

Perspektiven der Luftqualität durch zukünftige
anthropogene Emissionen und durch sich
änderndes Klima in Baden-Württemberg -
Der Einfluss von Rußpartikeln auf die
Hitzewelle 2003

von I. Gölz, A. Ferrone, H. Vogel, B. Vogel

Gefördert mit Mitteln des Ministeriums für Umwelt, Klima und
Energiewirtschaft Baden-Württemberg (UM)

April 2013

HERAUSGEBER	LUBW Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg Postfach 100163, 76231 Karlsruhe
KONTAKT	Dr. Kai Höpker, Referat Medienübergreifende Umweltbeobachtung, Klimawandel; Tel.:0721/56001465, Kai.Hoepker@lubw.bwl.de ;
AUFTRAGGEBER	Ministerium für Umwelt, Klima und Energiewirtschaft Baden-Württemberg - Forschungsprogramm Klimawandel und modellhafte Anpassung in Baden- Württemberg (KLIMOPASS)
BEARBEITUNG	Inga Gölz, Andrew Ferrone, Heike Vogel, Bernhard Vogel Karlsruher Institut für Technologie, Institut für Meteorologie und Klimatologie 76128 Karlsruhe
BEZUG	http://www.fachdokumente.lubw.baden-wuerttemberg.de/servlet/is/91063/ ID Umweltbeobachtung U43-W03-N11
STAND	April 2013, Internetausgabe August 2013

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Die Bedeutung von Aerosol für Klima und Luftreinhaltung	8
2.1	Atmosphärisches Aerosol	8
2.2	Einfluss von atmosphärischem Aerosol auf das Klima	10
2.3	Ruß	12
2.4	Einfluss von Ruß auf die Stabilität der Atmosphäre	15
2.5	Feinstaubbelastung	16
3	Numerische Simulationen mit COSMO-ART	18
3.1	Das Modellsystem COSMO-ART	18
3.2	Das Aerosolmodul MADEsoot	19
3.3	Behandlung der Strahlung in COSMO-ART	25
3.4	Modellgebiet und verwendete Modellkonfiguration	26
3.5	Synoptische Analyse des Sommers 2003	31
4	Einfluss von Ruß auf die Luftqualität während des Sommers 2003	33
4.1	Rußemissionen und Rußkonzentrationen	33
4.2	Zeitlicher Verlauf der Konzentrationen von Spurenstoffen und Aerosolen	38
4.3	Zeitlicher Verlauf der Konzentrationen von Feinstaub	43
5	Einfluss von Ruß auf die Größenverteilungen der Aerosole	48
5.1	Chemische Zusammensetzung der Massendichteverteilung der Aerosole	48
5.2	Beitrag der Moden zu Größenverteilungen in COSMO-ART	50
6	Einfluss von Ruß auf die Temperatur	55
6.1	Bodennahe Temperaturänderung	55
6.2	Räumliche Verteilung der Temperaturänderung	59
6.3	Vertikale Temperaturunterschiede	62
7	Zusammenfassung	68
	Literaturverzeichnis	70

A Rußkonzentrationen

II

B Durchmesser

VI

Kapitel 1

Einleitung

Anthropogene Aerosole besitzen einen signifikanten Einfluss auf das globale Klima und auf die menschliche Gesundheit. Für die atmosphärischen Prozesse sind die chemischen und physikalischen Eigenschaften der Partikel und die chemische Zusammensetzung der Partikelmasse von Bedeutung. Einen Großteil der Partikelmasse stellen Sulfat und andere anorganische Ionen dar. Die restliche Masse besteht aus einem kohlenstoffhaltigen Anteil. Dieser kann als organischer Kohlenstoff oder als elementarer Kohlenstoff, auch Ruß genannt, vorliegen. Die beiden Kohlenstoffgruppen unterscheiden sich hauptsächlich in ihrem relativen Kohlenstoffgehalt.

Das atmosphärische Aerosol hat eine Auswirkung auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre. Zu sehen ist dies vor allem an der reduzierten Sichtweite in belasteten Luftmassen (Riemer, 2002). Laut dem Zwischenstaatlichen Ausschuss für Klimaänderungen (Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC) ist die Rolle des Rußes bezüglich der Klimawirksamkeit auch heute noch mit hohen Unsicherheiten verbunden (IPCC, 2007a). Während die meisten Aerosole das Sonnenlicht hauptsächlich streuen und somit abkühlend auf die Atmosphäre wirken, absorbiert Ruß die solare Strahlung und führt in der jeweiligen Schicht zu einer Erwärmung (Grassl, 1999). Befindet sich die Rußschicht am Boden wird die bodennahe Schicht erwärmt. Befindet sich jedoch der Ruß in hohen Schichten ist der Effekt genau anders herum. Die Strahlung wird in der Höhe von den Rußpartikeln absorbiert und erwärmt die Schicht. Aufgrund der Absorption gelangt jedoch weniger Strahlung auf den Boden und die bodennahe Schicht kühlt ab. Das Absorptionsvermögen von Ruß kann dabei verstärkt werden, wenn die Rußpartikel aufgrund Kondensations- oder Koagulationsvorgänge in eine nicht absorbierenden Hülle eingebettet sind. Auch die Größe und der Mischungszustand der Aerosolpartikel spielt hier eine wichtige Rolle.

Ruß entsteht aus der unvollständigen Verbrennung von kohlenstoffhaltigem Material. Neben Waldbränden sind die Hauptquellen von Ruß in der unteren Troposphäre zum einen Dieselfahrzeuge, Kraftwerke und private Heizungen, während in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre aufgrund geringer Hintergrundkonzentrationen Flugzeugabgase eine wichtige Quelle sind. Dabei spielt in der Südhemisphäre und in den Tropen die Verbrennung von Biomasse die größere Rolle (Cooke und Wilson, 1996; Hansen et al., 1988) und in Ballungszentren auf der Nordhalbkugel die Verbrennung von fossilen Brennstoffen.

Die Kondensations- und Koagulationsvorgänge werden auch als Alterungsprozess bezeichnet

(Weingartner et al., 1997). Aufgrund dieses Prozesses ändern sich die hygroskopischen Eigenschaften der Rußpartikel von hydrophob zu hydrophil und damit auch ihre Fähigkeit als Wolkenkondensationskeime zu wirken (Cubison et al., 2008).

Eine Abschätzung des durch Rußpartikel hervorgerufenen Klimaeffekts wurde zum Beispiel durch Jacobson (2002) mittels eines globalen Klimamodells durchgeführt. Er fand heraus, dass für einen bestimmten Zeitraum eine Reduktion der Rußemissionen die globale Erwärmung mehr verlangsamt als durch eine Emissionsreduktion von Kohlenstoffdioxid und Methan. Diese Theorie wurde jedoch in vielen weiteren Arbeiten nicht bestätigt (zum Beispiel Jones et al., 2005).

Aerosole und besonders Ruß haben zudem einen Einfluss auf die Gesundheit. Während größere Partikel nur bis in den Rachenraum gelangen, können die schwarzen, filigran verästelten Partikel so klein sein, dass sie tief in die Lunge gelangen und das Herzkreislaufsystem schädigen können. An der Aerosoloberfläche können sich dabei Schwermetalle oder Krebs erzeugende polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe anlagern (Umweltbundesamt, 2009). Um dem gesundheitlichen Risiko entgegen zu wirken, legte die europäische Kommission im April 1999 die Richtlinie 1999/30/EG für Grenzwerte für die Partikelmasse von Feinstaub fest. Diese Grenzwerte werden jedoch zur Zeit in mehreren europäischen Ländern überschritten. Um dem entgegen zu wirken wurden zum Beispiel Fahrverbote, Mautzonen und Partikelfilter eingeführt.

Laut Wang (2004) besitzen Rußpartikel einen signifikanteren Einfluss auf den Klimaeffekt auf der regionalen Skala als auf der globalen Skala. Bäumer et al. (2008) untersuchten zum Beispiel den Einfluss von Rußpartikeln auf den Atmosphärenzustand in Baden-Württemberg innerhalb weniger Tage mittels COSMO-ART. Sie fanden heraus, dass die kurzweilige Strahlungsbilanz typischerweise um etwa 10 W/m^2 verringert wird und die bodennahe Temperatur im Flächenmittel um etwa $0,1 \text{ }^\circ\text{C}$ zurück geht.

Das in dieser Arbeit verwendete Modellsystem COSMO-ART (Vogel et al., 2009) ist eines der wenigen regionalen Modelle, die vollständig gekoppelt operieren. Eine Besonderheit in COSMO-ART ist die explizite Behandlung der Rußalterung, die einen bedeutsamen Einfluss auf das Klima und auf die Gesundheit des Menschen hat. Das vollständig online gekoppelte Modellsystem erlaubt die Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Aerosolen und Strahlungsfeldern. Eine weitere Besonderheit von COSMO-ART ist, dass bereits die gasförmigen Emissionen im Modell beschrieben werden und auch der Transport der Partikel innerhalb des meteorologischen Modells berechnet wird.

Ziel dieser Arbeit ist, den Einfluss von Rußpartikel auf den Atmosphärenzustand zu untersuchen. Dafür werden zum ersten Mal Simulationen mit COSMO-ART über zwei Monate während der Hitzeperiode 2003 über Europa durchgeführt. In diesem Zeitraum war der Himmel ungewöhnlich klar und im betroffenen Gebiet lag eine hohe Aerosolkonzentration vor (Hodzic et al., 2006). Um den Einfluss von Ruß quantifizieren zu können, werden verschiedene Simulationen mit der Betrachtung von Rußpartikeln und ohne der Betrachtung von Rußpartikel durchgeführt. Somit können Rückschlüsse auf die Veränderung der Aerosolkonzentrationen und Feinstaubbelastun-

gen gezogen werden. Durch das Fehlen von Ruß in der Atmosphäre verändert sich ebenfalls die Durchmesserverteilungen der Aerosole.

Rußpartikel verändern ebenfalls die meteorologischen Bedingungen. In dieser Arbeit wird insbesondere die Auswirkung des Rußes auf die Temperatur in 2 m Höhe untersucht, aber auch die vertikalen Höhenprofile werden betrachtet.

In Kapitel 2 werden zunächst die theoretischen Grundlagen des atmosphärischen Aerosols und dessen Einfluss auf das Klima und der Rußpartikel und ihrer Auswirkung auf die Stabilität der Atmosphäre betrachtet. Außerdem wird kurz die Feinstaubbelastung innerhalb Europas diskutiert. Die Beschreibung des Modellsystems COSMO-ART, das verwendete Untersuchungsgebiet und eine synoptische Analyse des Sommers 2003 befindet sich in Kapitel 3. Kapitel 4 befasst sich mit dem Einfluss von Ruß auf die Luftqualität. Der Einfluss von Ruß auf die Durchmesserverteilung verschiedener Aerosole werden in Kapitel 5 vorgestellt. Zum Schluss der Auswertung, in Kapitel 6, wird auf den Einfluss von Ruß auf die Temperatur eingegangen. Die Arbeit endet mit einer Zusammenfassung in Kapitel 7.

Kapitel 2

Die Bedeutung von Aerosol für Klima und Luftreinhaltung

Dieses Kapitel gibt zunächst einen kurzen Überblick über das atmosphärische Aerosol und seinen Einfluss auf das Klima. Danach folgt eine nähere Betrachtung des Aerosol Ruß. Um der Feinstaubbelastung entgegen zu wirken führte die Europäische Gesetzgebung einen PM₁₀-Grenzwert in der Luftqualitätsrichtlinie ein. Dies wird im Abschnitt 2.5 besprochen. Zum Schluss wird der Einfluss von Ruß auf die Stabilität der Atmosphäre diskutiert und insbesondere auf den Einfluss von Rußschichten in verschiedenen Höhengniveaus eingegangen.

2.1 Atmosphärisches Aerosol

Als atmosphärisches Aerosol wird die Dispersion fester oder flüssiger Partikel in der Luft bezeichnet. Grundsätzlich wird bei Aerosolen zwischen Primärpartikeln und Sekundärpartikeln unterschieden. Primärpartikel sind Partikel, die direkt in der Umgebung emittiert werden, wie zum Beispiel Seesalz, Mineralstaub und Ruß aus Verbrennungsprozessen. Sekundärpartikel sind Partikel, die erst in der Atmosphäre aus Vorläufersubstanzen in der Gasphase gebildet werden, wie zum Beispiel Sulfat-Aerosole aus Schwefeldioxid. Durch die unterschiedlichen Bildungsprozesse erstrecken sich die Aerosolpartikel über mehrere Größenordnungen. Nach Junge (1952) (deutsche Bezeichnung) und Whitby (1978) (englische Bezeichnung) können die Aerosole grob eingeteilt werden in:

- Aitkenpartikel mit einem Radius von 0,01 bis 0,1 µm (Nucleation mode),
- Große Partikel mit einem Radius von 0,1 bis 1 µm (Accumulation mode) und
- Riesenpartikel mit einem Radius größer als 1 µm (Coarse mode).

