert dann mit molekularem Sauerstoff zu Ozon. Das Absorptionsspektrum von Ozon schließt an das des molekularen Sauerstoffs bei 240 nm an und weist eine breite, starke Bandenstruktur bis 340 nm auf. So entsteht eine absorbierende Schicht, die ein idealer Schutzschild gegenüber dem ultravioletten Anteil des Sonnenspektrums ist. Durch die Absorption wird die Stratosphäre erwärmt. Gleichzeitig wird die Stratosphäre von unten wegen des Wasserdampfgradienten am oberen Ende der Wasserdampfsphäre gekühlt .

Über der Stratosphäre, die durch die Stratopause begrenzt wird, liegt die *Mesosphäre*. Darüber beginnt die obere Atmosphäre. An der Mesopause herrschen die tiefsten Temperaturen der Erdatmosphäre. In der darüberliegenden *Thermosphäre* steigen die Temperaturen wegen der Absorption des ultravioletten Sonnenlichts durch Sauerstoff- und Stickstoffmoleküle wieder an. Die *Ionosphäre* erstreckt sich von der oberen Mesosphäre bis in die untere Thermosphäre. Dort reicht die Energie der Sonnenstrahlung aus, um Moleküle zu ionisieren. Der äußerste Bereich der Atmosphäre beginnt bei einer Höhe von ca. 500 km und wird als *Exosphäre* bezeichnet. Molekülen mit ausreichender kinetischer Energie gelingt es von hier aus, unsere Atmosphäre in Richtung Weltall zu verlassen.

Obwohl die Troposphäre die geringste Ausdehnung hat, befinden sich hier 80 % der Gesamtmasse der Luft. Wegen der direkten Wechselwirkung der Atmosphäre mit der Erd-



**Abb. 1-5** Druck, Temperatur, relative Feuchte, Ozon-Partialdruck und -Mischungsverhältnis, gemessen mit Ballonsonden des Alfred-Wegener-Instituts während gemeinsamer Expeditionen.  
links: Tropen-Forschungsschiff „Polarstern“ N 1° 86,48'' W 25° 44,414'', 24. Oktober 1996,  
rechts: Arktis, Ny Ålesund Spitzbergen N 78° 55'' W 11° 57'', 7. Mai 1996.

oberfläche bildet sich am Boden eine Schicht mit besonderen Eigenschaften, die planetare Grenzschicht. Somit unterteilt man die Troposphäre noch einmal in die *planetare Grenzschicht* und die *freie Troposphäre*.

Viele Eigenschaften der Atmosphäre, wie Druck, Temperatur, Windgeschwindigkeit und Konzentrationen, sind weder vertikal noch horizontal homogen. Deshalb nimmt man für die Modellierung sogenannte Lagrange-Luftpakete an, innerhalb derer hinreichende Homogenität gewährleistet ist. Für die Ausbildung des lokalen Temperaturprofils in der Troposphäre ist die Konvektion, das heisst das Aufsteigen solcher Pakete, verantwortlich. Am Boden entstehen durch lokale Temperaturunterschiede Luftblasen unterschiedlicher Dichte. Eine Blase mit erhöhter Temperatur bekommt positiven Auftrieb und steigt nach oben. Das geschieht für gewöhnlich so langsam, dass die Energieumwandlung adiabatisch erfolgt. Als Vergleichsgröße für den Energieinhalt verschiedener Luftpakete verwendet man die potentielle Temperatur  $\theta$  mit der Einheit Kelvin. Sie ist definiert als die Temperatur, die ein Luftpaket annehmen würde, wenn man es trocken-adiabatisch auf den Normaldruck der Atmosphäre, d. h.  $p_0 = 1013,25 \text{ hPa}$ , zwingen würde. Hierbei bedeutet trocken, dass der tat-

sächlich immer gegenwärtige Wasserdampf vernachlässigt wird; adiabatisch, dass die Summe aus potentieller und thermischer Energie konstant bleibt. Unter solchen Umständen gilt die Poisson-Gleichung für adiabatische Zustandsänderungen:

$$\frac{T^\chi}{p^{\chi-1}} = \text{const.} \quad \text{Gl. 1-16}$$

Das Verhältnis der Wärmekapazität trockener Luft bei konstantem Druck ( $c_p$ ) und bei konstantem Volumen ( $c_v$ ) wird mit  $\chi = c_p/c_v$  abgekürzt. Als Konstante kann man nun den Normaldruck  $p_0$  und die potentielle Temperatur  $\theta$  einsetzen und erhält durch Umstellung nach  $\theta$  deren Definitionsgleichung:

$$\theta = T \left( \frac{p}{p_0} \right)^{\frac{\chi-1}{\chi}}. \quad \text{Gl. 1-17}$$

Die potentielle Temperatur ist, wie die Entropie, eine eindeutige Funktion von Druck und Temperatur und wird verwendet, um Flächen gleicher Entropie durch die Isentropen zu identifizieren. Daher wird sie in der Meteorologie häufig als Höhenmaß benutzt. Der Zusammenhang und die Äquivalenz von Entropie und potentieller Temperatur kann einfach abgeleitet werden [Roedel, 1994].

Beim adiabatischen Aufsteigen eines Luftpaketes wird thermische in potentielle Energie umgewandelt. Durch diesen Wärmetransport passt sich das mittlere Temperaturprofil dem trocken-adiabatischen Gradienten  $\Gamma$ ,

$$\Gamma = \frac{dT}{dz}_{\text{adiabatisch}} = -\frac{g}{c_p} \sim \frac{1\text{K}}{100\text{m}}, \quad \text{Gl. 1-18}$$

an, den man durch Einsetzen der idealen Gasgleichung in die adiabatische Energiegleichung ( $dQ = 0$ ) herleiten kann.

Bei adiabatischen Zustandsänderungen wasserdampfhaltiger Luft ändert sich nichts Wesentliches an den bisher angestellten Überlegungen, solange kein Phasenübergang stattfindet. Der Unterschied liegt lediglich in der höheren Wärmekapazität feuchter Luft.

### 1.2.3 Stabilität der atmosphärischen Schichtung

Der trocken-adiabatische Temperaturgradient  $\Gamma$  entsteht durch adiabatische Anpassung aufsteigender Luftpakete an ihre Umgebung. Die Stabilität der Schichtung hängt vom Verhält-

nis dieses theoretischen Gradienten  $\Gamma$  zum real existierenden Gradienten  $\gamma$  in der Umgebung des Luftpakets ab.

- $\gamma < \Gamma$ : stabil
- $\gamma > \Gamma$ : labil
- $\gamma = \Gamma$ : neutral

Die Schichtung ist also stabil, wenn  $\partial\theta/\partial z > 0$  ist. Wenn der in der Troposphäre normalerweise negative Temperaturgradient positiv wird, spricht man von einer Inversion, was einer besonders stabilen Schichtung gleichkommt. In diesem Fall wird kältere Luft durch wärmere überlagert, und der vertikale Austausch kommt fast völlig zum Erliegen.

Das alles gilt nur, solange kein Wasserdampf kondensiert. Steigt ein Luftpaket in einer neutralen oder sogar schwach stabil geschichteten Atmosphäre auf, so wird seine Temperatur nach Überschreiten des Kondensations-Niveaus mit zunehmender Höhe wesentlich langsamer abnehmen als es dem Temperaturgradienten seiner Umgebung entspricht. Es bleibt lange wärmer als die Umgebung und behält seine positive Auftriebskraft. Die Schichtung ist bezüglich des feuchten Luftpakets labil - man sagt dann, sie ist feucht-labil. Als quantitatives Maß wird die Äquivalenz-Temperatur verwendet. Das ist die Temperatur, die ein Luftpaket annehmen würde, wenn die gesamte in ihm gespeicherte latente Wärme in fühlbare Wärme umgesetzt werden würde. Die Kondensationsenergie pro Volumeneinheit ist  $\rho_w \cdot Q_k$ , das Produkt aus Wasserdampfdichte und Kondensationswärme pro Masseinheit. Die zusätzliche Erwärmung erhält man durch Division durch die Wärmekapazität der trockenen Luft  $\rho_L \cdot c_p$ . Damit ergibt sich die Äquivalenz-Temperatur  $T_a$  als Differenz zwischen der aktuellen Temperatur  $T$  und dem eben beschriebenen Verhältnis:

$$T_a = T - \frac{\rho_w}{\rho_L} \cdot \frac{Q_k}{c_p}. \quad \text{Gl. 1-19}$$

Der Temperaturüberschuss kann leicht einige zehn Grad betragen. Gerät ein feuchtes Luftpaket also in eine kalte Umgebung, z. B. in großen Höhen oder in einer Kaltfront, kondensiert immer mehr Wasserdampf, und der somit verstärkte Auftrieb ermöglicht es, sogar ausgeprägte Inversionen zu überwinden. Dieses Phänomen kann gut bei der Bildung von Gewitterwolken beobachtet werden.

Um zu einem quantitativen Maß für die atmosphärische Stabilität zu gelangen, geht man zunächst von der Auftriebskraft aus, die ein Luftpaket der Dichte  $\rho$  in einer Umgebung mit der Dichte  $\rho'$  hat.

$$\rho \frac{dv_z}{dt} = g(\rho' - \rho) \quad \text{Gl. 1-20}$$

Da der Druckunterschied zwischen Luftpaket und Umgebungsluft marginal ist, kann die Dichte durch  $1/T$  ersetzt werden. Für die Vertikal-Beschleunigung erhält man somit:

$$\frac{dv_z}{dt} = g \cdot \frac{\gamma - \Gamma}{T} \Delta z = -\frac{g}{\theta} \cdot \frac{d\theta}{dz} \cdot \Delta z = -B^2 \cdot \Delta z \Rightarrow -B^2 = \frac{1}{\Delta z} \cdot \frac{dv_z}{dt} = -\frac{g}{\theta} \cdot \frac{d\theta}{dz} \quad \text{Gl. 1-21}$$

mit dem Stabilitätsmaß  $-B^2$ .

- $-B^2 < 0$ : stabile Schichtung
- $-B^2 = 0$ : neutrale Schichtung
- $-B^2 > 0$ : labile Schichtung ( $B$  ist dann imaginär)

Für stabile Schichtung erhält die Bewegungsgleichung durch Einsetzen von  $-B^2$  die Form der Schwingungsgleichung eines harmonischen Oszillators:

$$\rho \cdot \frac{dv_z}{dt} + \rho \cdot B^2 \Delta z = 0 \Rightarrow v_v = \frac{B}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{g}{\theta} \cdot \frac{d\theta}{dz}} \quad \text{Gl. 1-22}$$

Die „Federkonstante“ ist  $\rho \cdot B^2$  und die Frequenz  $v_v$  wird *Brunt-Väisälä-Frequenz* genannt. Durch die Visualisierung solcher Schwingungen durch Laser-Fernerkundungsverfahren sollte es möglich sein, zu einer Charakterisierung der Stabilität der planetaren Grenzschicht zu gelangen.

Bevor das Thema Turbulenz behandelt wird, soll noch die Richardson-Zahl als Stabilitäts-Kriterium und dynamischer Faktor zur Abschätzung der Turbulenz eingeführt werden:

$$Ri = \frac{g}{\langle T \rangle} \frac{\frac{\partial}{\partial h} \langle T \rangle}{\left( \frac{\partial}{\partial h} \langle v \rangle \right)^2} \quad \text{Gl. 1-23}$$

$\langle T \rangle$  ist die mittlere Temperatur und  $\langle v \rangle$  die Windgeschwindigkeit. Die Richardson-Zahl kann als Verhältnis von Auftriebs- zu Schwerkraft interpretiert werden.

- $Ri > 0$ : stabile Schichtung, Auftriebskräfte wirken der Turbulenz entgegen
- $Ri = 0$ : neutrale Schichtung, die Turbulenz ist unbeeinflusst von Auftriebskräften
- $Ri < 0$ : labile Schichtung, Auftriebskräfte verstärken die Turbulenzentstehung

### 1.3 Dynamik der Grenzschicht und Turbulenz

In Abbildung 1-6 sind die atmosphärischen Bewegungsformen nach ihrer charakteristischen Länge und Zeit bzw. Geschwindigkeit angeordnet. Die Längenskala reicht von der größtmöglichen Ausdehnung von 40.000 km, die dem Erdumfang entspricht, bis zu kleinsten Strukturen von ca. 1 mm. Man unterscheidet grob zwischen Mikro-, Meso-, Makro- und synoptischer Skala. Phänomene im Bereich der synoptischen Skala sind z. B. die Zyklonen und Antizyklonen, die unser Wetter bestimmen. Zu den mesoskaligen Prozessen gehören z. B. Land-See-Wind-Zirkulationen, Leewellen hinter Gebirgen und normale Gewitterwolken. In der planetaren Grenzschicht herrscht *mikroskalige Turbulenz*.