Abbildung 2.1 zeigt die verschiedenen Quell- und Senkprozesse der unterschiedlichen Partikelgrößenverteilungen. Die kleinsten Partikel entstehen durch Nukleation von gasförmigen Substanzen (Nukleationsmode). Ein Verlustprozess für diese kleinen Partikel ist die Deposition. Auch durch Koagulation (Anlagerung) aufgrund der Brownschen Bewegung ist die Lebensdauer von

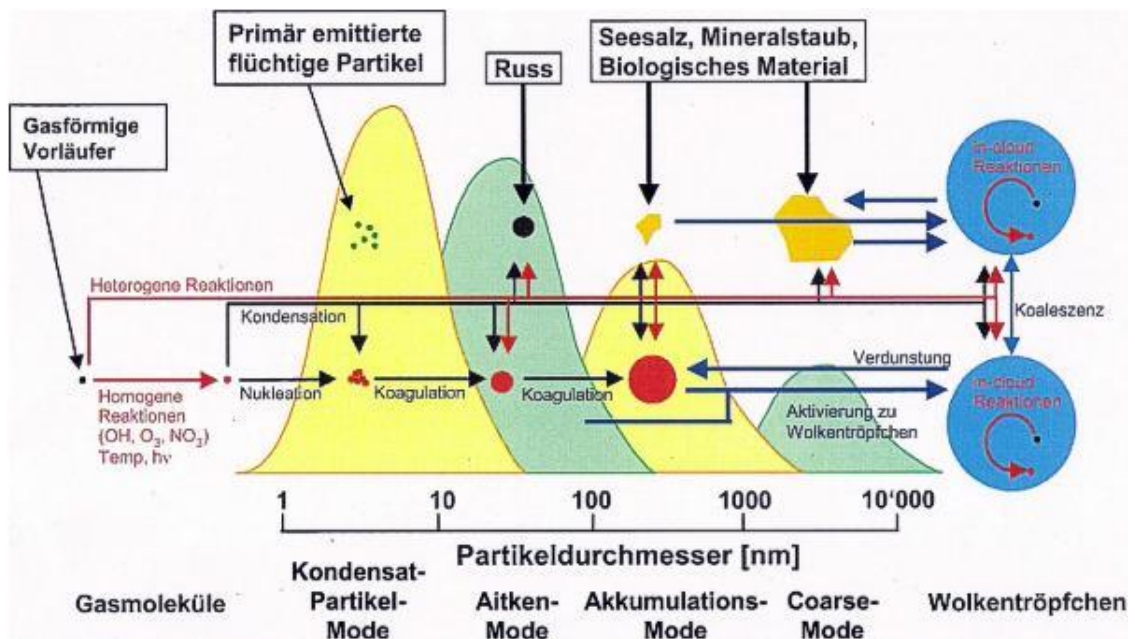


Abb. 2.1: Schematische Darstellung des Lebenslaufes eines Aerosols (nach Raes et al., 2000).

kleinen Partikeln begrenzt. Dieser Prozess und die Sublimation oder Kondensation von Gasen und Wasserdampf lassen die Partikel zuerst langsam und ab einem Durchmesser von 0,05 bis 0,1 μm schneller anwachsen. Sind die Partikel sehr groß, ist die Sedimentation der Hauptprozess der die Partikel aus der Atmosphäre entfernt. In der sogenannten Akkumulationsmode (Partikelradius zwischen 0,1 und 1 μm) sind weder Sedimentation, Koagulation oder die trockene Deposition von Bedeutung. In diesem Größenbereich hängt die Lebensdauer der Partikel, je nach ihren hygroskopischen Eigenschaften, von der nassen Deposition ab. Hygroskopische Aerosole können auch als Wolkenskondensationskeime dienen und so die Tropfenbildung anregen (siehe Kapitel 2.2).

Um auf das physikalische und chemische Verhalten eines Aerosols schließen zu können, ist es wichtig seinen Mischungszustand zu kennen. Bei einer vollständig externen Mischung liegen die verschiedenen Substanzen getrennt in verschiedenen Partikeln vor, während bei einer vollständig internen Mischung jedes Partikel aus mehreren Substanzen besteht und die Massenverhältnisse der verschiedenen Substanzen nicht vom Radius abhängen. Abbildung 2.2 stellt schematisch die zwei Mischungszustände dar. Während Nukleation und Emission von Primärpartikeln zu einer externen Mischung führen, führt die Alterung eines Aerosols zu einer internen Mischung. Zwischen den zwei Extremen können unterschiedliche Zwischenstufen vorkommen.

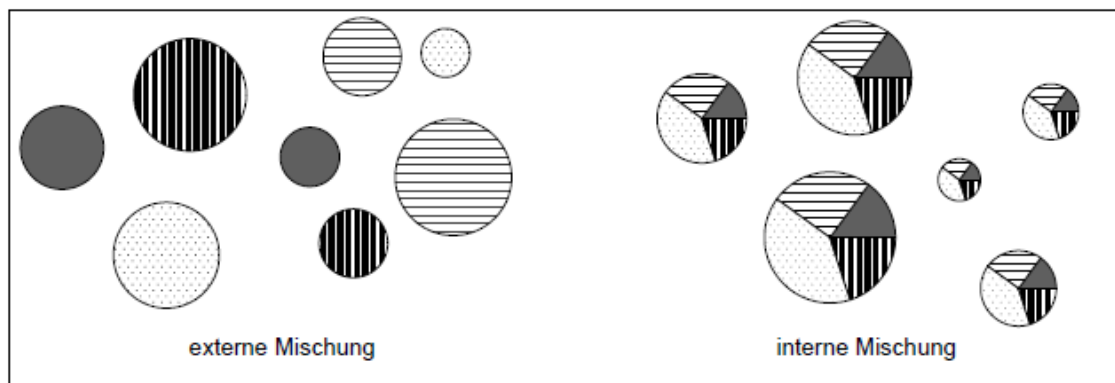


Abb. 2.2: Schematische Darstellung der Mischungszustände der externen und internen Mischung (Riemer, 2002).

2.2 Einfluss von atmosphärischem Aerosol auf das Klima

Aerosolpartikel, Wolken und atmosphärische Gase (vor allem Wasserdampf und Kohlenstoffdioxid) wirken als Strahler und absorbieren und emittieren die solare und terrestrische Strahlung. Das erst ermöglicht das Leben auf der Erde. Dieser natürliche Effekt erwärmt die Temperatur in 2 m Höhe von -18°C auf ein globales und langzeitliches Mittel von 15°C (Kraus, 2004), wenn allen anderen Parameter gleich bleiben.

Das atmosphärische Aerosol hat einen signifikanten Einfluss auf das Klima. Die globale Strahlungsbilanz wird durch sie sowohl positiv (Erwärmung) als auch negativ (Kühlung) beeinflusst. In Abbildung 2.3 ist der globale durchschnittliche Strahlungsantrieb, ein Maß für den Einfluss verschiedener Faktoren auf die globale Erderwärmung, aufgetragen. Er beschreibt wie sich die Strahlungsbilanz der Erde im Mittel im Jahr 2005 gegenüber 1750 verändert hat.

Nach IPCC (2007a) hat der globale durchschnittliche anthropogene Netto- Gesamtbetrag eine Erwärmung mit einem Strahlungsantrieb von $1,6$ ($0,6$ bis $2,4$) W/m^2 zur Folge¹. Dabei beträgt der gesamte Strahlungsantrieb aufgrund des Anstiegs von Kohlendioxid $1,66$ ($1,49$ bis $1,83$) W/m^2 . Durch die anthropogenen Beiträge der Aerosole (vor allem Sulfat, Nitrat, organischer Kohlenstoff, Ruß und Staub) wird ein direkter Strahlungsantrieb von $-0,5$ ($-0,9$ bis $-0,1$) W/m^2 und ein indirekter Strahlungsantrieb durch Änderung der Wolkenalbedo durch die Aerosole von $-0,7$ ($-1,8$ bis $-0,3$) W/m^2 erzeugt. Die Änderung der Sonneneinstrahlung trägt einen Strahlungsantrieb von $0,12$ ($0,06$ bis $0,3$) W/m^2 bei.

Als direkter Effekt des Aerosols wird die Streuung und Absorption von kurz- und langwelliger Strahlung bezeichnet. Wichtig für die Bestimmung des direkten Strahlungseffekts von Aerosolen sind die Einfachstreueralbedo, der Extinktionskoeffizient und die Streufunktion. Diese optischen Eigenschaften hängen wiederum von der Feuchte, der Wellenlänge, der Aerosolbeladung und der

¹Die Werte geben den Nettobetrag und die Bandbreite zwischen 5 und 95 % des anthropogenen Strahlungsantriebs an. Da deren Berechnung die Summierung von asymmetrischen Unsicherheitsabschätzungen der einzelnen Faktoren benötigt, kann sie nicht durch Addition durchgeführt werden (IPCC, 2007a).

KOMPONENTEN DES STRAHLUNGSANTRIEBS

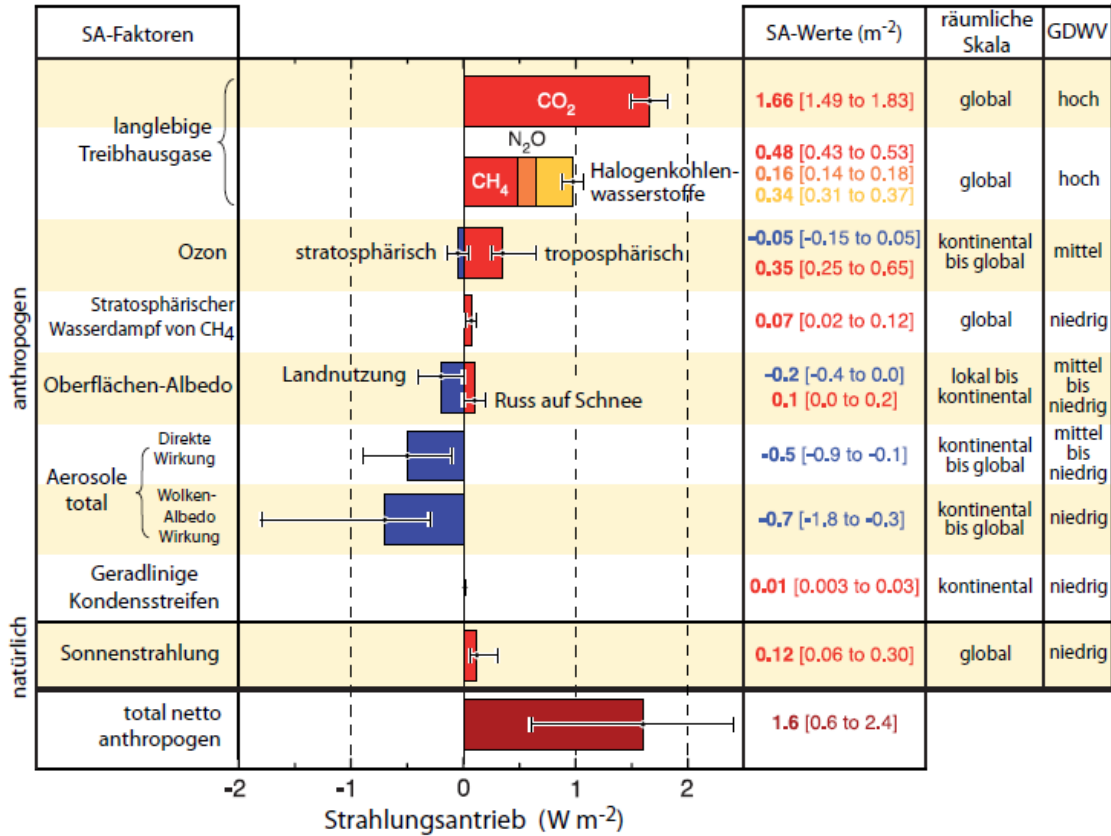


Abb. 2.3: Globaler durchschnittlicher Strahlungsantrieb im Jahr 2005 gegenüber 1750 für verschiedene Faktoren, zusammen mit der typischen geographischen Ausdehnung des Antriebs und einer Beurteilung des Grades des wissenschaftlichen Verständnis (GDWV) (IPCC, 2007b modifiziert nach IPCC, 2007a).

Aerosolverteilung ab. Während die meisten Aerosole, mit Ausnahme von Mineralstaub und Rußpartikeln, auf langwellige Wärmestrahlung so gut wie keinen Einfluss haben, absorbieren und reflektieren sie die Solarstrahlung. So streuen Aerosole wie Sulfat, Nitrat und Ammonium das Sonnenlicht und Aerosole wie Mineralstaub und Ruß absorbieren es (Horvath, 1993). Auch die Größenverteilung der Partikel ist wichtig für das Streuverhalten der Aerosole. Bei einem Wellenlängenbereich des sichtbaren solaren Spektrums zwischen 280 nm und 700 nm lässt sich diese für Partikel kleiner als 0,3 µm durch die Rayleighstreuung und größer 0,3 µm durch die Mie-Streuung beschreiben (Bäumer et al., 2008).

Als indirekter Effekt wird die Beeinflussung der Aerosole auf Strahlungseigenschaften, Anzahl und Lebenszeit der Wolken bezeichnet. Wichtig hierfür ist die Wirksamkeit eines Aerosolpartikels als Wolkenkondensationskeim. Hier wird zwischen zwei Arten von Effekten unterschieden. Als Wolken-Albedo-Effekt (Lohmann et al., 2005), erster indirekter Effekt (Forster et al., 2007) oder Twomey-Effekt (Twomey, 1977) wird der Effekt bezeichnet, in dem die Anzahlkonzentration

nen der Wolkentröpfchen vergrößert, der Flüssigwassergehalt aber konstant gehalten wird. Dies führt zu einer Verstärkung der Mehrfachstreuung des Lichtes und somit zu einer Erhöhung der Wolkenalbedo. Als Wolken-Lebensdauer-Effekt (Lohmann et al., 2005), zweiter indirekter Effekt (Forster et al., 2007) oder Albrecht-Effekt (Albrecht, 1989) wird der Effekt bezeichnet, in dem die Tropfengröße reduziert wird. Dadurch wird der Flüssigwassergehalt, die Höhe der Wolken und ihre Lebensdauer verändert.

Als semi-direkten Aerosoleffekt versteht man die Erwärmung der lichtabsorbierenden Aerosole. Dieser hat Einfluss auf die relative Feuchte, die Stabilität der atmosphärischen Schichtung, die Wolkenbildung und deren Lebenszeit. In Abbildung 2.4 sind die verschiedenen Aerosoleffekte grafisch zusammengefasst.

Liu et al. (2002) stellte fest, dass die Massenkonzentration von Ruß in der Atmosphäre zu gering ist und somit die Wolkenalbedo nicht signifikant beeinflussen kann. Ackerman et al. (2000), Koren et al. (2004) und Johnson et al. (2004) haben in ihren Studien gezeigt, dass eine Rußschicht in der Atmosphäre eine Heizrate von 1-3 K pro Tag bewirken kann.

Eine Gesamtbilanz über den Einfluss von Ruß auf das Klima zu ziehen, ist mit großen Unsicherheiten verbunden. Geografische Verteilung, Massen- und Anzahlkonzentration, Größe und Form von Ruß beeinflussen die verschiedenen Effekte. Für den Einfluss von Ruß finden sich in der Literatur Abschätzungen des Strahlungsantrieb zwischen 0 W/m^2 und $+0,8 \text{ W/m}^2$ (zum Beispiel Penner et al., 2003; Hansen et al., 2005).