Die horizontale Grundströmung in der Erdatmosphäre, auch geostrophischer Wind genannt, wird durch regionale Druckunterschiede bewirkt. Die Windrichtung verläuft wegen der Erddrehung und der damit verbundenen Coriolis-Kraft aber nicht direkt in Richtung des Druckgradienten. Im Gleichgewicht, wenn also die Luftmasse nicht durch Trägheit beschleunigt oder durch Reibung gebremst ist, bläst der geostrophische Wind tangential zu den Isobaren. In der planetaren Grenzschicht wird dieses Gleichgewicht durch die Reibung am Boden gestört. Das führt zu einem Geschwindigkeitsgradienten, der bei Null am Boden bzw. der Strömungsgeschwindigkeit des Wassers endet. Da die Coriolis-Kraft nun aber von der Geschwindigkeit abhängig ist, ändert sich auch die Windrichtung hin zum Druckgradienten. Dadurch entsteht eine Spirale der Windrichtung, die nach ihrem Entdecker Ekman-Spirale genannt wird. Der Höhenbereich der planetaren Grenzschicht, in dem sich die Windrichtung dem geostrophischen Wind spiralförmig anpasst, wird daher auch Ekman-Schicht genannt. Die Windrichtungsänderung über dem Boden und die Konvektion führen zu Scherströmungen. Dadurch wird die Strömung turbulent und chaotisch.

Doch auch in diesem Chaos gibt es eine Ordnung. Der britische Hydrodynamiker Lewis Fry Richardson entdeckte in den 1920er Jahren, dass sich alle Bewegungsformen in einem doppelt logarithmischen Geschwindigkeits-Zeit-Diagramm (Abbildung 1-6) entlang einer Linie  $v \sim L^{1/3}$  gruppieren.  $L$  wird äußere Skalenlänge oder Monin-Obuchov-Länge genannt und gibt die größte Ausdehnung von Turbulenzzellen an, die unabhängig vom Gesamtfluss der Luft sind. Der Diffusionskoeffizient  $K \sim L \cdot v$  ist dann proportional zu  $L^{4/3}$ . Die Proportionalitätskonstante  $v \cdot L^{1/3} = \text{const}$  ist ein charakteristischer Wert für die Energiedissipation pro Zeit- und Masseinheit. Bewegungsvorgänge, die entlang derselben gestrichelten Geraden in Abbildung 1-6 angeordnet sind, erleiden die gleiche Dissipation von kinetischer Energie

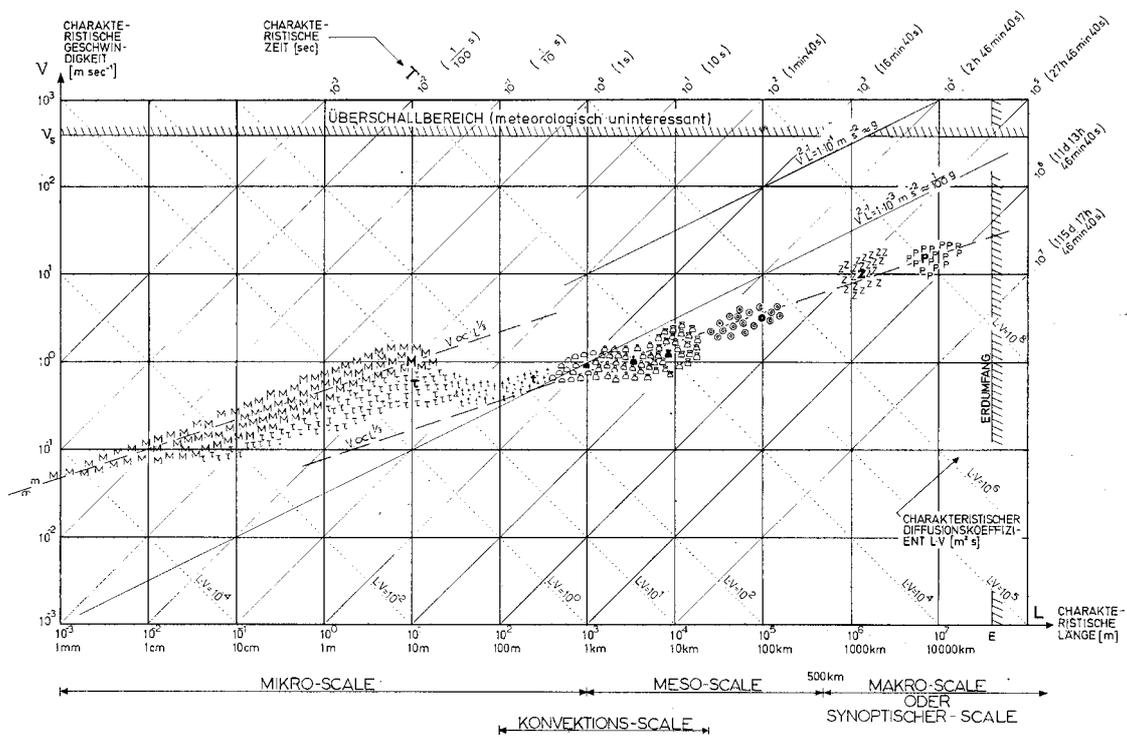


Abb. 1-6 Charakteristische Zeit- und Geschwindigkeitsskalen atmosphärischer Prozesse [Wippermann, 1971]

durch Turbulenz. Für die höher gelegene Linie in Abbildung 1-6 ist dieser Wert  $0,1 \text{ m}^2/\text{s}^3$  und für die tiefere  $0,001 \text{ m}^2/\text{s}^3$ . Kleine Turbulenzstrukturen setzen weit mehr kinetische Energie pro Masseinheit um als konvektive bzw. großräumige Turbulenz. Eine für mikroskalige Prozesse entscheidende Schlussfolgerung formulierte Richardson als Vierzeiler [Richardson, 1920]:

*„Big whorls have little whorls  
that feed on their velocity,  
little whorls have smaller whorls  
and so on to viscosity.“*

Einmal entstandene Turbulenzzellen zerfallen zu immer kleineren Strukturen, bis ihre kinetische Energie verbraucht ist, und sie sich auflösen. Die kleinste mögliche Größe hängt von der Viskosität des Mediums ab und wird als innere Skalengröße  $l_0$  bezeichnet. Dieser dissipative Prozess wird Energiekaskade genannt.

Die charakteristische Länge  $L$ , die Geschwindigkeit  $v$  und die kinematische Viskosität  $\nu$  können zu einer dimensionslosen Zahl, der Reynolds-Zahl, zusammengefasst werden:

Bewegungsform	Symbol	horizontale Ausdehnung	vertikale Ausdehnung	Erstreckungs-Verhältnis	Charakteristische			
					Länge	Dauer	Zeit	Geschwindigkeit
Mechanische Turbulenz	M	<20 m	< 20 m	1:1	10 m	<30 s	10 s	1 m/s
Kleinräumige, thermisch bedingte Turbulenz	$\tau$	<10 m	< 20 m	2:1	10 m	< 30 s	15 s	0,7 m/s
Thermik	t	10-50 m	20-500 m	10:1	250 m	2-10 min	6 min	0,7 m/s
Schwache Kumuluskonvektion		50-500 m	0,5-2 km	5:1	1 km	10-30 min	20 min	0,8 m/s
Mäßige Konvektion		0,5-2 km	2-5 km	2:1	2,5 km	$\frac{1}{3}$ -1 h	40 min	1 m/s
Starke Konvektion		1-20 km	3-12 km	1:1	8 km	$\frac{1}{2}$ -3 h	100 min	1,3 m/s
Wolken Cluster		20-200 km	3-15 km	1:10	100 km	3-18 h	10 h	3 m/s
Zyklonen / Antizyklonen	Z	500-3000 km	3-12 km	1:500	1500 km	1-3 d	2 d	10 m/s
Planetarische Wellen	P	3000- $1 \cdot 10^4$ km	5-12 km	1:1000	6000 km	2-8 d	5 d	15 m/s

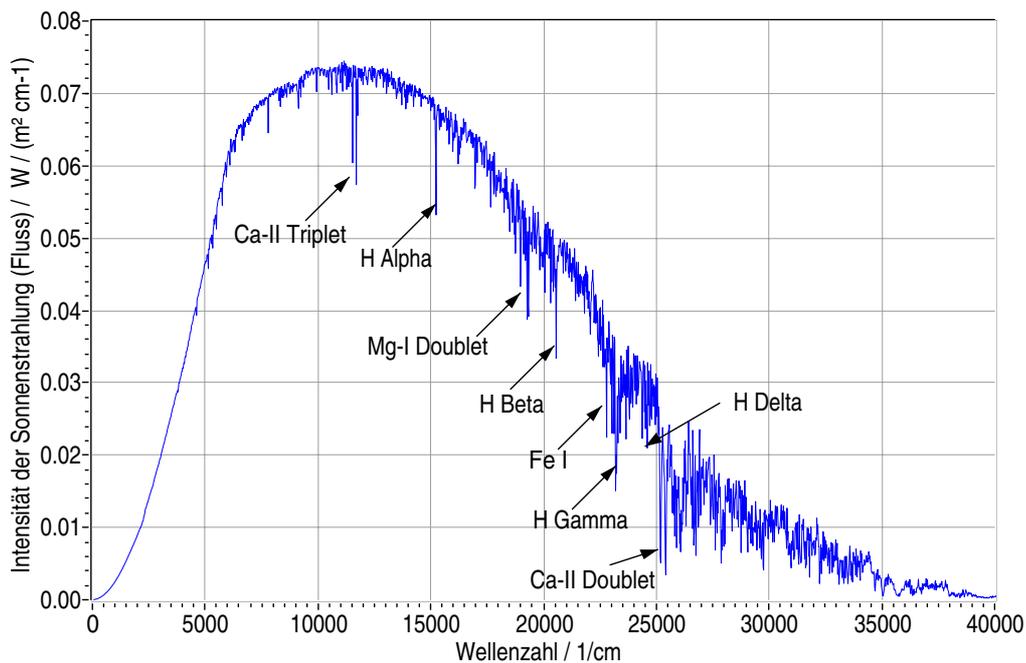
**Tab. 1-4** Erklärung zu Abbildung 1-6 und der dort vorgenommenen Einteilung der atmosphärischen Bewegungsformen entsprechend ihren charakteristischen Geschwindigkeiten- und Längenskalen [Wippermann, 1971].

$$Re = \frac{v \cdot L}{\nu} \quad \text{Gl. 1-24}$$

Wird ein bestimmter kritischer Wert dieser Zahl überschritten, beginnt eine laminare Strömung turbulent zu werden. Reynolds definierte diese Konstante durch Ähnlichkeitsbetrachtungen oder, anders gesagt, auf der Suche nach dimensionslosen Größen. Diese Methode hat sich in den frühen Jahren der Turbulenzforschung sehr bewährt, um systembeschreibende Merkmale aus dem Chaos herauszufiltern. Heute ist die Theorie zur Beschreibung stochastischer Prozesse sehr weit fortgeschritten und gestattet ein tiefes Verständnis der Turbulenz auf der Basis der Navier-Stokes-Gleichung [Grossmann, 1990, Stull, 1989]. Auf die mathematische Behandlung in chemischen Ausbreitungsmodellen wird in § 1.5.1.1 kurz eingegangen.