2.3 Ruß

Eine wichtige Komponente des atmosphärischen Aerosols ist der Ruß. Er stellt zwar nur etwa 5% der Gesamtmasse des atmosphärischen Aerosols dar, ist jedoch wegen seinem hohen Absorptionsvermögen von großer Bedeutung. Ruß entsteht aus der unvollständigen Verbrennung von kohlenstoffhaltigem Material (Abb. 2.5). Somit sind alle Quellen von Ruß, außer der natürlichen Verbrennung von Biomasse, anthropogen. Die Rußbildung beginnt mit der Oxidation bzw. Pyrolyse des Brennstoffs. Bei der Verbrennung entstehen neben Kohlendioxid, Kohlenmonoxid und Wasser reaktive Zwischenprodukte. Durch Polymerisationsprozesse an diesen Verbindungen bilden sich hochmolekulare zyklische Verbindungen, wie zum Beispiel polyaromatischer Kohlenwasserstoff (PAH = polycyclic aromatic hydrocarbons). Die Partikelbildung beginnt, wenn zwei PAH Moleküle aufeinander treffen. Die dreidimensionale Strukturen werden durch heterogene Oxidations- und Wachstumsreaktionen an der Teilchenoberfläche zu Rußteilchen mit einem Durchmesser über 10 nm. Durch Koagulation der Rußpartikel entstehen kettenförmige Agglomerate mit einigen hundert Nanometer Durchmesser (Burtscher, 1992). Sie haben eine Lebensdauer von 6 bis 10 Tagen in der Atmosphäre (Cooke und Wilson, 1996), wobei ihre einzigen Senken die trockene und nasse

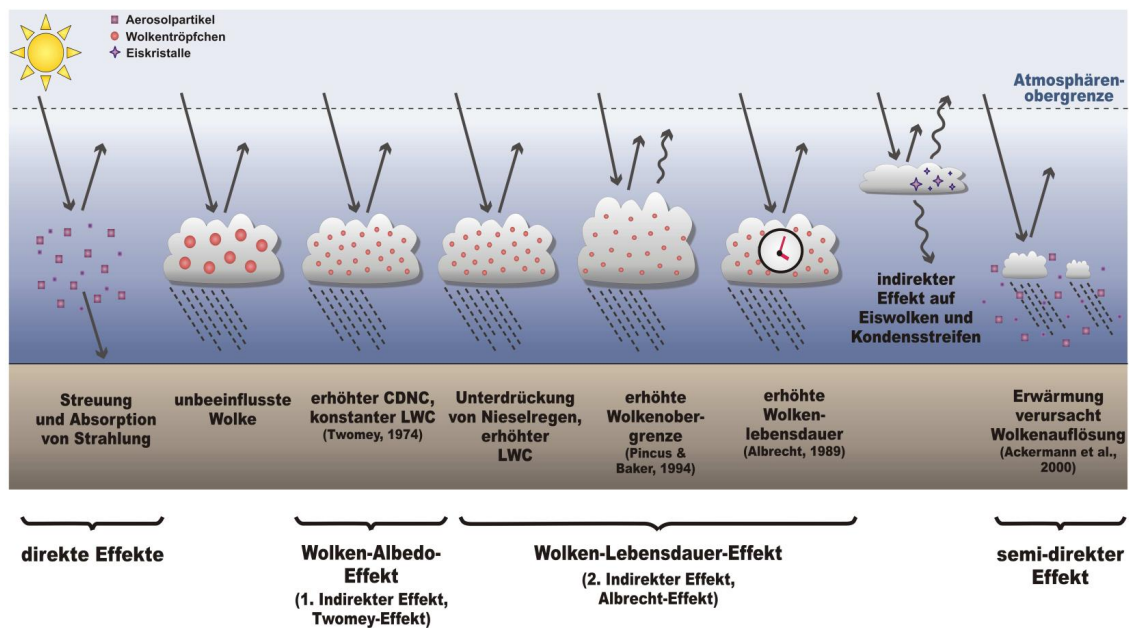


Abb. 2.4: Schematische Darstellung des direkten, semi-direkten und indirekten Aerosoleffekts. Die geraden Pfeile stellen die ankommende und reflektierte solare Strahlung dar, die geschwungenen Pfeile die langwellige Strahlung und die gestrichelte Linien den Niederschlag (Stanelle, 2008 modifiziert nach Forster et al., 2007).

Deposition sind.

Bond und Bergstrom (2006) fanden heraus, dass die Absorptionseigenschaften von lichtabsorbierendem Kohlenstoff nicht so variabel sind wie allgemein vermutet. Laut ihnen befindet sich der massennormierte Absorptionsquerschnitt für eine Lichtwellenlänge von 550 nm bei $7,5 \pm 1,2 \text{ m}^2/\text{g}$. Für stark absorbierende Rußpartikel empfehlen sie einen Brechungsindex von $m = 1,95 - 0,79i$. Der hohe Imaginärteil zeigt das starke Absorptionsvermögen von Ruß.

Für die optischen Eigenschaften der Rußpartikel ist ihr Mischungsstatus von Bedeutung. Haben intern gemischte Rußpartikel eine Hülle aus nicht absorbierenden Substanzen, fokussiert diese die Strahlung auf den Rußkern und ihr Absorptionsvermögen pro Masse erhöht sich im Gegensatz zu extern gemischten Partikeln. Es wird angenommen, dass in unmittelbarer Nähe von der Rußquelle die Partikel extern gemischt vorliegen und durch den Alterungsprozess (Koagulation und Kondensation) zu intern gemischten Partikeln überführt werden (Hitzenberger und Puxbaum, 1993). Dabei ändern sich auch die hygroskopischen Eigenschaften eines Rußpartikels von ursprünglich hydrophob zu hydrophil und damit ihre Fähigkeit als Wolkenkondensationskeime zu wirken (Cubison et al., 2008; McFiggans et al., 2006; McMurry und Stolzenburg, 1989; Moffet et al., 2008). Auch ändert sich die Morphologie der Rußpartikel (Colbeck et al., 1990). Durch den Alterungsprozess kollabiert die zuerst fraktale Struktur und die fraktale Dimension nimmt zu (Ramachandran und Reist, 1995).

²http://www.dlr.de/vt/desktopdefault.aspx/tabid-3069/4642_read-6709/ (Stand 16.8.12)

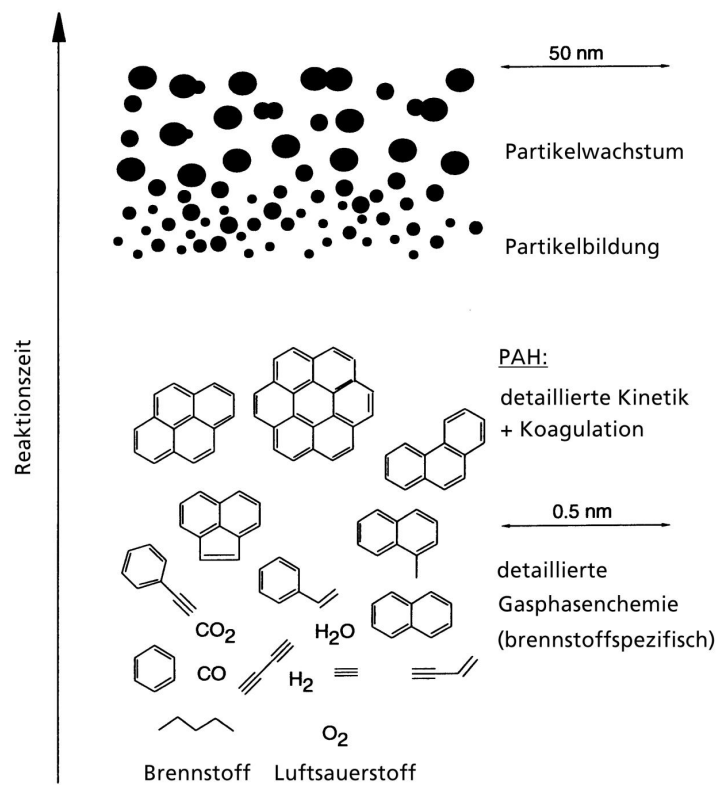


Abb. 2.5: Schematische Darstellung der Rußentstehung ² modifiziert nach Bockhorn (1994).

Da die Hauptquelle von Ruß Verbrennungsprozesse sind, sind die Konzentrationen auf dem Lande niedriger als in der Stadt. Außerdem konnten Unterschiede zwischen den Winter- und Sommermonaten festgestellt werden. Während in Kirchstetter et al. (2008) die Winterkonzentrationen bis zu fünf mal höher sind als die Sommerkonzentrationen (in San Francisco, Californien), stellten Kleefeld et al. (2002) eine geringere Rußkonzentration im Winter fest (in Mace Head, Irland).

Auch können Abhängigkeiten der Rußkonzentrationen zwischen den Wochentagen und Tageszeiten gefunden werden. Es wurde festgestellt, dass unter der Woche (Kirchstetter et al., 2008; Madhavi Latha und Badarinath, 2003) und während des Stoßverkehrs (Madhavi Latha und Badarinath, 2003) die Konzentrationen ansteigen.

Bei der Größenverteilung von Ruß ist wie bei der Massenkonzentration die Verteilung der Emissionen von Bedeutung. Laut Ogren et al. (1984) hat die Anzahlgrößenverteilung ihr Maximum im Akkumulationsbereich. In diesem Bereich sind die Depositionsgeschwindigkeiten für die trockene Deposition zu klein, womit die Partikel je nach meteorologischen Bedingungen weit transportiert werden können. Die Größenverteilung ändert sich auch mit dem Alter von Ruß. Durch die Änderung der hygroskopischen Eigenschaften wird das Größenwachstum bestimmt, was wiederum Auswirkungen auf die optischen Eigenschaften hat.

2.4 Einfluss von Ruß auf die Stabilität der Atmosphäre

Da Rußpartikel das Sonnenlicht absorbieren und dabei ihre Umgebung erwärmen, verändert sich auch die Schichtungsstabilität der Atmosphäre. Durch den Vergleich der Temperaturänderung eines Luftpakets beim Auf- bzw. Absteigen mit seiner Umgebungstemperatur kann man auf die Schichtung der Atmosphäre schließen. Es wird zwischen einer stabilen, labilen oder neutralen Schichtung unterschieden.

Eine ausführliche Herleitung der Stabilitätskriterien befindet sich in Pichler (1997). Für ungesättigte Luft gelten folgende Stabilitätskriterien:

$$\frac{\partial \theta}{\partial z} > 0 \text{ oder } N^2 > 0 \text{ oder } \Gamma > \gamma \quad \text{stabile Schichtung} \quad (2.1)$$

$$\frac{\partial \theta}{\partial z} = 0 \text{ oder } N^2 = 0 \text{ oder } \Gamma = \gamma \quad \text{indifferente Schichtung} \quad (2.2)$$

$$\frac{\partial \theta}{\partial z} < 0 \text{ oder } N^2 < 0 \text{ oder } \Gamma < \gamma \quad \text{labile Schichtung,} \quad (2.3)$$

mit θ als potentielle Temperatur, N als Brunt-Väisälä-Frequenz (ohne Sättigung), Γ als trockenadiabatischer Temperaturgradient und γ als Temperaturgradient der Umgebungsluft.

Bei einer stabilen Schichtung ist das Luftpaket beim Aufsteigen kälter als seine Umgebung und kehrt deshalb in seine Ausgangslage zurück.

Bei einer labilen Schichtung ist das Luftpaket beim Aufsteigen wärmer als seine Umgebung und steigt weiter, bis es eine stabile Schichtung erreicht. Ist die Umgebungstemperatur gleich der Temperatur des aufsteigenden Teilchens, handelt es sich um eine neutrale Schichtung.

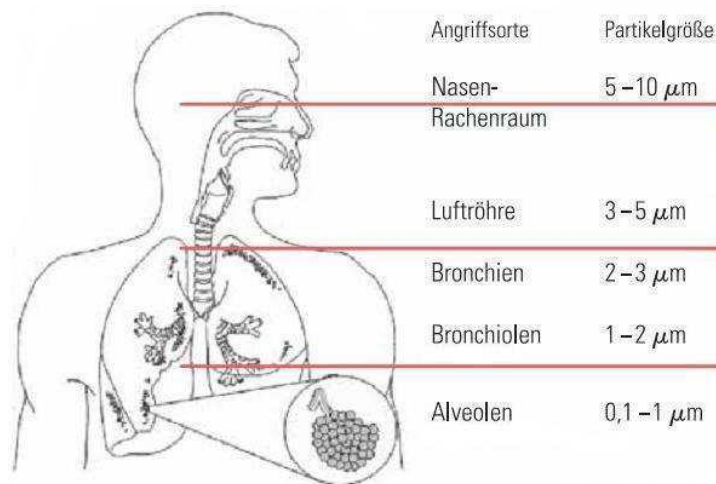


Abb. 2.6: *Lungengängigkeit von Aerosole in Abhängigkeit der Durchmesser nach StMUGV (2005).*

In dieser Arbeit ist die Änderung der Stabilität der Atmosphäre anhand der Rußkonzentrationen von Interesse. Wichtig dabei ist die Höhenlage der Rußschicht. Eine bodennahe Rußschicht führt aufgrund der Absorption von solarer Strahlung an den Partikeln zu einer Erhöhung der Temperatur in der bodennahen Schicht. In einer abgehobenen Rußschicht führt die Absorption der solaren Strahlung innerhalb der Rußschicht ebenfalls zu einer Erhöhung der Temperatur. Hier kommt jedoch weniger Strahlung durch diese Rußschicht, was zu einer Reduktion der Temperatur an der Erdoberfläche und innerhalb der Grenzschicht führt. Aufgrund des Temperaturrückgangs verringert sich die Grenzschichthöhe. Durch die Erhöhung der Temperatur innerhalb der Rußschicht wird die thermische Schichtung am Unterrand der Rußschicht stabiler und am Oberrand instabiler.

2.5 Feinstaubbelastung

Als Feinstaub (engl. particulate matter, PM) oder Schwebstaub werden Partikel in der Luft bezeichnet, welche nicht sofort zu Boden sinken (Umweltbundesamt, 2009). Es handelt sich also um kleinere Partikel (einatembare Teil der Aerosole), welche mit dem bloßen Auge nicht erkennbar sind. Die Definition des Feinstaubes geht auf den im Jahre 1987 eingeführten PM-Standard (National Air Quality Standard for Particulate Matter) der US-Umweltbehörde EPA (Environmental Protection Agency) zurück.

Feinstaub wird nach dem aerodynamischen Durchmesser unterteilt. Als Gesamtschwebstaub (engl. total suspended particulate matter, TSP) werden Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner als etwa 60 μm bezeichnet. Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner als 10 μm nennt man PM_{10} . Als $\text{PM}_{2,5}$ versteht man alle Partikel mit einem aerodynamischen

Durchmesser kleiner als 2,5 µm. Haben die Partikel einen aerodynamischen Durchmesser kleiner als 0,1 µm werden sie als ultrafeine Partikel bezeichnet.

Feinstaub kann mit der Luftströmung über größere Entfernung transportiert werden. Seine Quellen sind vor allem der Verkehr, Industrie, Landwirtschaft, private und gewerbliche Heizungsanlagen und der Umschlag staubender Güter (Umweltbundesamt, 2009). Um der Feinstaubbelastung in Europa entgegen zu wirken gilt seit dem 1. Januar 2005, dass weder der Tagesmittelwert für PM₁₀ die Grenze von 50 µg/m³ öfter als 35 Tage im Kalenderjahr, noch der Jahresmittelwert von 40 µg/m³ überschritten werden darf. Seit dem 11. Juni 2010 gilt für PM_{2,5} ein vorerst anzustrebender Jahresmittelgrenzwert von 25 µg/m³, welcher aber erst ab 2015 verbindlich in Europa gelten soll. Damit lokal die Grenzwerte eingehalten werden können, werden zum Beispiel Partikelfilter für Dieselfahrzeuge und Umweltzonen eingeführt.