## 1.4 Strahlungsbilanz

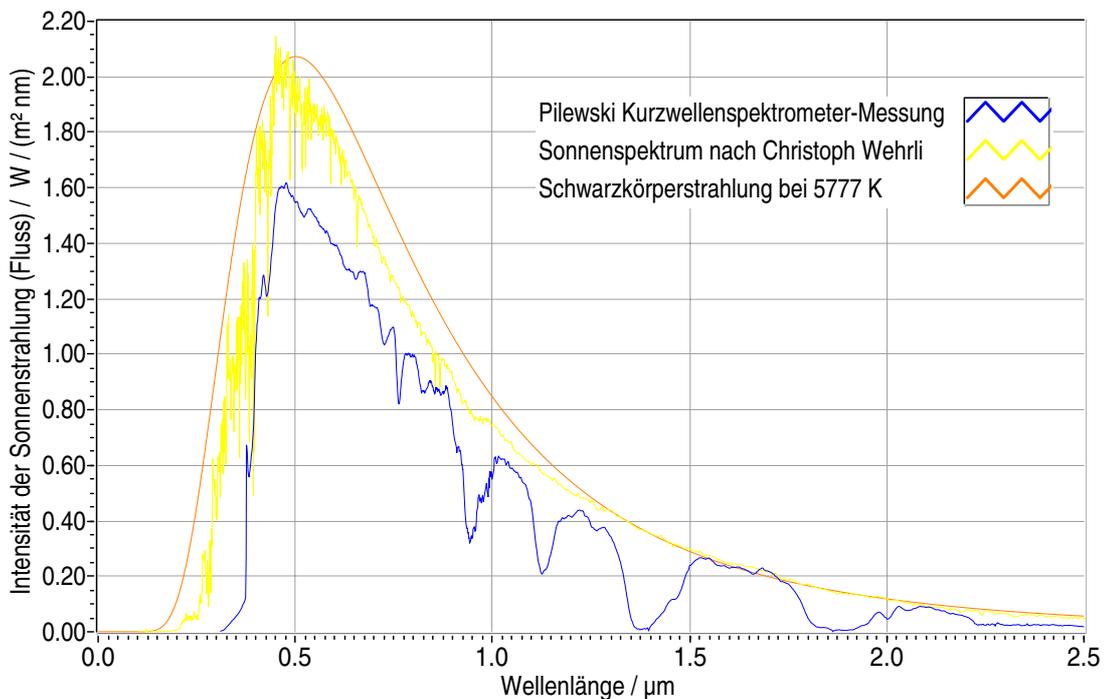
Die Sonnenstrahlung ist die einzige bedeutende Energiequelle der Erde. Durch die ungleichmäßige Intensitätsverteilung der eingestrahnten Energie über den Globus entstehen in der Atmosphäre und in den Ozeanen Ausgleichsströmungen. Die Hauptflussrichtung der Energie geht vom Äquator zu den beiden Polen. Jahreszeitliche Schwankungen des globalen Windsystems entstehen durch die nicht senkrechte Position der Erdachse zur Umlaufbahn um die Sonne.



**Abb. 1-7** Sonnenspektrum im Abstand von einer astronomischen Einheit, berechnet von Gail Anderson (ganderson@plh.af.mil) vom Phillips Lab. Es wurde linienweise von Bob Kurucz von der Harvard-Smithsonian Astrophysical Institution in Cambridge, Mass. berechnet und mit allen bekannten Datenquellen abgeglichen. Die Absorptionslinienbreiten aus der MODTRAN-Datenbank wurden auf 10 Wellenzahlen verbreitert. Die Daten stammen vom NASA-ftp-server: <ftp://climate.gsfc.nasa.gov/pub/wiscombe/>.

Abbildung 1-7 zeigt ein von Gail Anderson berechnetes extraterrestrisches Spektrum. Die Intensität ist auf eine Kugeloberfläche mit einem Radius von einer astronomischen Einheit normiert. Das Maximum der Intensität liegt im sichtbaren Bereich. Der größte Teil der solaren Energie, die auf der Erde ankommt, stammt aus der Photosphäre der Sonne. Durch Absorption in der etwas kälteren äußeren Photosphäre entstehen die sogenannten Fraunhofer-Linien.

In Abbildung 1-8 wird ein extraterrestrisches Spektrum mit einem an der Erdoberfläche in mittleren Breiten gemessenen verglichen. Die dritte Kurve wurde entsprechend der Planck-



**Abb. 1-8** Sonnenspektrum von Christoph Wehrli (chwehrli@pmodwrc.ch) vom World Radiation Center in Davos [Wehrli, 1985] und Transmissionsspektrum der Atmosphäre von Peter Pilewskie vom NASA Ames Research Center gemessen mit einem Strahlungsfluss-Spektrometer. Die Strahlungs-Intensitätskurve eines schwarzen Körpers mit der Temperatur von 5777 K, berechnet nach der Planckschen Strahlungsformel, gibt Anlass zu der Annahme, dass die Sonne in erster Näherung als solcher betrachtet werden kann. Die Daten stammen vom NASA-ftp-server: <ftp://climate.gsfc.nasa.gov/pub/wiscombe/>.

schen Strahlungsformel für einen schwarzen Strahler mit einer Temperatur von 5770 K berechnet und auf die Amplitude der Messkurve skaliert. Da der Strahlungsfluss der Sonne in alle Richtungen des Raumes emittiert wird, trifft nur ein kleiner Teil auf die Erde. Somit ist dieser Wert vom Sonnenabstand der Erde abhängig, und der mit der Planckschen Formel berechnete Strahlungsfluss muss entsprechend dem Raumwinkелеlement der Erde angepasst werden.

Am Erdboden sieht das Spektrum schon ganz anders aus. Besonders im infraroten und ultravioletten Bereich gibt es Regionen, in denen die Atmosphäre nahezu undurchsichtig ist. Die Intensität des Lichts wird bei der Transmission durch die Atmosphäre durch Streuung und Absorption an Atomen, Molekülen und Aerosol geschwächt. Die starken Einbrüche im Spektrum im nahen Infrarot-Bereich entstehen vor allem durch Wasserdampf-Absorption in der Troposphäre. Im ultravioletten Spektralbereich wird das Sonnenlicht vor allem durch molekularen Sauerstoff und Ozon absorbiert. Aerosol besitzt keine so strukturierte Streu-Charakteristik. Ein großer Teil der breitbandigen Differenz zwi-

schen den Spektren ist auf Aerosol-Streuung zurückzuführen. In jeder Höhe und insbesondere am Erdboden und an Wolken wird ein Teil der Strahlung zurück in Richtung Weltall gestreut. Wird Licht absorbiert, erwärmt sich die Umgebung des Absorbers. Obwohl der größte Teil der Strahlung an der Erdoberfläche absorbiert wird, ist ihre Reflektivität doch zu hoch, um die mittlere Oberflächentemperatur der Erde von 15 °C zu erklären. Ein Teil des reflektierten Lichts muss also diesen Beitrag leisten, indem es auf dem Rückweg in Richtung Weltall doch noch absorbiert oder wieder zurückgestreut wird. So entsteht der natürliche Treibhauseffekt, dem wir die Anhebung der Durchschnittstemperatur der Erdoberfläche von ca. -30 °C auf angenehme 15 °C zu verdanken haben.

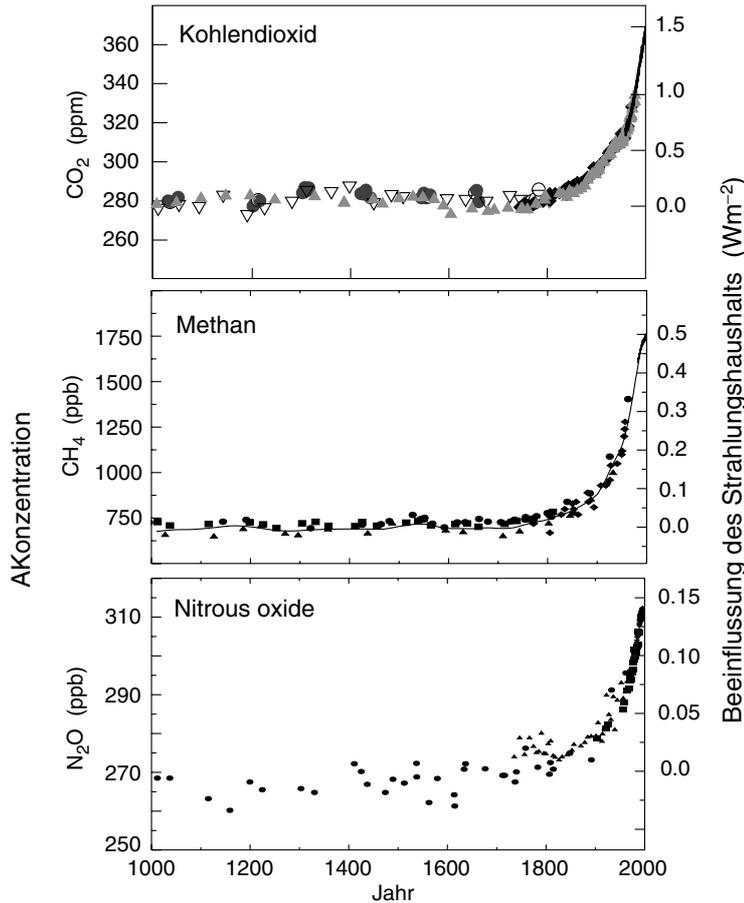
#### 1.4.1 Klimarelevanz von Spurengasen und Aerosol

Die für den natürlichen Treibhauseffekt wichtigsten Spurengase sind Wasserdampf, Kohlendioxid, Ozon, N<sub>2</sub>O (Distickstoffoxid bzw. Lachgas) und Methan. Der anthropogene Anteil des Treibhauseffekts wird vor allem durch die Gase Kohlendioxid, Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKW) sowie Halone, Methan, N<sub>2</sub>O und Ozon verursacht. In geringerem Ausmaß sind auch perfluorierte Fluorkohlenwasserstoffe (FKW, darunter insbesondere CF<sub>4</sub> und C<sub>2</sub>F<sub>6</sub>), Schwefelhexafluorid (SF<sub>6</sub>), teilhalogenierte FCKW (H-FCKW), wasserstoffhaltige Fluorkohlenwasserstoffe (HFKW) sowie Wasserdampf aus dem Flugverkehr beteiligt. Sulfat-Aerosole wirken durch Streuung und Absorption der einfallenden Sonnenstrahlung und Wolkenbildung dem zusätzlichen Treibhauseffekt ebenso entgegen wie Staub aus Vulkanen. Die Auswirkungen von Aerosol mit hohem Ruß-Anteil, das vor allem in urbanen Gegenden und über brennenden Wäldern (biomass burning) entsteht, sind noch umstritten. Bei der Beurteilung der Klimawirksamkeit der einzelnen Treibhausgase und des Aerosols ist, neben der Wechselwirkung mit der Strahlung, die Verweildauer in der Atmosphäre zu beachten.

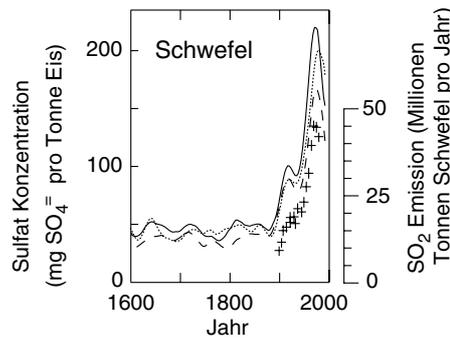
Anthropogene Treibhausgase entstehen bei der Verbrennung von fossilen Energieträgern (Kohle, Öl, Gas) und Holz, außerdem in der chemischen Industrie, der Landwirtschaft und der Abfallwirtschaft. Diese menschlichen Aktivitäten haben die Atmosphäre gegenüber ihrer natürlichen Zusammensetzung verändert. Die Messkurven in Abbildung 1-9 zeigen die Entwicklung der Konzentrationen einiger anthropogener Treibhausgase und von Sulfat im grönländischen Eis im vergangenen Jahrtausend und in den letzten 400 Jahren als Indikatoren für eine anthropogene Beeinflussung des Klimasystems [IPCC, 2001].

**Indikatoren für die antropogene Beeinflussung der Zusammensetzung der Atmosphäre im Industrie-Zeitalter**

**(a) Globale atmosphärische Konzentrationen von drei gut verteilten Treibhausgasen**

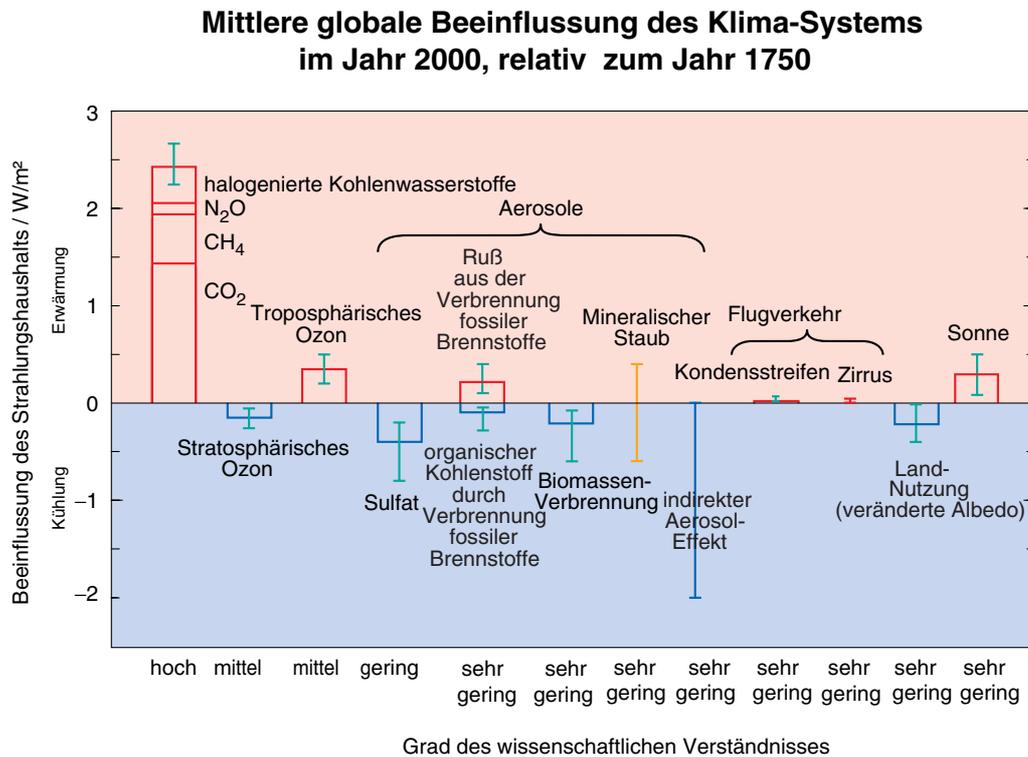


**(b) Sulfat-Aerosol im Eis von Grönland**



a) Änderung der Konzentrationen von Kohlendioxid, Methan und Stickoxid im vergangenen Jahrtausend. Die Daten stammen aus Eisbohrkern- und Firn-Messungen an verschiedenen Stellen der Antarktis und Grönlands (verschiedene Symbole stehen für die Messorte). Die voraussichtliche Verstärkung des Treibhauseffekts ist auf der rechten Skala dargestellt. Da alle diese Gase eine Lebensdauer von mehr als einer Dekade haben, sind sie gut verteilt in der globalen Atmosphäre und spiegeln damit die Emission aus Quellen auf der gesamten Erde wider. Alle drei Zeitreihen zeigen einen Anstieg während des industriellen Zeitalters. b) Dargestellt ist der Einfluss industrieller Schwefel-Emission auf die Sulfatkonzentration in der Atmosphäre, sulfathaltiges Aerosol soll eine abschwächende Wirkung auf den Treibhauseffekt haben. Daten aus Episoden, in denen die Sulfatkonzentration im grönländischen Eis durch Vulkanausbrüche beeinflusst waren, wurden entfernt. In den Daten spiegeln sich stärker als bei a) die regionalen Emissionen auf der Nordhalbkugel wider (durch + gekennzeichnet).

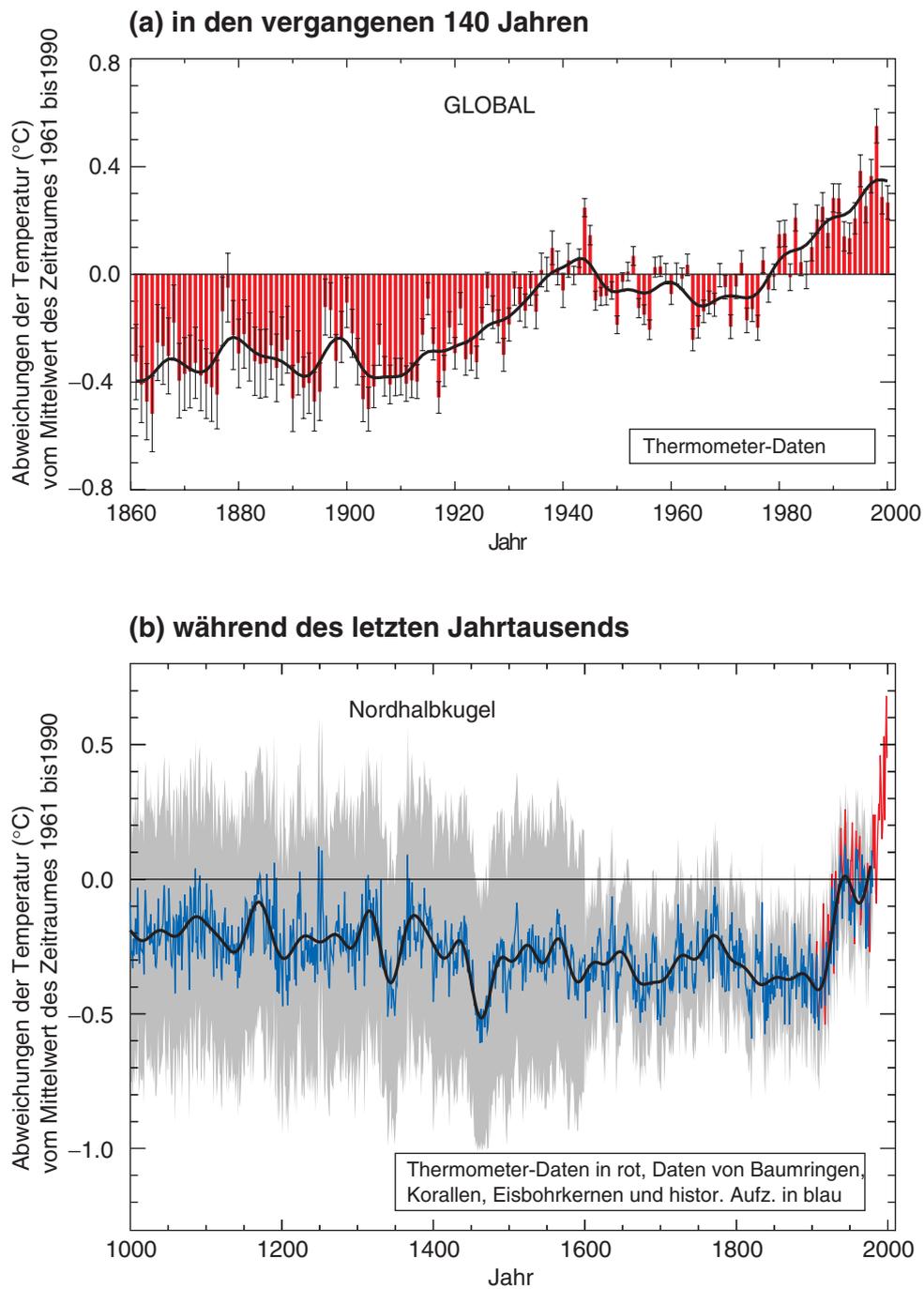
**Abb. 1-9** Langfristige Messreihen zur Veränderung der atmosphärischen Zusammensetzung zeigen den Einfluss anthropogener Emissionen [IPCC, 2001].



**Abb. 1-10** Übersicht über die entscheidenden anthropogenen Effekte auf die Veränderung der Erdtemperatur aus dem 3. IPCC-Report [IPCC, 2001] mit einer Abschätzung ihres Anteils und dem wissenschaftlichen Kenntnisstand.

Die rechteckigen Balken zeigen Abschätzungen der Beiträge der entscheidenden Faktoren. Die kühlende Wirkung von Vulkanausbrüchen wurde wegen der kurzen Zeitdauer der Ereignisse weggelassen. Mit dem indirekten Einfluss der Aerosole ist die Kapazität zur Wolkenbildung gemeint. Die Fehlerbalken zeigen die Streuung der Abschätzungen in verschiedenen Publikationen. Einige Komponenten, z. B. CO<sub>2</sub>, sind gut über den Erdball verteilt, haben eine lange Lebensdauer und tragen zur Erwärmung bei, andere, wie z. B. Aerosol, haben einen regionalen Charakter, kurze Lebensdauer, und ihr Beitrag wird widersprüchlich eingeschätzt. Daher kann nicht ohne weiteres die Summe gebildet werden. Die im 3. IPCC-Report zusammengetragenen Simulationen und Messungen zeigen eine Erwärmung durch anthropogene Einflüsse seit 1750.

Abbildung 1-10 gibt einen Überblick über die Anteile der beteiligten Stoffe an der anthropogenen Veränderung des Strahlungshaushalts und den entsprechenden wissenschaftlichen Erkenntnisstand über die Ursachen. Die größte Bedeutung wird hier dem Kohlendioxid mit einem Anteil von ca. 50 % beigemessen [IPCC, 2001]. Hauptverursacher von CO<sub>2</sub>-Emissionen sind die Verbrennung fossiler Brennstoffe sowie die großflächige Zerstörung von Wäldern. Wichtigste Senke von CO<sub>2</sub> ist der Ozean. Auch Wälder nehmen CO<sub>2</sub> auf, speichern es aber nur kurzfristig im Vergleich zum Ozean. Hinsichtlich der Senken bestehen noch Unsicherheiten. Die Kohlendioxid-Konzentration in der Erdatmosphäre ist seit Beginn der Industrialisierung von 280 auf 360 ppm, d. h. um etwa 25 % angestiegen. Die Kurve wird ab 1950 deutlich steiler. Die gegenwärtige jährliche Konzentrationszunahme beträgt



**Abb. 1-11** Veränderung der Oberflächentemperatur der Erde in den letzten 140 Jahren und im letzten Jahrtausend (adaptiert aus dem 3. Bericht der Arbeitsgruppe I des IPCC [IPCC, 2001])

**a)** jährliche Temperatur als rote Balken und Temperatur über 10 Jahre als schwarze Linie. Fehlerbalken geben das 95 %-Intervall an. Unsicherheiten entstehen vor allem durch Datenlücken und statistische Messfehler. Systematische Fehler treten bei der Temperatur der Ozeane und in urbanen Gebieten auf. Die Oberflächentemperatur ist im letzten Jahrhundert um  $0,6 \pm 0,2$  °C gestiegen.

**b)** blau: jährliche Werte, schwarz: 50 Jahre Mittelwert, grau: 95 % Vertrauensintervall. Im 20. Jahrhundert ist die Temperatur stärker als im ganzen Jahrtausend angestiegen, die 90er Jahre waren die wärmste Dekade und 1998 das wärmste Jahr des Jahrtausends.

etwa 0,4 %. Seit 1958 ist dieser Trend durch regelmäßige Messungen auf dem Mauna Loa auf Hawaii belegt [Keeling et al., 1995].

Auch die Messungen von Methan zeigen einen steigenden Trend. Methan entsteht dort, wo organisches Material unter anaeroben Bedingungen abgebaut wird. Die größte natürliche Quelle für Methan sind Feuchtgebiete (Sumpfgas). Die wesentlichen anthropogenen Quellen sind Reisanbau, Viehhaltung, Erdöl- und Erdgasförderung und -verteilung, Bergbau und Mülldeponien. Die wichtigste Abbaureaktion von Methan stellt die Umsetzung mit photochemisch in der Atmosphäre gebildeten OH-Radikalen zu  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  dar.

Halogenierte Kohlenwasserstoffe und vollhalogenierte Fluorchlorkohlenwasserstoffe sind ausschließlich anthropogenen Ursprungs. Sie wurden und werden zum Teil noch beim Einsatz von Treibmitteln (Sprays), Schaum- und Dämmstoffen, Lösungs- und Reinigungsmitteln sowie von Kältemitteln in Kühlgeräten und Kälteanlagen freigesetzt. Die als FCKW-Ersatzstoffe eingesetzten Verbindungen schädigen die Ozonschicht überhaupt nicht (HFKW) oder in deutlich gemindertem Maße (HFCKW), tragen aber ebenfalls zum Treibhauseffekt bei. Starke Treibhausgase sind außerdem Halone, die neben Fluor- und Chlor-Atomen auch Brom-Atome enthalten. Halone werden fast ausschließlich zur Feuerlöschung und Explosionsunterdrückung verwendet. Die einzige bekannte Senke ist die Photolyse in der Stratosphäre, bei der die gebildeten Chloratome den Abbau des Ozons bewirken.

$\text{N}_2\text{O}$  entsteht hauptsächlich durch Umsetzungen von Stickstoffverbindungen durch Mikroben im Boden. Die Hauptquelle ist Stickstoffdüngung. Der Eintrag von Stickstoffverbindungen in Böden kann direkt oder über den Wasser- und Luftweg erfolgen. Ein direkter Eintrag von  $\text{N}_2\text{O}$  in die Atmosphäre erfolgt durch die Industrie in der Hauptsache durch Emission bei der Adipinsäureherstellung und in geringem Umfang durch den Verkehr bei der katalytischen Reinigung von Autoabgasen. Photochemische Prozesse bauen das  $\text{N}_2\text{O}$  im Wesentlichen erst in der Stratosphäre ab.