Besonders an Messstationen an verkehrsreichen Straßen wird dieser Grenzwert immer wieder überschritten. Die hohen Feinstaubkonzentrationen haben einen erheblichen Einfluss auf die Gesundheit der Menschen. Wie hoch das Gesundheitsrisiko ist, hängt vor allem davon ab, wie tief die Partikel in den Atemweg eindringen und wie lange sie dort verweilen. Während große Partikel bereits im Rachenraum deponieren, gelangen mittelgroße Partikel bis in die Bronchien. Sehr kleine Partikel können die Atemweg-Filterssysteme ungehindert passieren und bis in die Alveolen der Lungen eindringen. Von dort können sie zum Teil auch in den Blutkreislauf gelangen und sich im Körper ausbreiten (Abb. 2.6). Dies kann neben einer entzündlichen Veränderung des Atemtrakts auch zu einer Störung von Herz und Kreislauf führen (Bayerisches Staatsministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz StMUGV, 2005).

Nicht nur kurzzeitige erhöhte Konzentrationen führen zu einer gesundheitlichen Gefährdung. Gerade langfristige, geringere Konzentrationen von Feinstaub leisten einen deutlichen Beitrag zur Schädigung der Gesundheit (Umweltbundesamt, 2009).

Kapitel 3

Numerische Simulationen mit COSMO-ART

Im Folgenden wird das verwendete Modellsystem COSMO-ART beschrieben. Danach folgt eine kurze Einführung in das Aerosolmodul MADEsoot und in die Behandlung der Strahlung in COSMO-ART. Zum Schluss werden die in dieser Arbeit verwendeten Konfigurationen, das Untersuchungsgebiet und der Untersuchungszeitraum beschrieben.

3.1 Das Modellsystem COSMO-ART

Die Simulationen in dieser Arbeit wurden mit dem Modellsystem COSMO-ART (Vogel et al., 2009) durchgeführt, welches auf dem operationellen Wettervorhersagemodell COSMO (Baldauf et al., 2011) des Deutschen Wetterdienstes (DWD) aufbaut. COSMO steht für Consortium for Small scale MOdelling. Es wurde 1999 erstmals operationell zur Wettervorhersage verwendet und war eines der ersten operationellen Wettervorhersagemodelle weltweit, das die dynamischen Grundgleichungen (Eulersche Gleichungen) ohne skalenabhängige Näherungsannahmen verwendet (Baldauf et al., 2011). Das globale Wettervorhersagemodell (GME) simuliert das Wettergeschehen auf dem ganzen Globus mit einer Maschenweite von 20 km. Regionalmodelle berechnen in einem kleineren Simulationsgebiet. Dies ermöglicht eine höhere Auflösung als in einem globalen Modell. Die Maschenweite des Regionalmodells COSMO-EU (Europa) beträgt 7 km und des Regionalmodells COSMO-DE (Deutschland) 2,8 km. Zudem gibt es die Klimaversion COSMO-CLM (COSMO model in CLimate Mode; Rockel et al., 2008). Das Modell dient Studien zur Klimaänderung und Klimafolgenforschung.

ART steht für Aerosols and Reactive Trace Gases. Dabei handelt es sich um ein vollständig online gekoppeltes Modell. Das ermöglicht die Berechnung von Wechselwirkungen zwischen Gasen und Aerosolen mit dem Zustand der Atmosphäre. Das Modell arbeitet auf kontinentaler bis regionaler Skala. Die schematische Darstellung des Modellsystems wird in Abbildung 3.1 gezeigt.

Mit dem Gasphasenmechanismus RADMKA (Regional Acid Deposition Model version KARlsruhe) werden die chemische Umwandlungen sowie die Verlust- und Quellterme reaktiver gas-

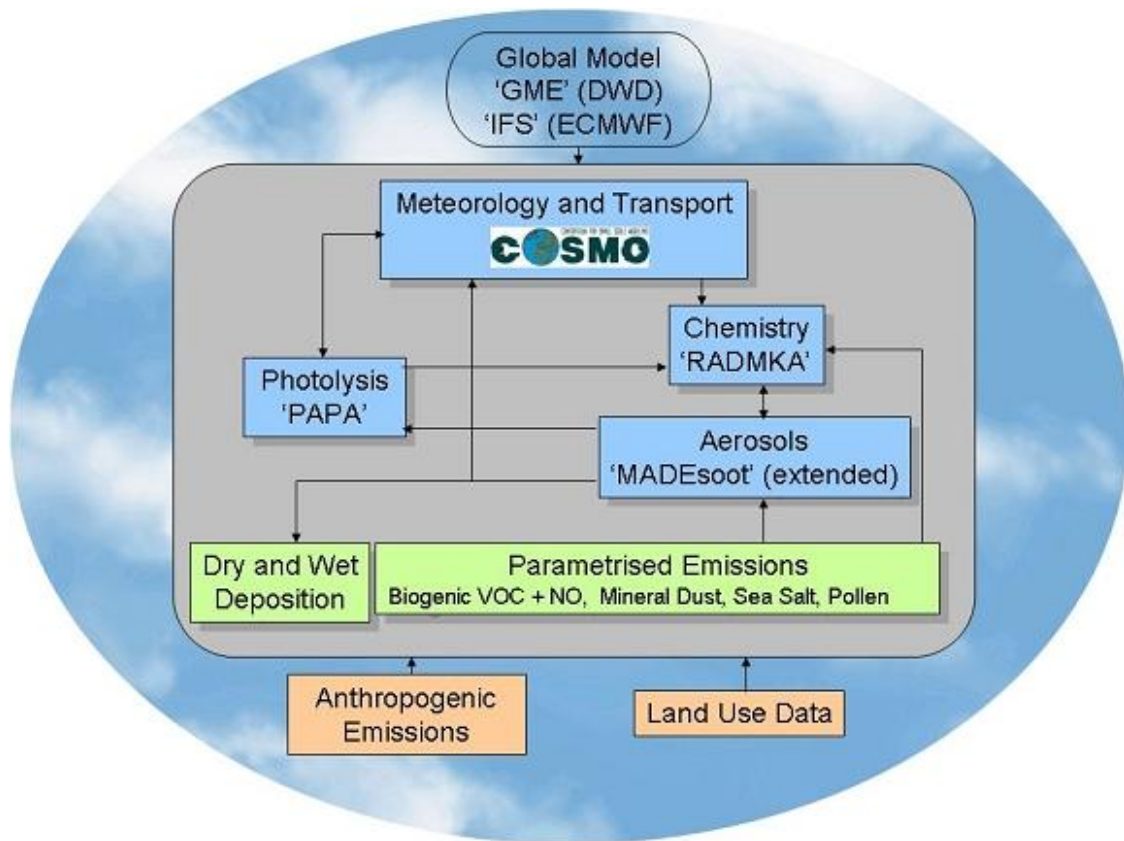


Abb. 3.1: Schematische Darstellung des Modellsystems COSMO-ART (Vogel et al., 2009).

förmiger Luftbeimengungen berechnet (siehe Vogel et al., 2009). Es handelt sich dabei um eine erweiterte Version von RADM2 (Stockwell et al., 1990). Dabei wurde der Isoprenmechanismus nach Geiger et al. (2003) integriert und im Hinblick auf die Behandlung von HONO (Vogel et al., 2003) und der heterogenen Hydrolyse von N_2O_5 (Riemer et al., 2003) erweitert. Die sekundären organischen Aerosole werden mittels eines VBS Schemas (Volatility Basis Set) simuliert (Athanasopoulou et al., 2012). Die Photolysefrequenzen werden unter Berücksichtigung der aktuellen Wolkenbedeckung mit dem Photolysemodell PAPA (Parameterization of Photolysis frequencies for Atmospheric modeling) nach Bangert (2006) bestimmt. In dem Modul MADEsoot wird die chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel und ihre Größenverteilung berechnet (Ackermann et al., 1998; Schell et al., 2001; Riemer, 2002). Dies wird im nächsten Abschnitt näher betrachtet. In dem Strahlungsschema GRAALS (General Radiative Algorithm Adapted to Linear-type Solutions; Ritter und Geleyn, 1992) wird der Zustand der jeweiligen Aerosolmoden in der Berechnung der lang- und kurzwelligen Strahlung berücksichtigt (Abschnitt 3.3). Dies ermöglicht eine Wechselwirkung zwischen den Aerosolen und den meteorologischen Variablen im Modell.

3.2 Das Aerosolmodul MADEsoot

In dem Aerosolmodul MADEsoot (Modal Aerosol Dynamics model for Europe extended by soot) wird die chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel sowie die zeitliche Änderung der Ae-

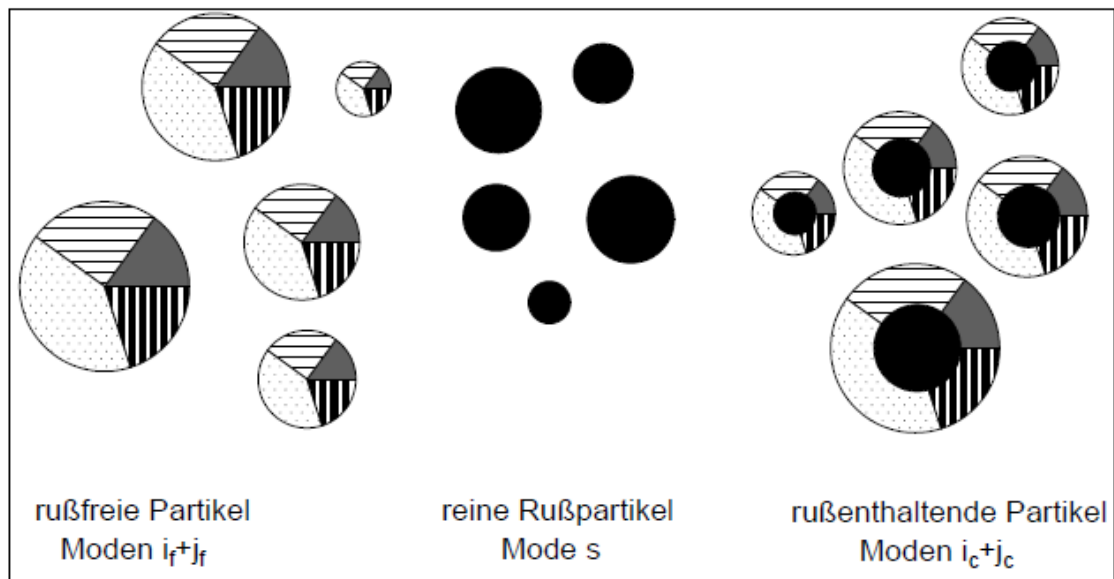


Abb. 3.2: Schematische Darstellung der Partikelsorten in MADEsoot (Riemer, 2002).

rosolpartikelgrößenverteilung mittels Lognormalverteilungen berechnet. Um die gesamte Größenverteilung wiederzugeben werden fünf Unterverteilungen betrachtet. Die Nukleationsmoden werden dabei mit dem Buchstaben i und die Akkumulationsmoden mit dem Buchstaben j bezeichnet. Außerdem gibt es noch die Grobpartikelmode c . Die zwei Moden i_f und j_f repräsentieren die rußfreien Partikel. In der Mode s wird der reine Ruß betrachtet, während die zwei Moden i_c und j_c die gealterten Rußpartikel darstellen. Diese werden durch Koagulation der reinen Rußmode mit Partikeln aus den Moden i_f und j_f gebildet oder durch Kondensation von Schwefelsäure auf den Rußpartikeln. Es handelt sich dabei um Mischpartikel. Durch die zwei oben genannten Prozesse kann Ruß von einer externen Mischung in eine interne Mischung überführt werden (siehe Absatz 2.1). Die beschriebenen Partikelsorten werden in Abbildung 3.2 schematisch dargestellt. In Tabelle 3.1 wird die chemische Zusammensetzung, der Mischungszustand und die Standardabweichung der einzelnen Moden dargestellt. Letztere wird konstant gehalten.

Neben Ruß wird in COSMO-ART auch Seesalz (Lundgren, 2006) und Mineralstaub (Stanelle, 2008) berücksichtigt. Die Seesalzemission ist abhängig von der Windgeschwindigkeit und der Wassertemperatur. Sie wird im Modell durch drei verschiedene Moden realisiert (Tabelle 3.2). In der Mode a (engl. film) sind Partikel mit einem Mediandurchmesser von $0,2\ \mu\text{m}$, in der Mode b (engl. jet) Partikel mit einem Mediandurchmesser von $2\ \mu\text{m}$ und in der Mode c (engl. spume) befinden sich Partikel mit einem Mediandurchmesser von $12\ \mu\text{m}$. Die Standardabweichung wird in allen drei Moden konstant gehalten und beträgt in Mode a 1,9, in Mode b 2,0 und in Mode c 1,7. Die Mineralstaubemission ist von der Schubspannungsgeschwindigkeit und der Oberflächenbeschaffenheit abhängig. Sie wird ebenfalls in drei Moden unterteilt (Tabelle 3.2). In Mode a befinden sich Partikel mit einem Mediandurchmesser von $1,7\ \mu\text{m}$ (Standardabweichung von 1,5). In der Mode b sind Partikel mit einem Mediandurchmesser von $6,7\ \mu\text{m}$ (Standardabweichung von 1,6). Partikel mit einem Mediandurchmesser von $14,2\ \mu\text{m}$ befinden sich in Mode c . Sie hat eine

Tabelle 3.1: Chemische Zusammensetzung, Mischungszustand und Standardabweichung der einzelnen Moden in MADEsoot nach Vogel et al. (2009).

Mode	Chemische Zusammensetzung und Mischungszustand	Standardabweichung
i _f	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , H ₂ O, SOA (intern)	1,7
i _c	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , H ₂ O, SOA, Ruß (intern)	1,7
j _f	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , H ₂ O, SOA (intern)	2,0
j _c	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , H ₂ O, SOA, Ruß (intern)	2,0
s	Ruß	1.4
c	direkte PM ₁₀ Emissionen	2.5

Tabelle 3.2: Initialer Mediandurchmesser der Massendichte und Standardabweichung für die Moden von Seesalzpartikel und Mineralstaubpartikel nach Lundgren (2006) und Stanelle (2008).

Mode	Mediandurchmesser (in µm)	Standardabweichung
Seesalz		
a	0,2	1,9
b	2	2,0
c	12	1,7
Mineralstaub		
a	1,7	1,5
b	6,7	1,6
c	14,2	1,7

Standardabweichung von 1,7.

Um mit der Behandlung von Temperatur und Luftfeuchtigkeit innerhalb vom COSMO Modell konsistent zu bleiben, werden die Anzahldichte und die Massenkonzentration der Aerosole respektive mit der Gesamtdichte der Luftmoleküle N und mit der gesamten Massenkonzentration von feuchter Luft ρ normiert (siehe Vogel et al., 2009):

$$\Psi_{0,l} = \frac{M_{0,l}}{N}, \quad (3.1)$$

$$\Psi_{n,l} = \frac{m_{n,l}}{\rho}. \quad (3.2)$$

Wobei das nullte Moment $M_{0,l}$ die Gesamtzahl der Dichte der Mode l und $m_{n,l}$ die Massenkonzentration der chemischen Komponente n des Aerosols ist.

Die Reynoldsgemittelten Bilanzgleichungen für das normierte nullte Moment der jeweiligen Moden lauten:

- für die Moden i_f und i_c :

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{0,i_f}}{\partial t} = -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,i_f} - \bar{v}_{sed,0,i_f} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,i_f}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{0,i_f}} - \bar{W}_{0,i_f} \quad (3.3a)$$

$$- \bar{C}a_{0,i_f i_f} - \bar{C}a_{0,i_f j_f} - \bar{C}a_{0,i_f i_c} - \bar{C}a_{0,i_f j_c} - \bar{C}a_{0,i_f s} + \bar{N}u_0,$$

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{0,i_c}}{\partial t} = -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,i_c} - \bar{v}_{sed,0,i_c} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,i_c}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{0,i_c}} - \bar{W}_{0,i_c} \quad (3.3b)$$

$$- \bar{C}a_{0,i_c i_c} - \bar{C}a_{0,i_c j_c} - \bar{C}a_{0,i_c j_f} + \bar{C}a_{0,i_f s},$$

- für die Moden j_f und j_c :

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{0,j_f}}{\partial t} = -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,j_f} - \bar{v}_{sed,0,j_f} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,j_f}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{0,j_f}} - \bar{W}_{0,j_f} \quad (3.3c)$$

$$- \bar{C}a_{0,j_f j_f} - \bar{C}a_{0,j_f i_c} - \bar{C}a_{0,j_f j_c} - \bar{C}a_{0,j_f s},$$

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{0,j_c}}{\partial t} = -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,j_c} - \bar{v}_{sed,0,j_c} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,j_c}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{0,j_c}} - \bar{W}_{0,j_c} \quad (3.3d)$$

$$- \bar{C}a_{0,j_c j_c} - \bar{C}a_{0,j_c i_c} + \bar{C}a_{0,j_f s},$$

- für die Rußmode s :

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{0,s}}{\partial t} = -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,s} - \bar{v}_{sed,0,s} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,s}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{0,s}} - \bar{W}_{0,s} \quad (3.3e)$$

$$- \bar{C}a_{0,s s} - \bar{C}a_{0,i_f s} - \bar{C}a_{0,j_f s} - \bar{C}a_{0,i_c s} - \bar{C}a_{0,j_c s},$$

- und die Grobpartikelmode c :

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{0,c}}{\partial t} = -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{0,c} - \bar{v}_{sed,0,c} \frac{\partial \hat{\Psi}_{0,c}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{0,c}} - \bar{W}_{0,c}. \quad (3.3f)$$

Dabei ist:

\hat{v} Windvektor,

$\bar{v}_{sed,0,l}$ die gemittelte Sedimentationsgeschwindigkeit für das nullte Moment in der Mode l ,

$\bar{N}u_{0,l}$ die gemittelte lokalzeitliche Änderung des nullten Moments infolge der Nukleation,

$F^{\Psi_{0,l}}$ der turbulente Fluss für das nullte Moment der Mode l ,

$\bar{W}_{0,l}$ Verlust von Teilchen durch Niederschlag parametrisiert nach Rinke (2008),

$\bar{C}a_{0,l_1,l_2}$ Änderung des nullten Moments infolge von Koagulation.

Das Zirkumflex beschreibt das mit der Dichte gewichtete Reynoldsmittel:

$$\hat{\Psi} = \frac{\bar{\rho} \Psi}{\bar{\rho}}. \quad (3.4)$$

Der Prozess der Kondensation taucht in den Gleichungen nicht auf, weil sich dadurch nur das dritte Moment ändert. Als untere Randbedingung für die Bilanzgleichungen fließt die trockene

Deposition mit ein. Die Emissionen von Primärpartikeln werden als weitere Randbedingungen angegeben. Der durch die nasse Deposition verursachte Partikelverlust wird additiv in den Gleichungen berücksichtigt. In den Gleichungen für das dritte Moment treten keine intramodale Koagulationsterme auf, da diese keine Veränderung der dritten Momente bewirken.

Die Reynoldsgemittelten Bilanzgleichungen für das normierte dritte Moment der jeweiligen Moden lauten:

- für die Moden i_f und i_c :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{sulf,if}}{\partial t} &= -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{sulf,if} - \bar{v}_{sed,sulf,if} \frac{\partial \hat{\Psi}_{sulf,if}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{sulf,if}} \quad (3.5a) \\ &- \bar{W}_{sulf,if} - (\bar{C}a_{3,if,jf} + \bar{C}a_{3,if,ic} + \bar{C}a_{3,if,jc} + \bar{C}a_{3,if,s}) \\ &\cdot \frac{\hat{\Psi}_{sulf,if}}{M_{3,if}} + \bar{C}o_{sulf,if} + \bar{N}u_{sulf}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{sulf,ic}}{\partial t} &= -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{sulf,ic} - \bar{v}_{sed,sulf,ic} \frac{\partial \hat{\Psi}_{sulf,ic}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{sulf,ic}} \quad (3.5b) \\ &- \bar{W}_{sulf,ic} - (\bar{C}a_{3,ic,jc} + \bar{C}a_{3,ic,jf}) \frac{\hat{\Psi}_{sulf,ic}}{M_{3,ic}} \\ &+ (\bar{C}a_{3,if,ic} + \bar{C}a_{3,if,s}) \frac{\hat{\Psi}_{sulf,if}}{M_{3,if}} + \bar{C}o_{sulf,ic}, \end{aligned}$$

- für die Moden j_f und j_c :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{sulf,jf}}{\partial t} &= -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{sulf,jf} - \bar{v}_{sed,sulf,jf} \frac{\partial \hat{\Psi}_{sulf,jf}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{sulf,jf}} \quad (3.5c) \\ &- \bar{W}_{sulf,jf} - (\bar{C}a_{3,jf,jc} + \bar{C}a_{3,jf,ic} + \bar{C}a_{3,jf,s}) \frac{\hat{\Psi}_{sulf,jf}}{M_{3,jf}} \\ &+ \bar{C}a_{3,if,jf} \frac{\hat{\Psi}_{sulf,if}}{M_{3,if}} + \bar{C}o_{sulf,jf}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{sulf,jc}}{\partial t} &= -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{sulf,jc} - \bar{v}_{sed,sulf,jc} \frac{\partial \hat{\Psi}_{sulf,jc}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{sulf,jc}} \quad (3.5d) \\ &- \bar{W}_{sulf,jc} + \bar{C}a_{3,if,jc} \frac{\hat{\Psi}_{sulf,if}}{M_{3,jf}} + (\bar{C}a_{3,ic,jc} + \bar{C}a_{3,jc,if}) \frac{\hat{\Psi}_{sulf,ic}}{M_{3,ic}} \\ &+ (\bar{C}a_{3,jf,jc} + \bar{C}a_{3,jf,s} + \bar{C}a_{3,jf,ic}) \frac{\hat{\Psi}_{sulf,jf}}{M_{3,jf}} + \bar{C}o_{sulf,jc}, \end{aligned}$$

- für die Ruß enthaltenden Moden i_c und j_c :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{s,ic}}{\partial t} &= -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{s,ic} - \bar{v}_{sed,s,ic} \frac{\partial \hat{\Psi}_{s,ic}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{s,ic}} - \bar{W}_{s,ic} \\ &+ (\bar{C}a_{3,s,if} + \bar{C}a_{3,s,ic}) \frac{\hat{\Psi}_{s,s}}{M_{3,s}} - (\bar{C}a_{3,ic,jc} + \bar{C}a_{3,ic,jf}) \frac{\hat{\Psi}_{s,ic}}{M_{3,ic}}, \end{aligned} \quad (3.5e)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{s,jc}}{\partial t} &= -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{s,jc} - \bar{v}_{sed,s,ic} \frac{\partial \hat{\Psi}_{s,jc}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{s,jc}} - \bar{W}_{s,jc} \\ &+ (\bar{C}a_{3,s,jf} + \bar{C}a_{3,s,jc}) \frac{\hat{\Psi}_{s,s}}{M_{3,s}} - (\bar{C}a_{3,ic,jc} + \bar{C}a_{3,ic,jf}) \frac{\hat{\Psi}_{s,ic}}{M_{3,ic}}, \end{aligned} \quad (3.5f)$$

- für die reine Rußmoden s:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\Psi}_{s,s}}{\partial t} &= -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{s,s} - \bar{v}_{sed,s,s} \frac{\partial \hat{\Psi}_{s,s}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{s,s}} - \bar{W}_{s,s} \\ &- (\bar{C}a_{3,s,if} + \bar{C}a_{3,s,jf} + \bar{C}a_{3,s,ic} + \bar{C}a_{3,s,jc}) \frac{\hat{\Psi}_{s,ic}}{M_{3,s}}, \end{aligned} \quad (3.5g)$$

- und die Grobpartikelmode c:

$$\frac{\partial \hat{\Psi}_{c,c}}{\partial t} = -\hat{v} \cdot \nabla \hat{\Psi}_{c,c} - \bar{v}_{sed,c,c} \frac{\partial \hat{\Psi}_{c,c}}{\partial z} + \frac{1}{\bar{\rho}} \nabla \cdot F^{\Psi_{c,c}} - \bar{W}_{c,c}. \quad (3.5h)$$

Dabei ist:

$M_{3,l}$	dritte Moment der Mode l,
$\bar{v}_{sed,n,l}$	die gemittelte Sedimentationsgeschwindigkeit in Bezug auf Masse der Mode l,
$\bar{N}u_{sulf}$	die gemittelte lokalzeitliche Änderung des nullten Moments infolge der Nukleation,
$F^{\Psi_{3,l}}$	der turbulente Fluss für die normalisierte Massenkonzentration der Mode l,
$\bar{W}_{n,l}$	Verlust von Teilchen durch Niederschlag parametrisiert nach Rinke (2008),
$\bar{C}a_{3,l_1,l_2}$	Änderung des nullten Moments infolge von Koagulation,
$\bar{C}o_{sulf,l}$	Kondensationsverlust, oder Gewinn von Masse.

Die turbulenten Flüsse $F^{\Psi_{n,l}}$,

$$F^{\Psi_{n,l}} = -\overline{\rho v'' \Psi''_{n,l}}, \quad (3.6)$$

werden in Analogie zu den turbulenten Flüssen in der Diffusionsgleichung und in der Bilanzgleichung für den Wasserdampf parametrisiert.

Für eine detaillierte Beschreibung der Behandlung der Aerosolchemie und der Formulierung der einzelnen aerosoldynamischen Prozesse wie Kondensation, Koagulation, Nukleation und Sedimentation im Modul MADEsoot sei an dieser Stelle auf die Arbeit von Riemer (2002) verwiesen.

3.3 Behandlung der Strahlung in COSMO-ART

Kurzwellige und langwellige Strahlung spielen in der Atmosphäre eine wichtige Rolle, wie in Abschnitt 2.2 beschrieben. Die Divergenz der Strahlungsflüsse an der Oberfläche sind wichtige Komponenten der Energiebilanz und somit auch für die zeitliche Variation der Oberflächentemperatur.

Für die vertikalen Profile der Strahlungsflüsse wird im COSMO-Modell das Strahlungsschema GRAALS nach Ritter und Geleyn (1992) verwendet. Die vertikalen Profile der kurz- und langwelligen Strahlungsflüsse hängen von Temperatur, Druck, Wasserkonzentration, Ozon, Kohlenstoffdioxid und der Größenverteilung der Aerosolpartikel ab. Um eine vollständig gekoppelte Simulation mit COSMO-ART durchführen zu können, wurden nach Vogel et al. (2009) die optischen Eigenschaften der Aerosole für jedes der acht Spektralbänder des Strahlungsschemas GRAALS zu jedem Zeitschritt und in jedem Gitterpunkt berechnet (Tab 3.3). Dabei sind die optischen Eigenschaften der Aerosole abhängig von dem Extinktionskoeffizient, der Einfachstreueralbedo und dem Asymmetriefaktor, welche wiederum von der chemischen Zusammensetzung der Aerosole, ihrer Größenverteilung, sowie ihrem Ruß- und Wassergehalt abhängen. Um die Mie-Berechnung durchzuführen, wurde ein Parametrisierungsschema für die optischen Eigenschaften entwickelt, welches auf dem Schema von Bohren und Huffman (1998) und der vorher berechneten Aerosolverteilung basiert (Vogel et al., 2009). Um die Aerosolverteilung zu berechnen wurde in COSMO-ART die Rückkopplung zwischen den Aerosolen und der Strahlung ausgeschaltet. Für jeden Gitterpunkt wurde die Mie-Berechnung durchgeführt und als Funktion der feuchten Aerosolmasse oder als Funktion des Massenanteils von Ruß dargestellt. In Tabelle 3.3 sind die gefundenen Parameter für jedes Spektralband angegeben.

Der Extinktionskoeffizient b_k für eine bestimmte Wellenlänge wird dabei folgendermaßen berechnet:

$$b_k = \sum_l 10^{-6} \cdot \tilde{b}_{k,l} \cdot m_l \quad (3.7)$$

mit k die Indizierung für das Wellenlängenintervall, l für die Moden (i_f , j_f , i_c , j_c und s), $\tilde{b}_{k,l}$ für den vorher berechneten Extinktionskoeffizient aus Tabelle 3.3 und m_l für die nasse Aerosolmasse der Mode l in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Die Einfachstreueralbedo w_k wird für kurzwellige und langwellige Strahlung unterschiedlich berechnet. Für die Wellenlängenintervalle 1-3 gilt:

$$\begin{aligned} w_k &= \tilde{w}_{k,i} \cdot f_{if} + \tilde{w}_{k,j} \cdot f_{jf} + \tilde{w}_{k,s} \cdot f_s + (2,6278 \cdot s f_{ic} + 1)^{-1,8048} \cdot f_{ic} \\ &+ (2,0611 \cdot s f_{jc} + 1)^{-1,4309} \cdot f_{jc} \end{aligned} \quad (3.8)$$

und für die Wellenlängenintervalle 4-8:

$$w_k = \sum_l \tilde{w}_{k,l} \cdot f_l. \quad (3.9)$$

Der Asymmetriefaktor g_k für eine bestimmte Wellenlänge wird berechnet mit:

$$g_k = \sum_l \tilde{g}_{k,l} \cdot f_l. \quad (3.10)$$

Wobei $s_{f_{ic}}$ und $s_{f_{jc}}$ die Rußanteile der Moden i_c und j_c sind und f_l der Massenanteil der jeweiligen Mode l bezogen auf die gesamte Aerosolmasse einschließlich Wasser ist.