Etwa seit Beginn des 20. Jahrhunderts nimmt die Ozon-Konzentration in der Troposphäre zu. *Ozon* wird selbst nicht emittiert, sondern bildet sich in der Atmosphäre durch photochemische Umsetzungen von Stickoxiden einerseits und flüchtigen organischen Verbindungen (NMVOC<sup>1</sup> und  $\text{CH}_4$ ), Kohlenmonoxid ( $\text{CO}$ ) und Luftsauerstoff andererseits. Im Bericht des IPCC<sup>2</sup> von 2001 [IPCC, 2001] wird die zusätzliche Wärmeleistung zur Verstärkung des

---

1. Non-Methane Volatile Organic Compounds

Treibhauseffekts auf  $0,4 \text{ W/m}^2$  eingeschätzt, was etwa einem Drittel der  $\text{CO}_2$ -Wirkung entspricht. Der Fehlerbalken ist wegen *unzureichender Kenntnis der globalen Konzentration troposphärischen Ozons* etwa halb so groß wie der Wert.

Die Bedeutung des Aerosols für das Klima ist im Detail noch sehr umstritten, was nicht zuletzt an fehlenden Messungen seiner dreidimensionalen Verteilung und seiner Streueigenschaften liegt. Sonnenlicht und von der warmen Erde abgegebene Wärmestrahlung werden an Aerosol-Partikeln genau wie in Gasen gestreut und absorbiert. Ob das nun zur Erwärmung oder zur Kühlung beiträgt, hängt von der Zusammensetzung und der Aerosol-Größenverteilung ab und ist eine der brennendsten aktuellen Fragen in der Klimaforschung. Aerosol wirkt als Kondensationskeim ( $\text{CCN}^1$ ) und trägt so zur Bildung von Wolkenröpfchen und Wolken durch heterogene Nukleation bei. Diesem sogenannten indirekten Aerosol-Effekt wird eindeutig eine kühlende Wirkung zugeschrieben (siehe Abbildung 1-10). Wie auch immer der Netto-Effekt aussieht, bleibt zu bedenken, dass Aerosol eine verschwindend kurze Aufenthaltsdauer im Vergleich zu vielen Treibhausgasen, insbesondere  $\text{CO}_2$ , in der Atmosphäre hat, wodurch seine „Klimawirksamkeit“ fragwürdig oder zumindest auf Dauer unzuverlässig erscheint. Die Auswirkungen sind in jedem Fall regional sehr unterschiedlich.

## 1.5 Luftchemie in der planetaren Grenzschicht

Die planetare Grenzschicht ist eine bedeutende Natur-Ressource. So ermöglicht sie es, dass wir atmen können und ist gleichzeitig Verdünnungsraum für alle Arten von Emissionen. Wird sie überstrapaziert, so beeinträchtigt das unter anderem die Gesundheit von Pflanzen, Tieren und Menschen, unseren Lebensstandard und die Produktivität der Wirtschaft.

An der Obergrenze der planetaren Grenzschicht bildet sich eine Barriere, die eine weitere Ausbreitung der Beimengungen in die freie Troposphäre und die Einmischung von Luft von oben erschwert. Damit ist sie, zeitlich begrenzt, so etwas wie ein Reaktionsgefäß. Hier laufen offensichtlich Abbaureaktionen mit einer Rate ab, die der Emissionsrate entspricht - andernfalls müssten sich die emittierten Stoffe längst angereichert haben. Das grundlegende Wissen hierüber stammt aus den letzten beiden Jahrzehnten [Graedel und Crutzen, 1996]. Wegen der unglaublichen Vielfalt an Beimengungen sind die tatsächlichen Reaktionen nur

---

2. Intergovernmental Panel on Climate Change

1. Cloud Condensation Nuclei

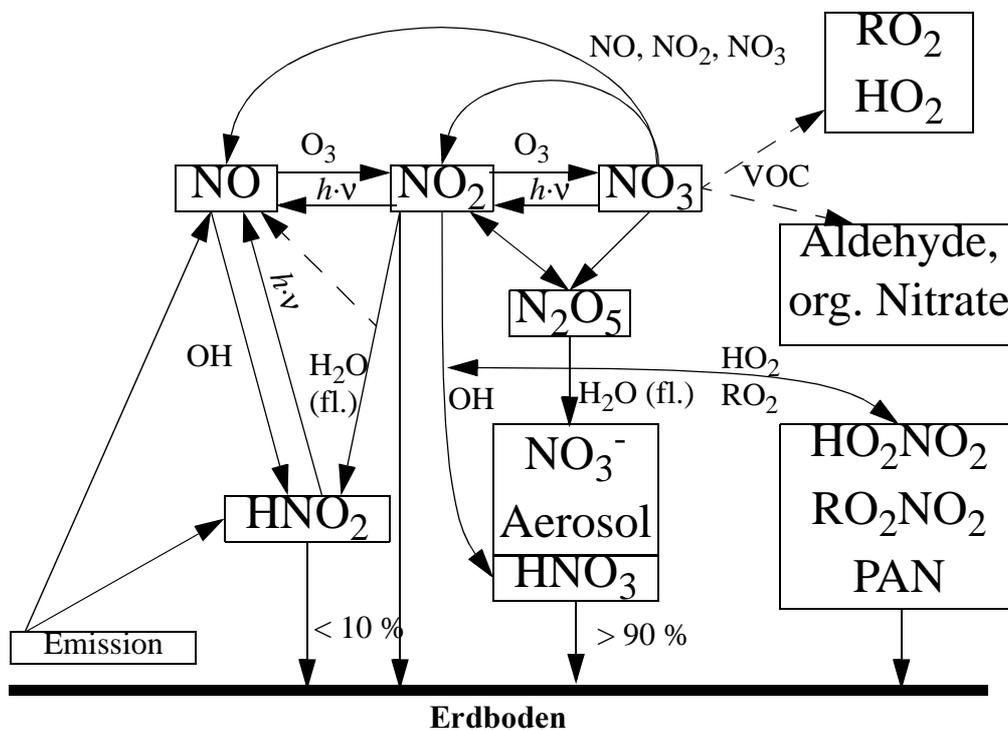


Abb. 1-12 Schema der Stickstoffchemie der Troposphäre (adaptiert von [Ackermann, 2000])

schwer vorhersagbar. Doch selbst wenn heute die wichtigsten chemischen Prozesse durchschaut sind, scheint es wegen der turbulenten Ausbreitung nahezu unmöglich, die Konzentrationen für einen bestimmten Punkt vorherzusagen. Das Studium der Chemie der planetaren Grenzschicht ist ein Wechselspiel zwischen Modellierung, d. h. numerischen Lösungen komplizierter Gleichungssysteme, und Messungen, bei denen die Größen möglichst nicht nur am Boden bestimmt werden sollten. Laser-Fernerkundung ist eine der wenigen Messmethoden, die genau das bietet. Für Berlin wurden in den Jahren 1998 und '99 Modellrechnungen zur Oxidantien-Prognose (Ozonvorhersage) am Meteorologischen Institut der Freien Universität durchgeführt [Flemming et al., 2000, Reimer et al., 2000]. Eingabedaten und Ergebnisse dieser Simulationen werden in Kapitel 4 direkt mit Laser-Fernerkundungsmessungen verglichen. Deshalb wird nach der Darstellung der Grundlagen der Ozonchemie kurz auf dieses Modell eingegangen (§ 1.5.1).

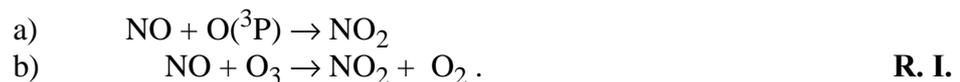
Wird ein Molekül in der Atmosphäre durch Sonnenlicht dissoziiert, spricht man von einer photochemischen Reaktion. Bei einer solchen Reaktion entstandene Radikale<sup>1</sup> sind der Ausgangspunkt für die meisten Stoffumwandlungen in der Gasphase - so auch für die

1. Atome oder Moleküle mit ungepaarten Elektronen entstehen oft photochemisch durch Dissoziation.

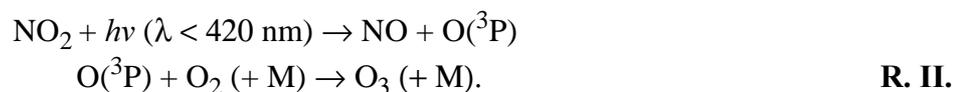
Ozonchemie in der planetaren Grenzschicht [Jenkin und Clemitshaw, 2000, Atkinson, 2000, Finlayson-Pitts und Pitts, 1997]. Homogene Reaktionen laufen zwischen Molekülen ab, die sich im gleichen Aggregatzustand (flüssig oder gasförmig) befinden. Bei heterogenen Stoffumwandlungen hingegen reagieren Moleküle mit unterschiedlichen Aggregatzuständen, oder es findet ein Phasenübergang statt (z. B. Gas-zu-Partikel-Konversion von Stick- und Schwefeloxiden) [Meng et al., 1997, Jacob, 2000, Ravishankara, 1997, Andreae und Crutzen, 1997, Finlayson-Pitts und Pitts, 1997].

In dicht besiedelten Gebieten mit starken Emissionen und Sonnenschein sind Stickoxide die Schlüsselkomponente zur Erklärung der katalytischen Ozonbildung. Sie entstehen bei Verbrennungsprozessen, insbesondere in Motoren, und bestehen hauptsächlich aus NO und einem geringen Anteil NO<sub>2</sub> (≤ 10%). In weniger belasteten Regionen, wie über den Ozeanen, der Arktis oder der Antarktis, dominieren Kohlenstoffoxide und Methan die Ozonchemie [Frey, 1997, Barrie et al., 1988].

Stickstoffmonoxid reagiert mit molekularem Sauerstoff oder Ozon zu Stickstoffdioxid, wobei der Reaktionsweg von der NO-Konzentration abhängig ist:



Bei typischen O<sub>3</sub>-Konzentrationen um 30 ppb in der planetaren Grenzschicht dauert diese Reaktion ca. eine Minute. Bei Tageslicht wird das entstandene NO<sub>2</sub> wieder zu NO und O<sub>3</sub> photolysiert:

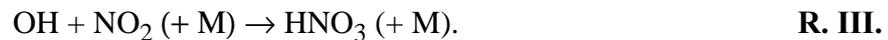


M steht für einen Stoßpartner, für gewöhnlich N<sub>2</sub> oder O<sub>2</sub>, der nicht an der Reaktion teilnimmt, sondern das Molekül durch Energieaufnahme in den notwendigen Zustand für die Reaktion versetzt. Die Reaktionen I und II würden zu einem Kreislauf ohne Netto-Produktion von Ozon führen. Das Konzentrationsverhältnis zwischen Stickoxiden und Ozon im photostationären Gleichgewicht wird durch die Leighton-Beziehung [Leighton, 1961] beschrieben:

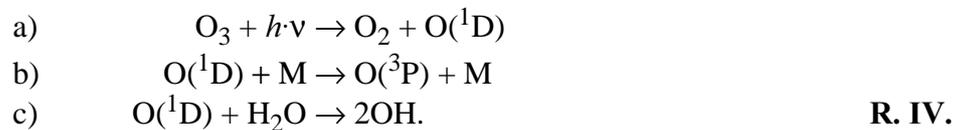
$$[\text{O}_3] = \frac{J_{\text{NO}_2} \cdot [\text{NO}_2]}{k_{1b} \cdot [\text{NO}]} \quad \text{Gl. 1-25}$$

J ist die Photolyse-Rate von  $\text{NO}_2$  (Aktinischer Fluss) und ist von der UV-Strahlungsintensität abhängig.  $k_{1b}$  ist die Reaktionskonstante von Reaktion I b. Das Gleichgewicht besteht, solange es keine konkurrierenden Reaktionen anderer Substanzen mit NO gibt. Nachts wird aufgrund der unmöglichen Photolyse von  $\text{NO}_2$  bei Abwesenheit direkter NO-Quellen alles NO zu  $\text{NO}_2$  oxidiert, vorausgesetzt, dass genügend Ozon vorhanden ist. Die größte Senke des  $\text{NO}_2$  ist die Deposition am Boden nach der Umwandlung in Salpetersäure - eine Bildungsart des sauren Regens.

Am Tage übernimmt das Hydroxylradikal die Oxidation:



Hydroxylradikale sind extrem reaktiv und oxidieren fast alle Luftverunreinigungen. Sie entstehen hauptsächlich durch die Photolyse von Ozon und nachfolgende Reaktion mit Wasserdampf:



Dieser grundlegende Aspekt der Photochemie wurde 1971 von Hiram Levy an der Harvard University entdeckt. Das Verzweigungsverhältnis zwischen den Reaktionswegen b) und c) beträgt etwa 0,1. Ein anderer Erzeugungsweg führt über die Photolyse salpetriger Säure ( $\text{HNO}_2$ ):



Die Eigenschaft der Hydroxylradikale, mit fast allem zu reagieren, hat ihnen den Ruf eingebracht, das „Waschmittel der Atmosphäre“ zu sein. Insbesondere reinigen sie die Luft von Kohlenwasserstoffen:



Das R-Radikal ist ein organisches Fragment, das nur aus Kohlenstoff und Wasserstoff besteht. Reaktion VI wird gefolgt von



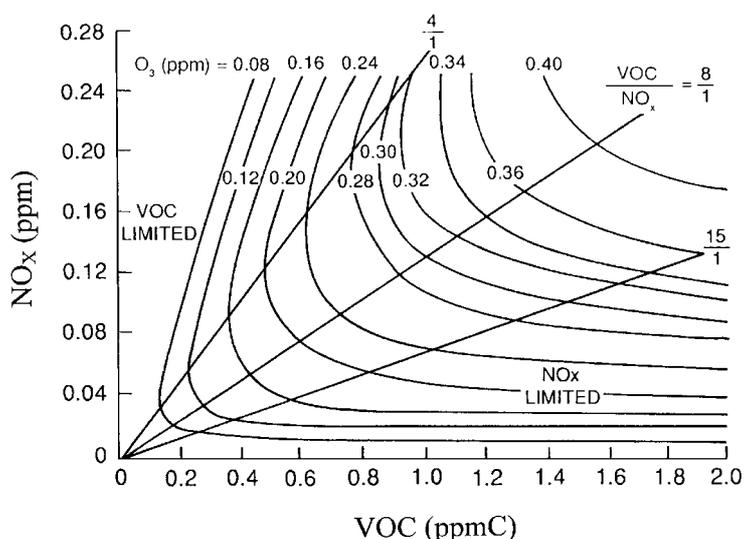
und



So kann die Ozon-Abbaureaktion I b umgangen werden, ohne dass Ozon zerstört wird. Die hohen Ozon-Konzentrationen sind also die Kehrseite des Waschmittel-Effekts des Hydroxylradikals.

In Abbildung 1-12 ist die troposphärische Stickstoffchemie schematisch dargestellt. Das Schema verdeutlicht neben der aktuellen Vorstellung von den Reaktionsmechanismen, wie schwer es ist, ein so komplexes System übersichtlich darzustellen. Dabei behandelt es nur einen Teilaspekt der tatsächlich ablaufenden chemischen Prozesse.

Die Frage, welche Vorläufersubstanzen verringert werden sollten, um die Ozon-Konzentration zu senken, ist ebenso wichtig wie schwer zu beantworten. Die Ursache für diese Schwierigkeit wird in Abbildung 1-13 illustriert. Ausgehend von verschiedenen Stickoxid- und Kohlenwasserstoff-Konzentrationen sind die resultierenden Ozon-Konzentrationen modelliert worden. Man sieht, dass der Erfolg einer Emissions-Begrenzungsstrategie von den relativen Konzentrationen abhängig ist. Die Reduzierung der VOC- oder  $\text{NO}_x$ -Werte kann auch zu erhöhten Ozonwerten führen, wenn das Verhältnis nicht stimmt.



**Abb. 1-13** Isoplethen-Diagramm der Ozon-Spitzenkonzentration, resultierend aus verschiedenen Anfangskonzentrationen von Stickoxiden und Kohlenwasserstoffen. Die Isoplethen verbinden Punkte gleicher Spitzenkonzentration [Jenkin und Clemitshaw, 2000].

### 1.5.1 Das photochemische Ausbreitungsmodell CALGRID

Für die Interpretation der gemessenen Daten werden Simulationen bzw. Modelle verwendet, die ein dreidimensionales Bild der Messgröße liefern. Ein Modell enthält natürlich wesentlich mehr Parameter und Ergebnisse als gemessen werden können. Da aber jedes Modell auf vielen Annahmen fußt, sind die wenigen zur Verfügung stehenden Messgrößen

der einzige Anhaltspunkt, um Eingabe-Parameter und Ergebnisse zu prüfen und gegebenenfalls zu verändern. Die Modelldaten wurden mir vom Institut für Meteorologie der Freien Universität zu Verfügung gestellt. Da die Nutzung und Interpretation der Daten Grundkenntnisse über Eigenheiten des Modells voraussetzt, werde ich hier darauf eingehen. Außerdem ist die Betrachtung der Modellergebnisse sehr hilfreich beim Studium der Dynamik und Chemie der planetaren Grenzschicht.

Das Modell CALGRID ist ein Eulersches Gittermodell, das auf einer numerischen Lösung der dreidimensionalen atmosphärischen Diffusionsgleichung beruht. Die Advektions-Diffusionsgleichung beschreibt die Massenbilanz aller beteiligten Luftbeimengungen:

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_i}{\partial t} = & \frac{\partial}{\partial x} u c_i + \frac{\partial}{\partial y} v c_i + \frac{\partial}{\partial z} w c_i && \text{Advektion} && \text{Gl. 1-26} \\ & + \frac{\partial}{\partial x} \left( K_H \frac{\partial c_i}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_H \frac{\partial c_i}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( K_z \frac{\partial c_i}{\partial z} \right) && \text{Turbulente Diffusion} \\ & + R_i + S_i + L_i \end{aligned}$$

mit:  $c_i$  = Konzentration der Luftbeimengung  $i$  als Fkt. des Raumes ( $x, y, z$ ) und der Zeit  $t$

$u, v, w$  = horizontale und vertikale Komponenten des Windvektors

$K_H$  = horizontaler turbulenter Diffusionskoeffizient

$K_z$  = vertikaler turbulenter Diffusionskoeffizient

$S_i$  = Emissionsrate der Luftbeimengung  $i$

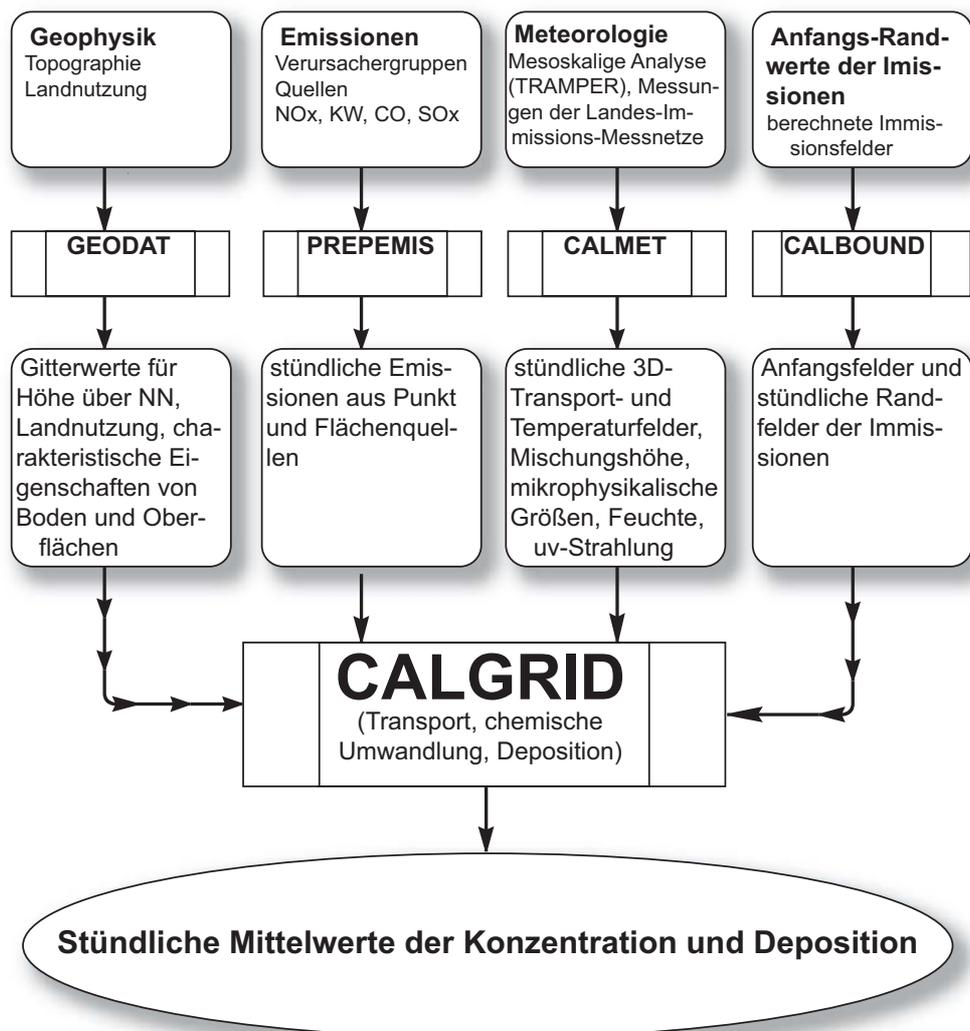
$R_i$  = Änderungsrate der Luftbeimengung  $i$  infolge chemischer Reaktionen

$L_i$  = Verlustrate der Luftbeimengung  $i$  infolge von Depositionsprozessen.

Das durch die obige Gleichung beschriebene System partieller Differentialgleichungen ist durch den Reaktionsterm  $R_i$  gekoppelt. Die Anzahl der gekoppelten Gleichungen wird durch die Anzahl  $i$  der zu transportierenden reaktiven Spezies bestimmt.

Die Berechnungen werden für Gitterpunkte eines dreidimensionalen Netzes ausgeführt. Zuerst wird ein Modell mit grober Rasterung zur Vorhersage der Randparameter gerechnet. REM3 (**R**egional **E**ulerian **M**odel with **3** chemistry schemes) [Stern, 1994] ist ein großräumiges (30-km-Raster), dreidimensionales, photochemisches Ausbreitungsmodell zur Simulation der Bildung, des Transports und der Entfernung von Oxidantien in der planetaren Grenzschicht. Das Modell enthält drei verschiedene photochemische Reaktionsmechanismen, von denen einer der ebenfalls im CALGRID-Modell integrierte SAPRC-90-Mecha-

nismus ist. REM3 arbeitet mit dem Konzept der dynamischen Schichten, die in Abhängigkeit von den lokalen meteorologischen Verhältnissen expandieren oder kontrahieren. Der Ausbreitungsraum wird dazu in drei Schichten aufgeteilt.



**Abb. 1-14** Das CALGRID Modellsystem [Stern et al., 1997].

CALMET ist der für das Transportmodell CALGRID entwickelte meteorologische Treiber, der auf der Basis von Messungen alle für CALGRID benötigten Daten erzeugt. CALMET verwendet als Eingangsdaten alle verfügbaren meteorologischen Standard-Bodenmessungen, die verfügbaren Vertikalsondierungen sowie Landnutzungsdaten und topographische Daten. Aus diesen Daten berechnet das Modell mit Hilfe von Interpolations-Methoden und Strömungs-Adaptionsalgorithmen unter Verwendung der Grenzschicht-Theorie alle benötigten Felder.

TRAMPER (Tropospheric Realtime Applied Meteorological Procedures for Environmental Research) [Reimer und Scherer, 1992] ist ein großräumiges, diagnostisches meteorologisches Analysesystem, das den Antrieb für CALMET liefert. Mit TRAMPER werden ausgehend von der großräumigen Wetterlage im Untersuchungsgebiet Vertikalprofile für alle meteorologischen Parameter erstellt. Diese Vertikalprofile dienen als Stützwerte für das CALMET-Modell, das unter weiterer Einbeziehung lokaler Messwerte die meteorologischen Felder für CALGRID in der definierten Auflösung berechnet. TRAMPER liefert auch alle zum Betreiben des großräumigen photochemischen Modells REM3 benötigten meteorologischen Daten.