Für die Simulationen ohne Ruß (siehe Abschnitt 3.4) wurde die Strahlungsroutine so angepasst, dass die gemischten Moden vom Strahlungsschema als reine Moden gesehen werden (Tab. 3.4). Da keine Rußemissionen vorhanden sind, sind die Konzentrationen extrem niedrig, weshalb die reine Mode als nicht existent angesehen werden konnte und somit nicht in ihrer Strahlungseigenschaft angepasst werden musste.

3.4 Modellgebiet und verwendete Modellkonfiguration

In dieser Arbeit wurde die Version cosmo4.18_art1.3 des Modellsystem COSMO-ART verwendet. Das Modellgebiet ist identisch mit dem Gebiet des operationellen Modells COSMO-EU³. Es umfasst ganz Europa (siehe Abb. 3.3). Hier wurde die Maschenweite auf 0.125° hochgesetzt (ungefähr 14 km) mit 332 x 328 Gitterpunkten. Die Atmosphäre wird vom Boden bis in etwa 24 km Höhe mit 40 Schichten aufgelöst, wobei die erste Schicht eine Höhe von etwa 9,8 m hat. Bei jedem Zeitschritt von 150 s werden die Variablen auf 4,4 Millionen Gitterpunkten berechnet. Da es sich bei einem Regionalmodell um ein im Raum begrenztes Gebiet handelt, benötigt das Modell Informationen zum globalen Zustand der Atmosphäre an den Rändern des Gebiets. Hier wurden dem Regionalmodell alle 6 Stunden die Reanalysen (ERA-interim; Dee et al., 2011) des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersagen (ECMWF) zugeführt. Diese stellen die Beobachtungsdaten auf einem spektralen T255 Gitter mit einer Maschenweite von etwa 60 km dar und werden mit Hilfe des Ansatzes von Davies (1976) auf das regionale Gitter angepasst. Ebenso wurden die anthropogenen Emissionen vorgeschrieben. Diese basieren auf Daten, welche im Rahmen des Projekts MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate; Denier van der Gon et al., 2010; Kuenen et al., 2011) vom TNO (Niederlande) entwickelt wurden. Dabei wird sowohl der Tagesgang als auch der wöchentliche Zyklus berücksichtigt. Als Grundlage für die Kohlenstoffemissionen aus Waldbränden dienen die Messungen des Spektroradiometers MODIS (MODerate resolution Imagery Spectroradiometer). Aus ihnen wird eine Datenbank

³http://www.dwd.de/bvbw/appmanager/bvbw/dwdwwwDesktop?_nfpb=true&_pageLabel=_dwdwww_spezielle_nutzer_hobbymeteorologen_vorhersage&T43402627281174304668504gsbDocumentPath=Navigation%2FForschung%2FAnalyse__Modellierung%2FFU__NM__LME__node.html%3F__nnn%3Dtrue (Stand 26.10.2012)

Tabelle 3.3: Verwendete Spektralbereiche der Strahlungsroutine nach Ritter und Geleyn (1992) und jeweilige Parameter aus der Mie-Berechnung nach Vogel et al. (2009).

	Intervall							
	1	2	3	4	5	6	7	8
Spektralbereich in μm	1,53 - 4,64	0,7 - 1,53	0,25 - 0,7	20,0 - 104,5	12,5 - 20,0	8,33 - 9,01 10,31 - 12,5	9,01 - 10,31	4,64 - 8,33
Extinktionskoeffizient	if jf s ic jc	1,5000 2,0000 6,0000 2,5000 2,0000	3,0000 4,0000 9,0000 5,0000 4,0000	0,0522 0,0638 0,6750 0,0638 0,6750	0,1195 0,1156 0,1142 0,1156 0,1142	0,1704 0,2254 0,2269 0,2254 0,2269	0,3803 0,2970 0,2669 0,2970 0,2669	0,2160 0,2453 0,2423 0,2453 0,2423
Einfachstreuabdo	if jf s ic jc	0,9800 0,9800 0,1834 0,1834 0,1834	0,9999 0,9999 0,1834 0,1834 0,1834	0,0751 0,1671 0,1932 0,1671 0,1932	0,0937 0,2095 0,2406 0,2095 0,2406	0,4130 0,5736 0,5876 0,5736 0,5876	0,3444 0,4751 0,4751 0,4751 0,4751	0,5442 0,6318 0,6389 0,6318 0,6389
Asymmetriefaktor	if jf s ic jc	0,6000 0,6000 0,6000 0,6000 0,6000	0,6500 0,6500 0,6500 0,6500 0,6500	0,0815 0,1132 0,1239 0,1132 0,1239	0,1228 0,1909 0,2158 0,1909 0,2158	0,3952 0,4894 0,5112 0,4894 0,5112	0,3156 0,4442 0,4897 0,4442 0,4897	0,6574 0,7683 0,7848 0,7683 0,7848

Tabella 3.4: Verwendete Spektralbereiche der Strahlungsroutine nach Ritter und Geleyn (1992) und jeweilige Parameter aus der Mie-Berechnung für die Simulationen ohne Ruß nach Vogel et al. (2009).

	Mode		Intervall							
	1	2	3	4	5	6	7	8		
Spektralbereich in µm	1,53 - 4,64	0,7 - 1,53	0,25 - 0,7	20,0 - 104,5	12,5 - 20,0	8,33 - 9,01 10,31 - 12,5	9,01 - 10,31	4,64 - 8,33		
Extinktionskoeffizient	if	0,6000	1,5000	3,0000	0,0522	0,1195	0,1704	0,3803	0,2160	
	jf	0,8000	2,0000	4,0000	0,0638	0,1156	0,2254	0,2970	0,2453	
	s	2,0000	6,0000	9,0000	0,6750	0,1142	0,2269	0,2669	0,2423	
	ie	0,6000	1,5000	3,0000	0,0522	0,1195	0,1704	0,3803	0,2160	
Einfachstreuabedo	je	0,8000	2,0000	4,0000	0,0638	0,1156	0,2254	0,2970	0,2453	
	if	0,9000	0,9800	0,9999	0,0751	0,0937	0,4130	0,3444	0,5442	
	jf	0,9000	0,9800	0,9999	0,1671	0,2095	0,5736	0,4751	0,6318	
	s	0,1834	0,1834	0,1834	0,1932	0,2406	0,5876	0,4751	0,6389	
Asymmetriefaktor	ie	0,9000	0,9800	0,9999	0,0751	0,0937	0,4130	0,3444	0,5442	
	je	0,9000	0,9800	0,9999	0,1671	0,2095	0,5736	0,4751	0,6318	
	if	0,5000	0,6000	0,6500	0,0815	0,1228	0,3952	0,3156	0,6574	
	jf	0,5000	0,6000	0,6500	0,1132	0,1909	0,4894	0,4442	0,7683	
Asymmetriefaktor	s	0,5000	0,6000	0,6500	0,1239	0,2158	0,5112	0,4897	0,7848	
	ie	0,5000	0,6000	0,6500	0,0815	0,1228	0,3952	0,3156	0,6574	
	je	0,5000	0,6000	0,6500	0,1132	0,1909	0,4894	0,4442	0,7683	

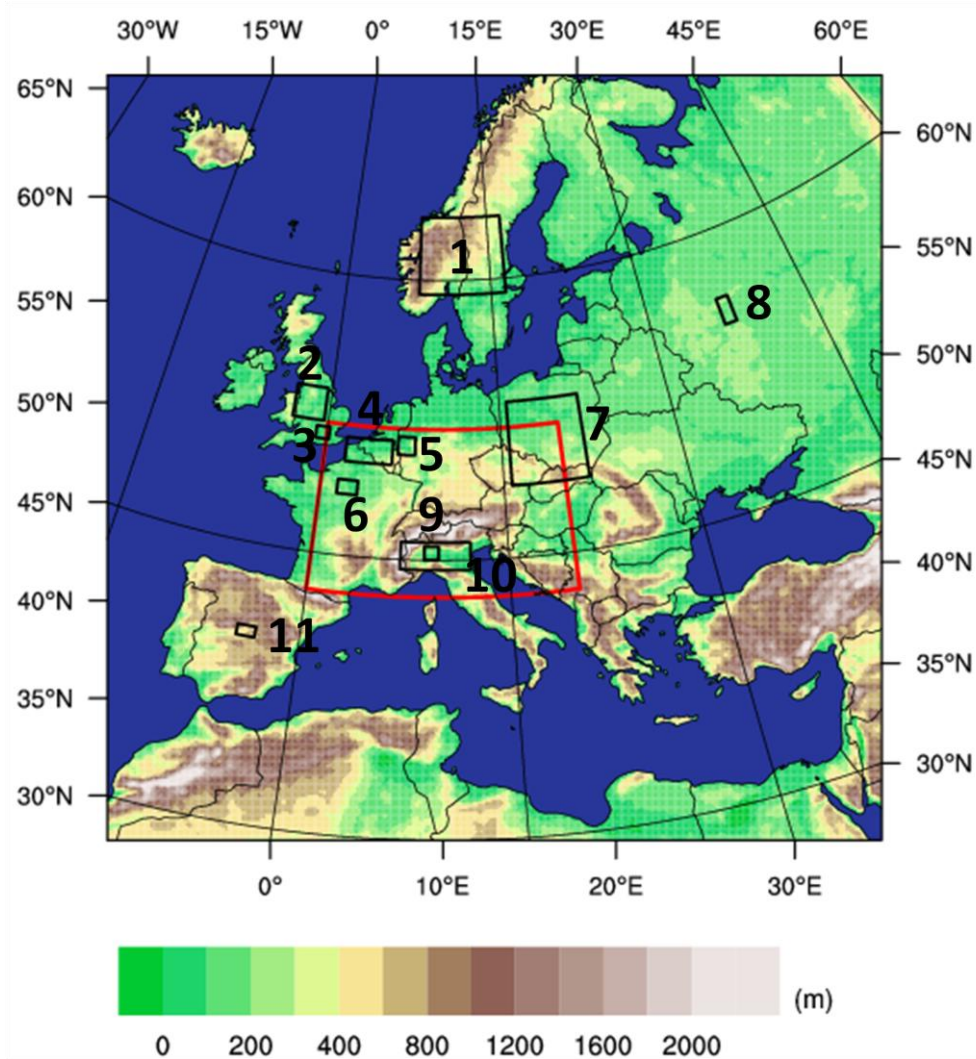


Abb. 3.3: *Topographie des Modellgebiets. Das Untersuchungsgebiet ist rot umrandet. Schwarz umrandet sind die in Abschnitt 4.1 verwendete Gebiete und Städte.*

für Waldbrandemissionen (Global Fire Emission Database) erstellt (Giglio et al., 2006). Mit den Emissionswerten für Kohlenstoffmonoxid, Kohlenstoffdioxid und Kohlenstoff werden die Waldbrandemissionen im Modell COSMO-ART implementiert (Rieger, 2010).

Während der Hitzewelle 2003 war der Boden stark ausgetrocknet (siehe Abschnitt 3.5). Die Temperatur in Bodennähe ist durch den latenten Wärmefluss stark mit der Bodenfeuchte gekoppelt (Black et al., 2004). Um dies richtig darzustellen, lief die Klimaversion COSMO-CLM ab 1. Januar 2002 ohne Datenassimilation. Dies ist die sogenannte Einschwingphase. Um Rechenzeit zu sparen, wurden in der Einschwingphase lediglich Simulationen mit dem COSMO Modell durchgeführt. Ab dem 15. Juni wurde zusätzlich zum weiterlaufenden COSMO Lauf ein Lauf mit COSMO-ART gestartet, mit denselben Startbedingungen für die meteorologischen Variablen. Das heißt, Aerosole und deren Wechselwirkungen mit der Atmosphäre wurden ab diesem Zeitpunkt berücksichtigt. Beide Läufe endeten am 20. August 2003.

Die folgende Auswertung bezieht sich meistens auf das rot umrandete Gebiet in Abbildung 3.3 (linke untere Ecke; lu: N 43 °, O 0 °, rechte obere Ecke; ro: N 52°, O 20°). Dieses wird von nun an Untersuchungsgebiet genannt. Das Gebiet wurde gewählt, da die Hitzewelle hier am ausgeprägtesten war (Black et al., 2004). Im Abschnitt 4.1 werden zudem noch kleinere Gebiete, beziehungsweise Städte betrachtet. Diese Gebiete wurden aufgrund ihrer hohen Rußemissionen ausgesucht. In Abbildung 3.3 sind die einzelnen Gebiete abgebildet. Die Gebiete werden folgendermaßen genannt:

1. Gebiet Norwegen (lu: N 59° 22.79, O 7° 55.87, ro: N 63° 35.66, O 16° 51.88)
2. Gebiet England (lu: N 52° 05.68, O -3° 16.27, ro: N 53° 81.74, O -0° 39.36)
3. Gebiet London (lu: N 51° 09.94, O -0° 93.72, ro: N 51° 75.62, O 0° 22.09)
4. Gebiet Benelux-Länder (lu: N 50° 04.62, O 1° 78.15, ro: N 51° 34.33, O 5° 71.53)
5. Gebiet Köln (lu: N 50° 60.13, O 6° 17.92, ro: N 51° 56.43, O 7° 63.64)
6. Gebiet Paris (lu: N 48° 28.48, O 1° 39.92, ro: N 49° 05.15, O 3° 04.24)
7. Gebiet Polen (lu: N 48° 86.68, O 15° 65.23, ro: N 53° 37.25, O 22° 02.14)
8. Gebiet Moskau (lu: N 54° 92.50, O 36° 76.39, ro: N 56° 37.22, O 37° 89.84)
9. Gebiet Mailand (lu: N 44° 99.94, O 8° 57.10, ro: N 45° 74.05, O 9° 64.78)
10. Gebiet Po-Ebene (lu: N 44° 47.90, O 6° 77.08, ro: N 45° 95.14, O 12° 09.29)
11. Gebiet Madrid (lu: N 39° 98.83, O -4° 38.88, ro: N 40° 56.64, O -3° 09.36)

Die Auswertung bezieht sich immer auf die schwarz umrandete Fläche des jeweiligen Gebiets. Das Gebiet Norwegen wurde als Vergleichsgebiet ausgesucht. Es hat die gleiche Größe wie das Gebiet Polen.

Die Randdaten der Spurenstoffe stammen aus dem globalen Chemie-Transportmodell MOZART (Model for OZone And Related chemical Tracers; Emmons et al., 2010). Sie werden dem Modell alle 6 Stunden bereitgestellt. Die Aerosole werden an den Rändern des Modells auf null relaxiert. Somit können keine Aerosole in das Modellgebiet hinein transportiert werden.

In dieser Arbeit werden verschiedene Simulationen betrachtet. Zunächst wurde nur ein COSMO-Lauf ohne die zusätzliche Routine von ART (Referenzlauf) durchgeführt. Dann eine COSMO-ART Simulation in welcher auch Ruß betrachtet wurde (COSMO-ART_Ruß_WW). Um Rückschlüsse auf den Einfluss von Ruß ziehen zu können wurde eine Simulationen ohne die Emissionen von Rußpartikel (COSMO-ART_oRuß_WW) gemacht. Im Modell existieren weiterhin die gemischten Moden. Da in dem Lauf COSMO-ART_oRuß_WW kein Ruß vorhanden ist, wurde

die Strahlungsroutine so angepasst, dass in diesem Lauf die gemischten Moden von der Strahlungsroutine als reine Moden angesehen werden (Tab. 3.3 und Tab. 3.4). Nun stellte sich die Frage, ob einige Unterschiede durch die Meteorologie oder durch die Wechselwirkung zwischen den Aerosolen und der Chemie hervorgerufen werden. Um dies zu beantworten wurde eine Simulation ohne die Betrachtung von Ruß und ohne Wechselwirkung zwischen Aerosolen und der Strahlung gemacht (COSMO-ART_oRuß_oWW). Diese Simulation hat somit die gleiche meteorologische Bedingung wie die reine COSMO Simulation. Durch den Vergleich der vier Simulationen können Rückschlüsse auf den Einfluss von Ruß auf Temperatur, Strahlung und Schichtung der Atmosphäre gezogen werden. In Tabelle 3.5 sind die verschiedenen Läufe noch einmal zusammengefasst.

Tabelle 3.5: Zusammenfassung der in dieser Arbeit verwendeten Modellsimulationen mit Abkürzungen.

Abkürzung der Simulation	Bedeutung
COSMO	Referenzlauf
COSMO-ART_Ruß_WW	COSMO-ART Lauf mit Berücksichtigung von Ruß
COSMO-ART_oRuß_WW	COSMO-ART Lauf ohne Berücksichtigung von Ruß
COSMO-ART_oRuß_oWW	COSMO-ART Lauf ohne Berücksichtigung von Ruß und ohne Wechselwirkung der Aerosole mit der Strahlung

3.5 Synoptische Analyse des Sommers 2003

Der Sommer 2003 zeichnete sich durch eine lange Andauer von Hochdrucklagen aus. West- und Mitteleuropa lagen in der ersten Sommerhälfte wiederholt unter dem Einfluss stabiler Hochdruckgebiete, die durch ihre Lage im Zentrum über Mittel- und Nordeuropa die Zufuhr sehr warmer Luftmassen begünstigen (Müller et al., 2003). Nach einem atlantischen Tiefausläufer Anfang Juli stellte sich am Ende des Monats erneut das Hochdruckwetter mit hohen Temperaturen und gelegentlichen Niederschlägen ein. Der Hitzewelle ging seit Frühjahr 2003 eine spürbare Trockenperiode voraus. Diese und der klare Himmel während der Sommermonate führte zu einer Austrocknung der Böden. Somit stieg durch den fehlenden latenten Wärmefluss die Temperatur in weiten Teilen Mitteleuropas auf bis zu 40 °C an (Black et al., 2004).

Besonders auffällig war die erste Augushälfte, das Ende der Hitzewelle: Ein kräftiger Langwellenkeil wölbte sich über Westeuropa auf. Dieser stellte sich durch das herrschende nordhemisphärische Wellenmuster mit 4 Wellen als sehr stabil dar. Während dieser Periode stieg die Anzahl der Todesfälle in mehreren Ländern Europas auf insgesamt 35000 Personen an (Stedman, 2004; Filleul et al., 2006).

Der Rekordsommer 2003 war in Europa sehr wahrscheinlich der heißeste Sommer seit mindestens 500 Jahren (Luterbacher et al., 2004; Neu und Thalmann, 2005). Abbildung 3.4 stellt die Temperatur in 2 m Höhe gemittelt über das grau eingefärbte Gebiet aus den Daten des Europäischen Zentrum für mittelfristige Wettervorhersagen (ECMWF) dar. Die blaue dünne Linie zeigt

die Werte für alle 6 Stunden um 00, 06, 12 und 18 GMT (Greenwich Mean Time) und die dicke blaue Linie das jeweilige Tagesmittel. Zum Vergleich ist das Tagesmittel der Temperatur von 1958 bis 2002 aus den Reanalysedaten des ECMWF (ERA-40; Simmons und Gibson, 2000) dargestellt (gestrichelte Linie). Es ist zu erkennen, dass es in Europa zwischen den Monaten Mai und August zu warm war. Besonders sticht die Hitzewelle zwischen Juni und August heraus. Während diesen Monaten erreichten die Temperaturen selbst in der Nacht die Tagesmittelwerte der Reanalysedaten. Gemittelt über jeden Monat waren im Jahr 2003 die Temperaturen im Mai und Juli um $+2^{\circ}\text{C}$, im Juni um $+4,2^{\circ}\text{C}$ und im August um $+3,8^{\circ}\text{C}$ höher als die Tagesmitteltemperaturen zwischen 1958 und 2002.

Der klare Himmel während der Hitzewelle führte auch zu einer starken photochemischen Aktivität. Diese zusammen mit der Stagnation der Luftmassen, den hohen Temperaturen und der hohen Anzahl von Busch- und Waldbränden führten zu einer erstaunlich hohen Aerosolkonzentration im betroffenen Gebiet (Hodzic et al., 2006).

Die Hitzewelle 2003 muss im aktuellen Klima als ein Extremereignis angesehen werden. Jedoch haben Schär et al. (2004) gezeigt, dass die Temperaturen unter einem hohen Treibhausgas-Emissionsszenario A2 bis zum Ende des 21. Jahrhunderts (2071-2100) durchaus denen der Hitzewelle 2003 ähneln können.

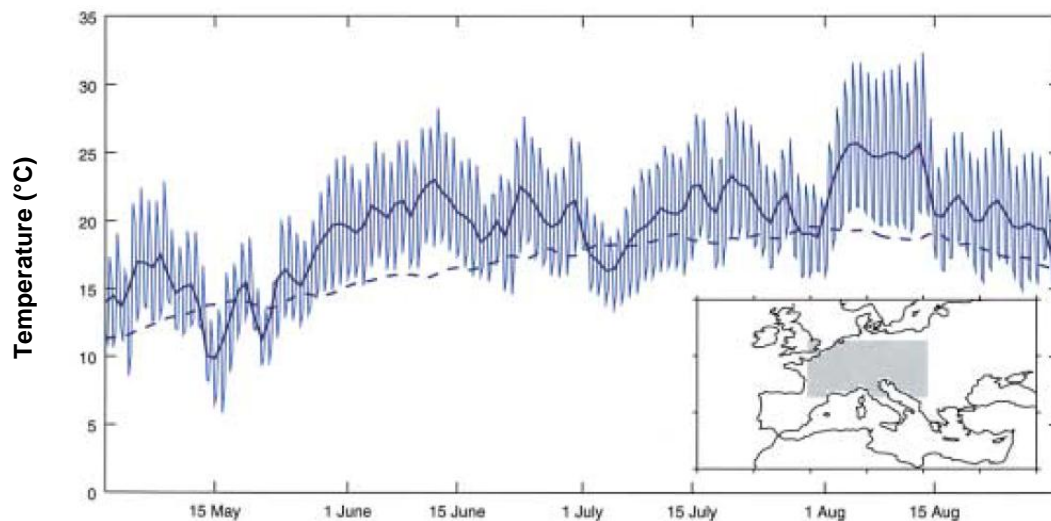


Abb. 3.4: Zeitreihe für die Temperatur in 2 m Höhe im Sommer 2003 aus dem ECMWF Datensatz. Dabei stellt die blaue dünne Linie die Werte gemessen alle 6 Stunden (00, 06, 12, 18 GMT), die dicke blaue Linie das dazugehörige Tagesmittel und die gestrichelte Linie die Tagesmitteltemperatur der ERA-40 Daten zwischen 1958 und 2002 dar (Black et al., 2004).

Kapitel 4

Einfluss von Ruß auf die Luftqualität während des Sommers 2003

Wie in Abschnitt 3.4 beschrieben, wurden drei Simulationen mit COSMO-ART für die Hitzeperiode 2003 durchgeführt (Tab. 3.5). In diesem Kapitel wird erläutert, wie sich die Luftqualität in Bezug auf das Vorhandensein von Ruß in den drei Simulationen verändert. Zuerst werden die anthropogenen Emissionen von Ruß und die Rußkonzentrationen vom Modell für Europa und für einzelne Gebiete betrachtet. Danach folgen Vergleiche der zeitlichen Verläufe einiger relevanter Spurenstoffe und Aerosole und der unterschiedlichen Feinstaubbelastungen der drei Simulationen.

4.1 Rußemissionen und Rußkonzentrationen

Abbildung 4.1 zeigt den Median über den Zeitraum vom 15. Juni 2003 bis 20. August 2003 der anthropogenen Emissionen von Ruß. In Abbildung 4.2 ist der Median über denselben Zeitraum der Rußkonzentrationen der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW dargestellt. Beide Abbildungen zeigen die unterste Modellschicht (9,8 m) für das gesamte Modellgebiet. Da die Emissionsdaten, welche auf den Daten des Projekts MACC basieren (Denier van der Gon et al., 2010; Kuenen et al., 2011), die Eingabedaten für das Modell sind, zeigen die beiden Abbildungen eine starke Ähnlichkeit auf. Deutlich zu sehen sind größere Städte mit hohen Emissionswerten wie London, Moskau, Köln, Mailand, Paris und Madrid. Aber auch etwas größere Gebiete wie die Po-Ebene, Polen, England und die Benelux-Länder stechen hervor. Die Emissionswerte erreichen im Median in diesen Gebieten einen Wert über 4 kg/h/Zelle⁴. Die Konzentrationen aus der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW erreichen in diesen Gebieten im Median Werte über 0,6 µg/m³. Zum Teil sind auch einzelne Straßen zu erkennen, so zum Beispiel um Moskau. Während in den Emissionsdaten die verschiedenen Schiffsrouten erkennbar sind, ist in den Simulationsdaten nur die

⁴Bezieht sich auf die Zellen des Modells. Die betrachteten Werte wurden interpoliert um die Eingabewerte des Modells darzustellen.

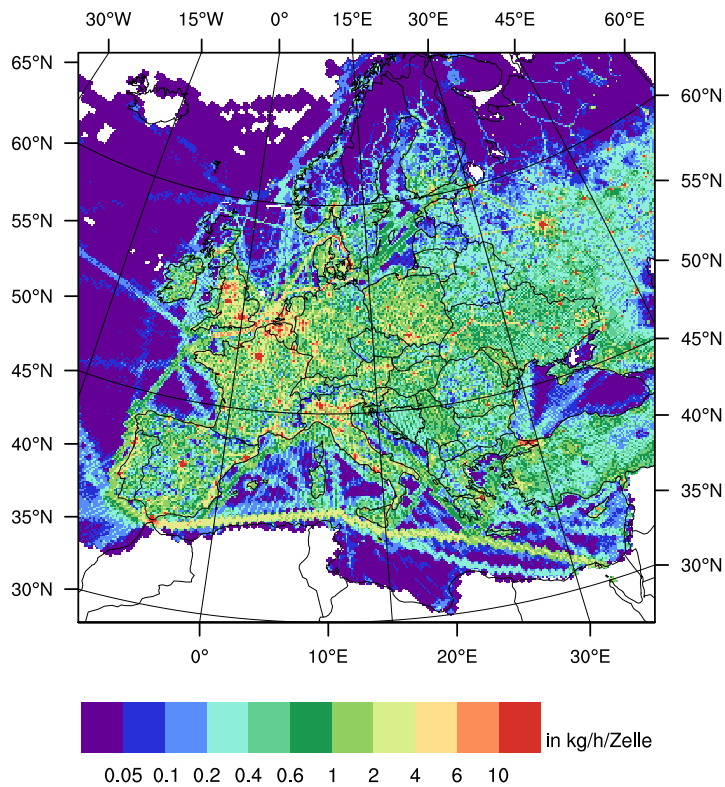


Abb. 4.1: Median über den Zeitraum vom 15.06.2003 bis 20.08.2003 der Emissionen von Ruß (kg/h/Zelle) auf der untersten Modellschicht.

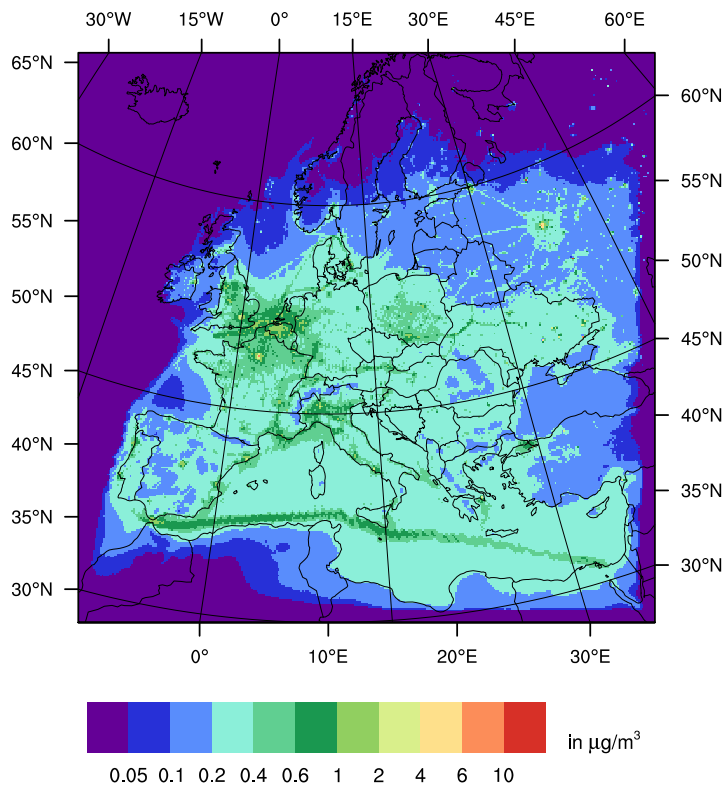


Abb. 4.2: Median über den Zeitraum von 15.06.2003 bis 20.08.2003 von Rußkonzentrationen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW auf der untersten Modellschicht.

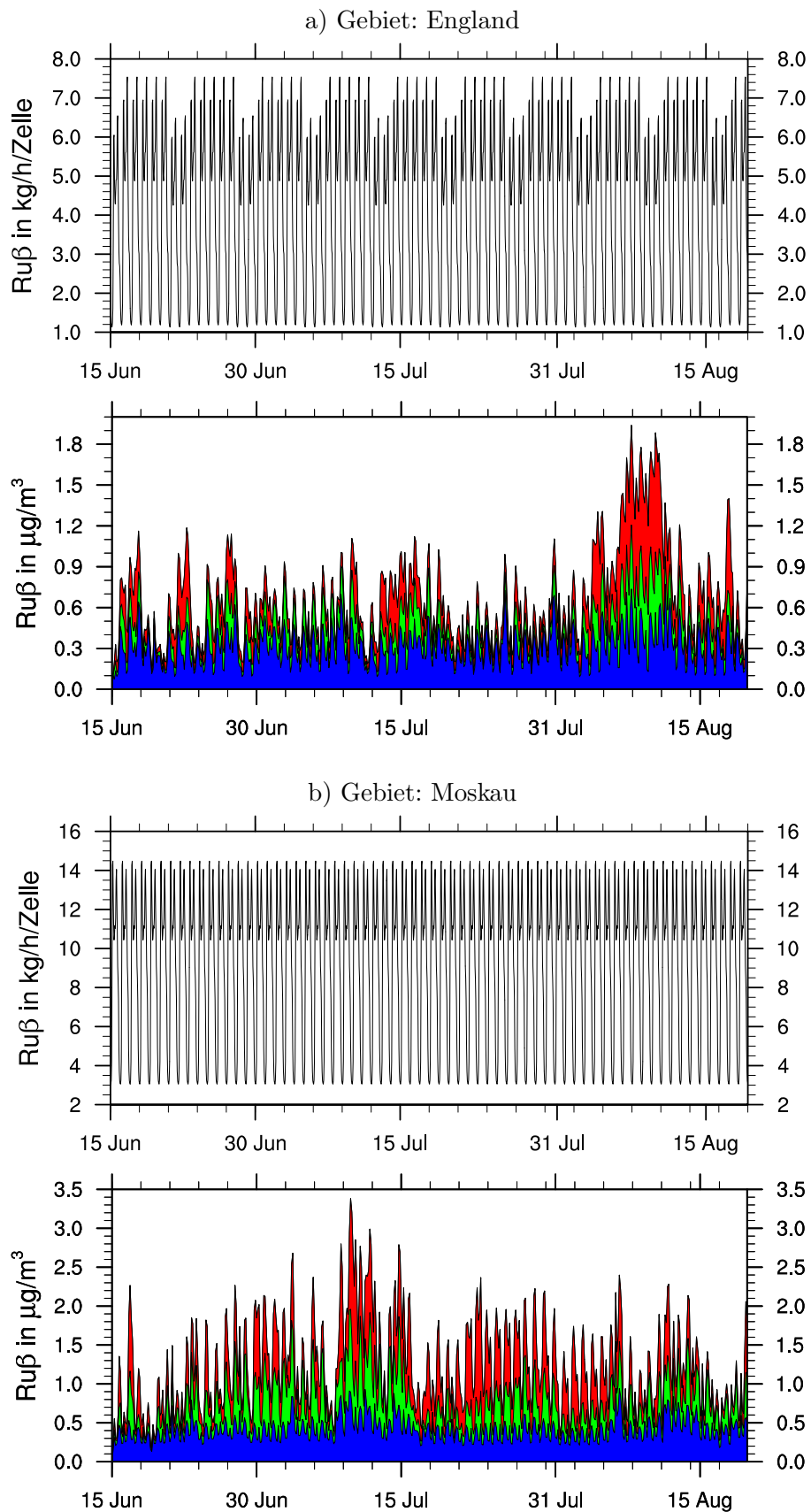


Abb. 4.3: Zeitlicher Verlauf der Emissionen von Ruß in kg/h/Zelle (oben) und der Rußkonzentrationen der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (unten) gemittelt über das jeweilige Gebiet (Abb. 3.3) auf der untersten Modellschicht. In blau ist der Anteil der Mode s, in grün der Mode i und in rot der Mode j dargestellt.

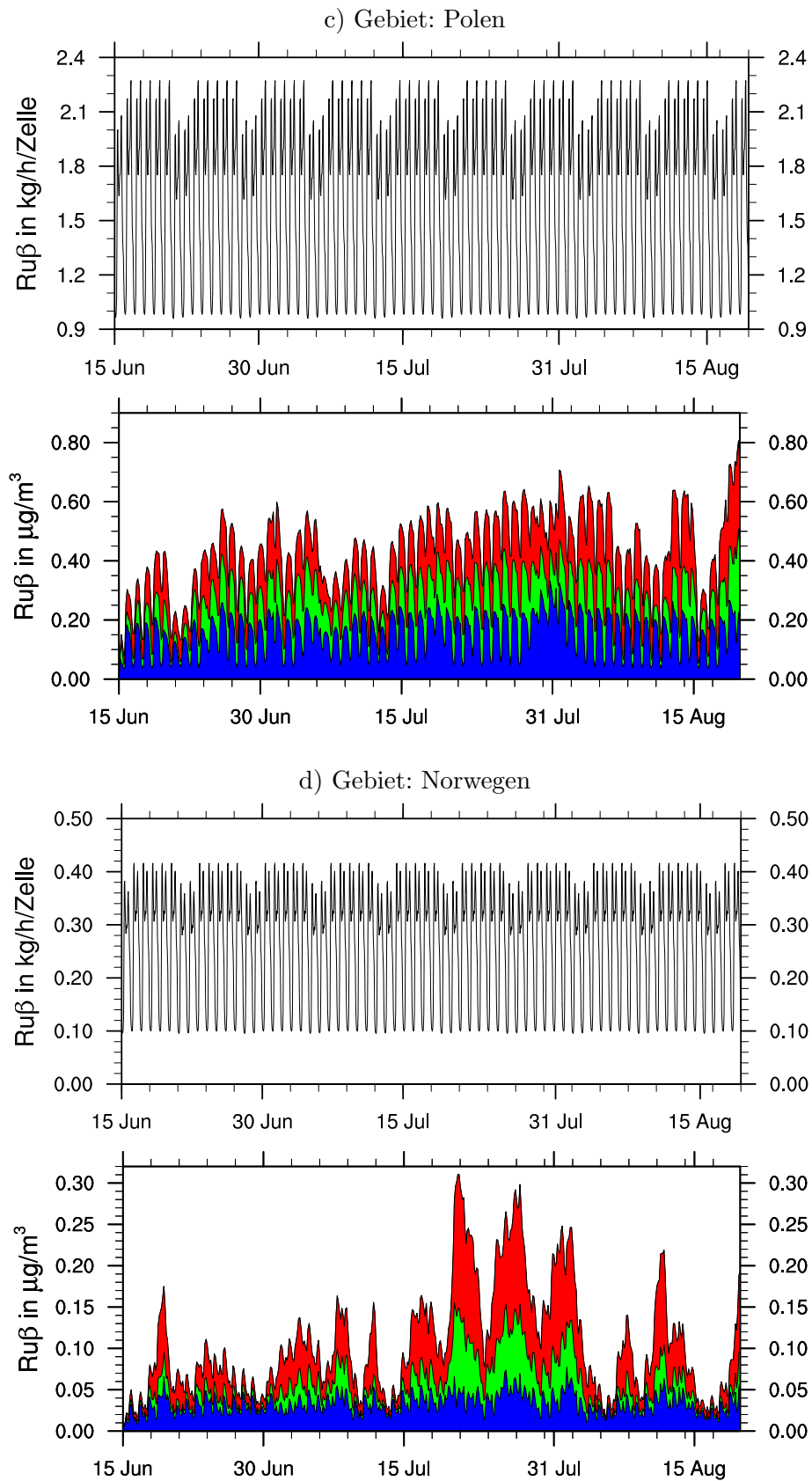


Abb. 4.4: Wie Abbildung 4.3 für weitere Gebiete.

Schiffsrouten im Mittelmeer vom Suezkanal bis zur Straße von Gibraltar hervorstechend.

In den Abbildungen 4.3 und 4.4 sind ausgewählte Gebiete mit hohen Rußemissionen zu sehen. Auf den oberen Abbildungen sind jeweils die zeitlichen Verläufe der anthropogenen Emissionen von Ruß und auf den unteren Abbildungen jeweils die zeitlichen Verläufe der Rußkonzentrationen aus der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW auf der untersten Modellschicht dargestellt. Die Abgrenzungen der einzelnen Gebiete sind in Abbildung 3.3 zu sehen. Weitere zeitliche Verläufe der Rußemissionen und Rußkonzentrationen der verschiedenen Gebiete befinden sich im Anhang A.

Im Gebiet England weisen die Emissionen einen Tagesgang zwischen 1,15 und 6,5 kg/h/Zelle am Wochenende und zwischen 1,2 und 7,6 kg/h/Zelle unter der Woche auf. Hohe Rußemissionen findet man im Sommer 2003 im Gebiet Moskau, mit Werten von 3 bis circa 14,5 kg/h/Zelle. In dem Gebiet Polen schwanken die Werte unter der Woche zwischen 1 und 2,3 kg/h/Zelle und am Wochenende zwischen 0,95 und etwa 2,1 kg/h/Zelle. Zum Vergleich wurde das Gebiet Norwegen mit sehr niedrigen Rußemissionen gewählt. Es besitzt dieselbe Größe wie das Gebiet Polen und erreicht Werte von 0,1 bis 0,38 kg/h/Zelle am Wochenende und 0,11 bis 0,42 kg/h/Zelle unter der Woche.

Die MACC Daten liefern nur die typischen Tagesgänge und die typischen Wochengänge der Rußemissionen. In den Emissionsdaten des Gebiets Moskau ist kein Wochengang vorhanden. Hier sieht man nur die Änderungen der Emission zwischen Tag und Nacht.

In den Ergebnissen der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW ist die Rußkonzentration in den verschiedenen Moden des Modells aufgeteilt. Blau stellt den Anteil der reinen Rußmode s, grün der Nukleationsmode i und rot der Akkumulationsmode j dar. Wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, haben laut Ogren et al. (1984) die Rußpartikel ihr Maximum in der Größenverteilung im Akkumulationsbereich. Dies ist auch in den Abbildungen 4.3 und 4.4 (unten, rote Fläche) zu sehen. Zudem ist viel Ruß in der reinen Rußmode vorhanden, da in dieser Mode direkt die Rußemissionen einfließen.

Je nach Höhe der Rußemissionen ist auch in den Ergebnissen der Simulation der Wert höher, beziehungsweise niedriger. In dem Gebiet England ist der Höhepunkt der Hitzeperiode Anfang August deutlich erkennbar. Bis zu diesem Zeitpunkt liegen die Werte der Rußkonzentrationen zwischen etwa 0,3 und 1,2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und steigen dann bis zu 1,9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an. Danach sinken die Rußkonzentrationen wieder auf die vorherigen Werte. In diesem Gebiet ist eine Korrelation mit dem zeitlichen Verlauf der Temperatur auf 2 m Höhe (Abb. 3.4) erkennbar. Da in den anderen Gebieten die Hitzeperiode nicht so stark ausgeprägt war, ist in diesen Gebieten die Korrelation mit der Temperatur auf 2 m Höhe nicht erkennbar. Hohe Rußkonzentrationen sind in dem Gebiet Moskau zu finden. Sie erreichen ihr Maximum zwischen dem 9. und 12. Juli mit etwa 3,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. In dem Gebiet Polen steigen die Konzentrationen zum Ende der Hitzewelle, mit Ausnahme zweier Einfälle, bis auf 0,8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an. Zum Vergleich sieht man, dass im Gebiet Norwegen die Rußkonzentrationen bis höchstens 0,31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ steigen, meistens jedoch die Konzentrationen unterhalb von 0,15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

liegen.

4.2 Zeitlicher Verlauf der Konzentrationen von Spurenstoffen und Aerosolen

Die zeitlichen Verläufe bodennaher Volumenmischungsverhältnisse von Schwefeldioxid und Ozon und die bodennahen Massenkonzentration von Sulfat, Nitrat, Ammonium, Ruß, Seesalz und Mineralstaub werden in den Abbildungen 4.5 bis 4.8 gezeigt. In grau sind die Verläufe der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW, in rot die Verläufe der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW und in blau die Verläufe der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW zu sehen. Die Auswertung bezieht sich auf das Untersuchungsgebiet in Abbildung 3.3.

Die zeitlichen Verläufe der Volumenmischungsverhältnisse, außer von Sulfat, Seesalz und Mineralstaub, zeigen eine starke Ähnlichkeit mit dem zeitlichen Verlauf der Temperatur in 2 m Höhe auf (Abb. 3.4, 6.1). Dies kann, wie in Abschnitt 3.5 schon erläutert, durch eine erhöhte Photolyse- und einer Stagnation der Luftmassen in diesem Zeitraum erklärt werden. Letzteres führt zu einem Temperaturanstieg und zu einem Anstieg der Konzentrationen der chemischen Substanzen. Die höheren Temperaturen führen zu einem Emissionsanstieg der biogenen Kohlenwasserstoffe und zu einer Steigerung der chemischen Umwandlungsvorgänge. Wie die Temperatur in 2 m Höhe, erreichen diese Spurenstoffe ihr Maximum Anfang August.

Die Mediane der verschiedenen Spurenstoffkonzentrationen der zwei Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW (Abb. 4.5 und 4.6) stimmen weitestgehend überein. In der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW reicht der Median des Volumenmischungsverhältnisses von Schwefeldioxid von 0,7 bis 1,7 ppb, in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW von 0,7 bis 1,9 ppb. Während vor August meist die Volumenmischungsverhältnisse der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW minimal höher sind, sind am Ende der Hitzeperiode die Volumenmischungsverhältnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW minimal um bis zu 0,2 ppb höher. Die Mediane der Volumenmischungsverhältnisse von Ozon sind beinahe identisch. Nur am Ende der Hitzeperiode ist das Mischungsverhältnis der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW mit 67 ppb um 3 ppb höher als in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW. In dem Median der bodennahen Massenkonzentrationen von Sulfat gibt es zwischen den zwei Simulationen einen großen Unterschied. Fast die ganze Zeit über ist der Median der Sulfatkonzentration in der Simulation mit Ruß höher als ohne Ruß. Nur zwischen dem 15. und 20. Juli sind die Werte der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW um bis zu $0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher. Am Ende der Hitzeperiode steigt der Median der Sulfatkonzentration in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW auf bis zu $4,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an, in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW nur bis etwa $3,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Zwischen dem 17. und 20. August werden sogar Unterschiede bis zu $1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht. Im Vergleich mit der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW (Abb. 4.7), also ohne Ruß und ohne Wechselwirkung der Aerosole mit der Strahlung, ist der Median der Sulfatkonzentration niedriger als für die Simula-