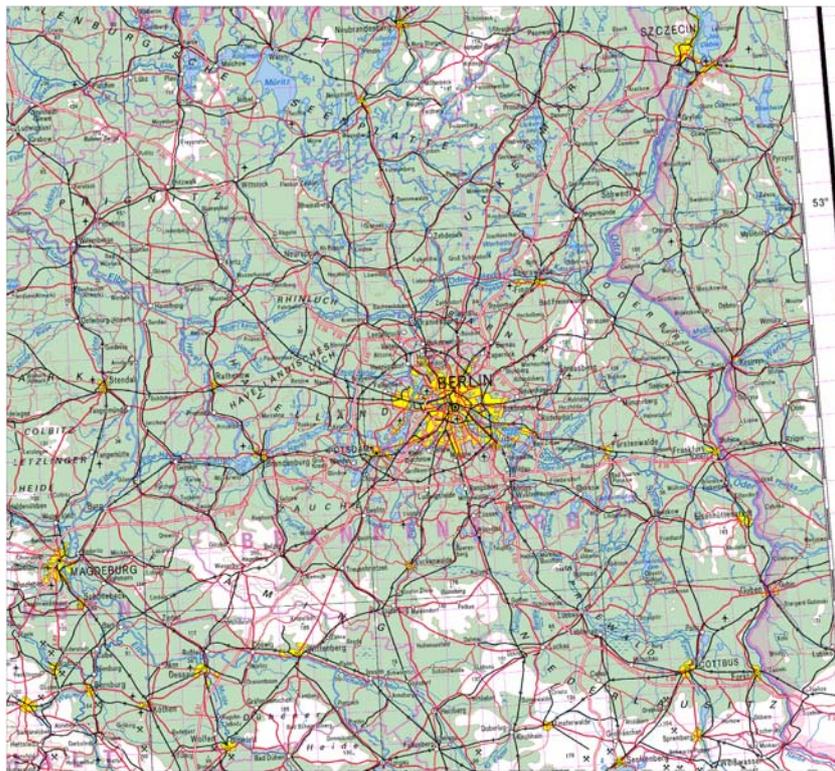
CALGRID ist schließlich das dreidimensionale, photochemische Transportmodell mit Modulen für den horizontalen und vertikalen Transport, die horizontale und vertikale Diffusion, die trockene Deposition sowie für die photochemischen Reaktionen (Gleichung 1-26). Als photochemischer Mechanismus wird der SAPRC-90-Mechanismus verwendet, eine kompakte Version des am Statewide Air Pollution Research Center (SAPRC) der Universität Kalifornien entwickelten SAPRC-Mechanismus [Carter, 1990].

Die gesamte graphische Auswertung wird mit einem auf GRADS (**Grid Analysis and Display System**) beruhenden Analysesystem vorgenommen. GRADS wurde am Center for Ocean-Land-Atmosphere Interactions der Universität von Maryland entwickelt [Doty, 1995]. Zum direkten Vergleich mit Laser-Fernerkundungsdaten habe ich ein neues Lese- und Auswertungsprogramm in Labview entwickelt.

Die Abbildung 1-14 gibt einen schematischen Überblick über den Aufbau des Modellsystems. Für die Modellierung des Gebiets Berlin/Brandenburg wurde ein Gitter mit einem horizontalen 2-km-Netz und 14 Höhenstufen mit Mittelpunkten bei 10, 35, 75, 150, 250, 350, 450, 600, 850, 1200, 1700, 2300, 2900 und 3500 m verwendet. Das Modell arbeitet mit Gauß-Krüger-Koordinaten, bei denen ein Schritt einem Kilometer entspricht. (Modellgebiet, Abbildung 1-15).

#### **1.5.1.1 Bestimmung meteorologischer Parameter mit CALMET**

Der meteorologische Treiber CALMET [Scire et al., 1995] ist ein universell einsetzbares Programmsystem zur Erzeugung von meteorologischen Eingabedaten für das chemische Transportmodell CALGRID. Ausgehend von bodennahen meteorologischen Beobachtungen und evtl. verfügbaren aerologischen Daten sowie der Landnutzung und Topographie



**Abb. 1-15** Das CALGRID Modellgebiet erstreckt sich zwischen  
Rechtswert: 4467 - 4707 bzw. W 11° 31' 29.04" - W 15° 7' 43.33" oder 11.524735 - 15.128704,  
Hochwert: 5707 - 5947 bzw. N 51° 29' 52.46" - N 53° 36' 53.89" oder 51.497906 - 53.614970.

werden alle erforderlichen zwei- und dreidimensionalen Felder abgeleitet und als CALGRID-Eingabedateien abgelegt. Ergänzend - oder ersatzweise für die aerologischen Messungen - können beliebige diagnostische oder quasidiagnostische dreidimensionale Wind- und Temperaturfelder verarbeitet werden. Für die vorliegende Anwendung auf den Ballungsraum Berlin/Brandenburg wurden die auch dem Antrieb des REM3 zugrundeliegenden mesoskaligen Analysen des meteorologischen Datensystems TRAMPER als Grundfelder übernommen. Damit wird die Anbindung des lokalen an das überregionale Transportmodell gewährleistet.

Die vorbereiteten Daten werden dann im meteorologischen Modell CALMET weiterverarbeitet. CALMET umfasst Module für die Berechnung von Grenzschichtparametern sowie von mittleren Wind- und Temperaturfeldern. In Tabelle 1-5 sind die verwendeten Eingabedaten und die von CALGRID erzeugten Ausgabefelder zusammengefasst.

Das Grenzschichtmodul verwendet unterschiedliche Parametrisierungen über Land und Wasser. Für Landoberflächen wird ein Energiebilanzverfahren verwendet. Jedem Typ von Landoberfläche muss dabei das Verhältnis von sensiblem zu latentem Wärmefluss

<b><u>EINGABEDATEN</u></b>		
Landnutzung		
Topographie		
Wind- und Temperaturprofile (an Gitterpunkten der objektiven Analyse)		
Bewölkungsgrad (an Gitterpunkten der objektiven Analyse)		
Wind- und Temperaturbeob. (aus Immissionsmessnetzen der Länder)		
<b><u>AUSGABEDATEN</u></b>		
<b>3-D</b>	<b>2-D</b>	<b>1-D</b>
u-, v-, w-Komponente des Windes	PGT-Stabilitätsklasse	Hüttentemperatur
Temperatur	Schubspannungsgeschwindigkeit $u^*$	Luftdichte
Feuchtigkeit	Mischungsschichthöhe	kurzwellige Nettostrahlung
	Monin-Obuchov-Länge	Relative Feuchtigkeit
	konvektive Skalengeschwindigkeit $w^*$	Niederschlagstyp
	Niederschlagsrate	

**Tab. 1-5** Überblick über Ein- und Ausgabedaten des CALMET-Modells

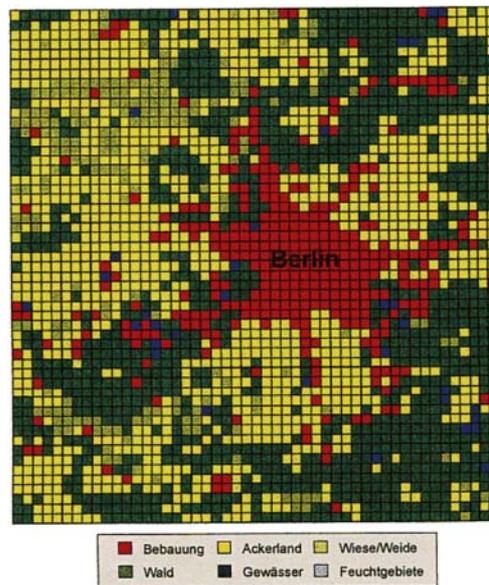
("Bowen-ratio") zugeordnet werden. Vorgabewerte dieser Größe für US-standardisierte Landnutzung liegen im Grenzschichtmodell vor. Zur Bestimmung der kurzwelligen Nettostrahlung werden Standard-Parametrisierungen verwendet, in die Sonnenstand, Temperatur, Bewölkung, der Bodenwärmefluss, der anthropogene Wärmefluss, der sensible Wärmefluss am Tage und die kurzwellige Nettostrahlung eingehen. Der sensible Wärmefluss  $Q_h$  berechnet sich aus

$$Q_h = \frac{B}{1-B} [Q^* (1 - c_g) + Q_f] \quad \text{Gl. 1-27}$$

mit  $B$  = Bowen-ratio,  $Q^*$  = kurzwellige Nettostrahlung,  $Q_f$  = anthropogener Wärmefluss und  $Q' = (1-A) Q_{sw} + c_1 T^6 - \sigma T^4 - c_2 N^{b2}$ , mit  $A$  = Albedo,  $Q_{sw}$  = kurzwellige Strahlung =  $(a \sin \phi + a)(1 + b_1 N^{b2})$ ,  $T$  = Temperatur,  $N$  = Bewölkung in Zehntel,  $\phi$  = Sonnenhöhe,  $\sigma$  = Stefan-Boltzmann-Konstante. Ist der sensible Wärmestrom bekannt, können iterativ die Schubspannungsgeschwindigkeit  $u^*$  und die Monin-Obuchov-Länge  $L$  berechnet werden:

$$u^* = \frac{ku}{\ln\left(\frac{z}{z_0} - \Psi_m\left(\frac{z}{L}\right) + \Psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right)\right)} \quad \text{und} \quad L = -\frac{\rho C_p T u^{*3}}{kg Q_h} \quad \text{Gl. 1-28}$$

mit:  $z$  = Rauigkeitslänge,  $\Psi_m$  = Korrekturfunktion [Dyer und Hicks, 1970],  $k$  = Von-Karman-Konstante,  $u$  = Windgeschwindigkeit,  $T$  = Temperatur,  $g$  = Erdbeschleunigung. Unter stabilen Bedingungen wird ein Verfahren nach Weil und Brower [Weil und Brower, 1983] angewandt:



Landnutzungsklasse	Anteil an der Gesamtfläche
Städtisch bebaute Flächen	20,2 %
Landwirtschaftlich genutzte Flächen	30,9 %
Weiden/Wiesen	7,6 %
Waldgebiete	35,2 %
Wasserflächen	6,0 %
Feuchtgebiete/Sumpf	<0,1 %

**Abb. 1-16** Landnutzungsklassen in der Modell-Region Berlin-Brandenburg

$$u^* = \frac{1}{2} C_{DN} u (1 + C^{1/2}) \quad \text{Gl. 1-29}$$

mit:  $C_{DN}$  = Reibungskoeffizient unter neutraler Schichtung  $[k/\ln(z/z_0)]$ ,  
 $C = 1 - [(4u_0^2) / (C_{DN} u^2)]$ , und  $u_0^2 = f(T, \theta^*)$ ,  $\theta^*$  = Temperaturskalengröße,  $\theta^* = \min(\theta^*_1, \theta^*_2)$ ,  
wobei  $\theta^*_1 = 0,09(1 - 0,5N^2)$ ,  $\theta^*_2 = (TC_{DN} u^2) / (4\gamma z g)$ ,  $\gamma = 4,7$ . Der sensible Wärmefluss ist  
über die Funktion  $Q_h = -\rho c_p u^* \theta^*$  mit  $u$  und  $\theta^*$  verknüpft. Über Wasser wird vereinfachend  
 $u = u C_{uN}^{1/2}$  gesetzt ( $C_{uN}^{1/2}$ : neutraler Reibungskoeffizient über Wasser  $(0,75 + 0,067 u)10^{-3}$ ).  
Wegen der Bedeutung des latenten Wärmeflusses wird die Monin-Obuchov-Länge  $L$  über Wasser wie folgt berechnet [Hanna et al., 1985]:

$$L = \frac{\theta_v C_{uN}^{3/2} u^2}{E_2(\theta_v - \theta_{vs})} \quad \text{Gl. 1-30}$$

mit:  $\theta_v$ ,  $\theta_{vs}$  = virtuelle potentielle Temperatur von Luft und Wasser,  $u$  = Windgeschwindigkeit,  $E_2 = 5.096 \times 10^{-3}$ . Die Mischungsschichthöhe  $h_t$  folgt dann tagsüber bei positivem Wärmefluss aus folgender prognostischer Gleichung:

$$h_{t+dt} = \sqrt{h_t^2 + \frac{2Q_h(1+E)dt}{\Psi_1 \rho c_p} - \frac{2d\theta_t h_t}{\Psi_1} + \frac{d\theta_{t+dt}}{\Psi_1}} \quad \text{Gl. 1-31}$$

$$d\theta_{t+dt} = \sqrt{\frac{2\Psi_1 E Q_h dt}{\rho c_p}}$$

mit:  $\Psi_1$  = Gradient der potentiellen Temperatur oberhalb von  $h_t$ ,  $d\theta_t$  = Temperatursprung am Oberrand der Mischungsschichthöhe zur Zeit  $t$ ,  $E = 0,15$ . Der Gradient der potentiellen Temperatur wird jeweils aus der für die vorhergehende Stunde geltenden Temperatur in den Schichten über der Mischungsschichthöhe berechnet. Die Mächtigkeit der Höhengschicht zur Bestimmung des Gradienten und der minimale potentielle Temperaturgradient können per Option vorgegeben werden. Die Höhe der Mischungsschicht wird tagsüber als das Maximum aus konvektiver und neutraler Mischungsschichthöhe berechnet:

$$h_{\text{neutral}} = \frac{Bu^*}{\sqrt{fN_B}} \quad \text{Gl. 1-32}$$

mit:  $f$  = Coriolis-Parameter,  $N_B$  = Brunt-Väisälä-Frequenz. Die Höhe der stabilen Mischungsschicht wird als das Maximum aus

$$h_1 = B_2 u^{*\frac{3}{2}} \quad \text{Gl. 1-33}$$

bestimmt mit  $B_2 = 2400$  und

$$h_2 = \frac{2}{5} u^{*\frac{3}{2}}. \quad \text{Gl. 1-34}$$

Als weitere Option für die Berechnung der Mischungsschichthöhe kann eine räumliche Advektion der konvektiven Mischungsschichthöhe im Anströmsektor über spezielle Gewichtsfunktionen erfolgen. Ist die Mischungsschichthöhe bekannt, kann direkt die konvektive Geschwindigkeit  $w^*$  berechnet werden:

$$w^* = \sqrt[3]{\frac{gQ_h h_1}{T\rho c_p}}. \quad \text{Gl. 1-35}$$

Wir dürfen gespannt sein, wie die auf so komplizierte Weise errechnete Mischungsschichthöhe mit den Laser-Fernerkundungsmessungen übereinstimmt.

### 1.5.2 Wirkung von Luftverunreinigungen auf Menschen und Pflanzen

Viele anthropogene Luftbeimengungen destabilisieren nicht nur das Klimasystem. Sie schädigen darüber hinaus die Gesundheit und führen zu Produktionseinbußen, insbesondere in der Landwirtschaft. Da sich die Mischung unserer Atemluft mit den Emissionen nicht verhindern lässt, versucht man eine Balance zwischen selektiver Reduktion bestimmter Stoffe und der Wirtschaftlichkeit zu finden. In den Städten stellen insbesondere Staub und photochemische Reaktionsprodukte wie z. B. Ozon ein Problem dar. Feinstaub und andere Aerosole gelangen bis in die Lungenbläschen und transportieren so Bakterien, Viren und Gifte in die Lunge, die Schnittstelle zwischen Atemluft und Blut. Das Ozon soll im Folgenden als Beispiel dienen, um typische Wirkungen darzustellen.

Meine Oma empfahl mir, nach einem Gewitter im Wald tief durchzuatmen und das Ozon zu inhalieren - das sei gut für die Gesundheit. Tatsächlich steigt die Ozon-Konzentration nach einem Gewitter im Wald stark an. In Blitzen wird  $\text{NO}_2$  gebildet, das mit den natürlichen flüchtigen Kohlenwasserstoffen im Wald reagiert. Nach heutigem Erkenntnisstand ist jedoch sicher, dass Ozon äußerst aggressiv auf Zellen sowohl bei Menschen und Tieren als auch bei Pflanzen wirkt, und es wird entschieden davon abgeraten, Luft mit erhöhter Ozon-Konzentration einzuatmen.

Und noch etwas hat sich seit Großmutterzeiten geändert. Die Konzentration des bodennahen Ozons unterliegt heutzutage vorwiegend anthropogenen Einflüssen. Etwa die Hälfte entsteht derzeit durch Reaktionen von Stickoxiden und flüchtigen Kohlenwasserstoffen, die ständig neu bei der Verbrennung fossiler Energieträger gebildet werden. Wie im vorigen Abschnitt dargestellt ist das Verständnis für die komplexen Prozesse bei der chemischen Bildung von Ozon, anderen Gasen und Aerosol noch unvollkommen. Gleichzeitig besteht Handlungsbedarf für politische Weichenstellungen. In Tabelle 1-6 und Tabelle 1-7 sind die Grenz- und Richtwerte der deutschen und europäischen Verordnung für Ozon, seine Vorläufersubstanzen, Schwefeloxide und Staub aufgeführt. Da in der Politik nur kleine Schritte gegangen werden können, ist es besonders schwer, eine Entscheidung zu treffen, die zur Reduktion von Ozon führt, denn diese kann nur durch Beeinflussung der Konzentration von Vorläufersubstanzen erreicht werden.

Die Empfindlichkeit gegenüber Ozon beim Menschen ist sehr unterschiedlich ausgeprägt. Eine unterste Konzentration, die bei niemandem zu Reizungen führt, ist nicht bekannt. Es treten Reizungen der Nasenschleimhaut und des Rachens mit Begleiterscheinungen wie

Komponente	Immissionswerte nach TA-Luft <sup>a</sup>		Grenz-, Leit- und <sup>b</sup> Schwellenwerte der Europäischen Union		MIK-Werte nach VDI 2310		Konz.-Werte 23. BImSchV		
	Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	IW1 Jahresmittel	IW2 98 %-Wert	Wert	Erläuterung	½ h	24 h	Jahresmittel	98 %-Wert
Schwebstaub		150	300	150	Jahresmittelwert	500 <sup>c</sup>	250 <sup>d</sup>		
				300	95 %-Wert aus Tageswerten		150 <sup>e</sup>		
Schwefeldioxid (SO <sub>2</sub> )		140	400	120/80 <sup>f</sup>	Median <sup>h</sup> des ganzen Jahres, Median <sup>h</sup> des Winterhalbjahres	1000	300		
				180/130 <sup>g</sup>					
				350/250 <sup>i</sup>	98 %-Wert aus Tageswerten				
Stickstoffdioxid (NO <sub>2</sub> )		80	200	200	98 %-Wert aus ½h-Werten	200	100		160
				50/135	Median/98 %-Wert, Leitwerte <sup>j</sup>				
Stickstoffmonoxid (NO)						1000	500		
Kohlenmonoxid (CO)		10000	30000			50000	10000		
Benzol									15/10 <sup>k</sup>
Ruß									14/ 8 <sup>k</sup>
Ozon (O <sub>3</sub> )				180	1h-Wert zur Information	120			
				360	1h-Wert zur Warnung der Bevölkerung				
				110	8h-Wert für den Gesundheitsschutz				
				200	1h-Wert				
				65	24h-Wert zum Schutz der Vegetation				

**Tab. 1-6** Grenz- und Richtwerte für Luftverunreinigungen in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  [<http://www.met.fu-berlin.de/senum/>]

- bezogen auf die Beurteilungsfläche. Die Immissionswerte (IW) beziehen sich bei Staub auf Tageswerte, sonst auf 1/2h-Werte.
- EU-Grenzwerte gelten bis zu den in der letzten Spalte der Tabelle 1-7 angegebenen Terminen.
- Bezugszeitraum 1 Stunde
- bei einmaliger Exposition
- an aufeinander folgenden Tagen
- $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$
- $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$
- berechnet aus Tageswerten
- $350 \mu\text{g}/\text{m}^3$
- Richtwerte für Planverfahren
- gültig ab 1.7.95 bzw. 1.7.98

Komponente	Mittel über	Grenzwert (GW)	zulässige Anzahl von Überschreitungen	Grenzwert einzuhalten bis
Schwefeldioxid	1 h	350 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	24 mal pro Jahr	1.1.2005
	24 h	125 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	3 mal pro Jahr	1.1.2005
Stickstoffdioxid	1 h	200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	18 mal pro Jahr	1.1.2010
	1 Jahr	40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$		1.1.2010
Schwebstaub (PM10)				
- Stufe 1	24 h	50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	35 mal pro Jahr	1.1.2005
	1 Jahr	40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$		1.1.2005
- Stufe 2	24 h	50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	7 mal pro Jahr	1.1.2010
	1 Jahr	20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$		1.1.2010
Blei	1 Jahr	0,5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$		1.1.2005

**Tab. 1-7** Grenzwerte für Luftverunreinigungen nach der Richtlinie 1999/30/ EG (EU-Tochtrichtlinie), in Kraft seit 19.7.1999 [<http://www.met.fu-berlin.de/senum/>].

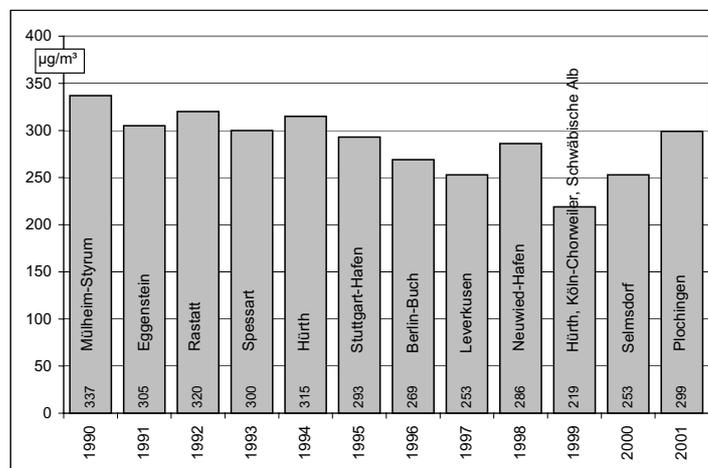
Husten und Engegefühl in der Brust auf. Studien über Veränderungen der Lungenfunktion werden seit etwa 25 Jahren durchgeführt. Eine Metaanalyse [Hazucha, 1987] verdeutlicht die Bedeutung der körperlichen Belastung für die Einschränkung der Lungenfunktion durch Ozon. Unter leichter körperlicher Belastung kommt es ab ca. 400  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , bei starker Belastung bereits ab 200  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  zu signifikanten Einschränkungen. Ohne Belastung wurden selbst Konzentrationen von 1000  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  ohne gefährliche Folgen vertragen. Weiterhin ist eine verstärkte Reagibilität nach längerer Ozonbelastung beobachtet worden. Das heißt z. B., dass Asthmatiker nach Ozonbelastung stärker auf Allergene reagieren, also eine geringere Menge eines Allergens ausreicht, um die gleiche Störung der Lungenfunktion auszulösen. Bei den in Deutschland auftretenden Konzentrationen regenerieren sich diese Störungen und führen nicht zu Dauerschäden. Bei mehrfacher Exposition gegenüber Ozon kommt es zu einer vorübergehenden Gewöhnung [Folinsbee et al., 1994]. Besonders schwierig bei der Untersuchung großer Bevölkerungsgruppen ist die Trennung der Ursachen für erfolgte Veränderungen, da besonders Staub und andere photochemische Reaktionsprodukte in der Atemluft und auch das Rauchen ähnliche Wirkungen wie Ozon zeigen.

Unter den bekannten Luftschadstoffen besitzt Ozon auch die höchste Giftwirkung auf Pflanzen [Dierkesmann und Sandermann, 2000]. Erscheinungen wie Nadel- und Blattverlust bei Bäumen oder Ernteeinbußen zwischen 10 und 30 % zählen zu den Folgen. Als

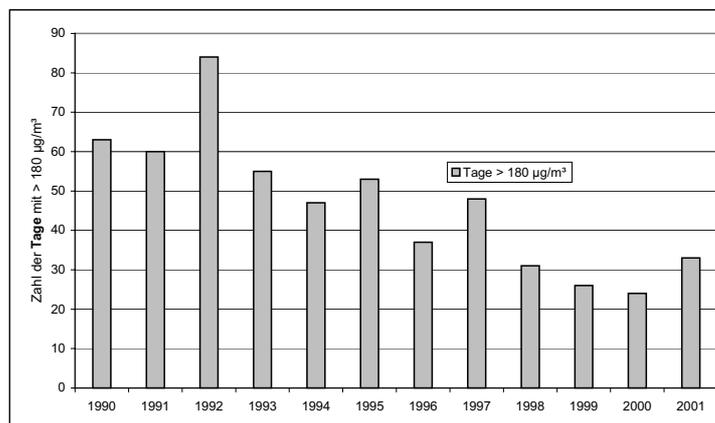
Ursache wird vor allem die langfristige Exposition gegenüber niedrigen Ozon-Konzentrationen gesehen.

Die durchschnittlichen Ozonwerte sind in den letzten hundert Jahren um das Zweifache gestiegen. Sie liegen auch in Europa und in den USA deutlich oberhalb der international gültigen Grenzwerte von  $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$  als Mittelwert über eine Vegetationsperiode von 7 Monaten (WHO). Es werden sowohl akute als auch chronische Effekte beschrieben. So konnte nachgewiesen werden, dass Infektionsepisoden auf Ozonepisoden folgen. Untersuchungen im Freiland gibt es bisher nur wenige, und es ist oft fraglich, ob die Laborergebnisse übertragbar sind, da das Wohlbefinden einer Pflanze vielfältige Ursachen hat. In der Landwirtschaft entwickelt sich gerade die Nachfrage nach Laser-Fernerkundungsgeräten, um durch flächendeckende Messungen von Spurengasen die Pflanzensorten entsprechend den lokalen Bedingungen auswählen zu können.

a)



b)



**Abb. 1-17** Entwicklung der Ozon-Konzentration in Deutschland [Umwelt-Bundesamt, 2001]

- a) Jährliche maximale Ozon-Konzentrationen in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  mit Angabe der registrierenden Messstelle,  
 b) Zahl der Tage mit Überschreitungen von  $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .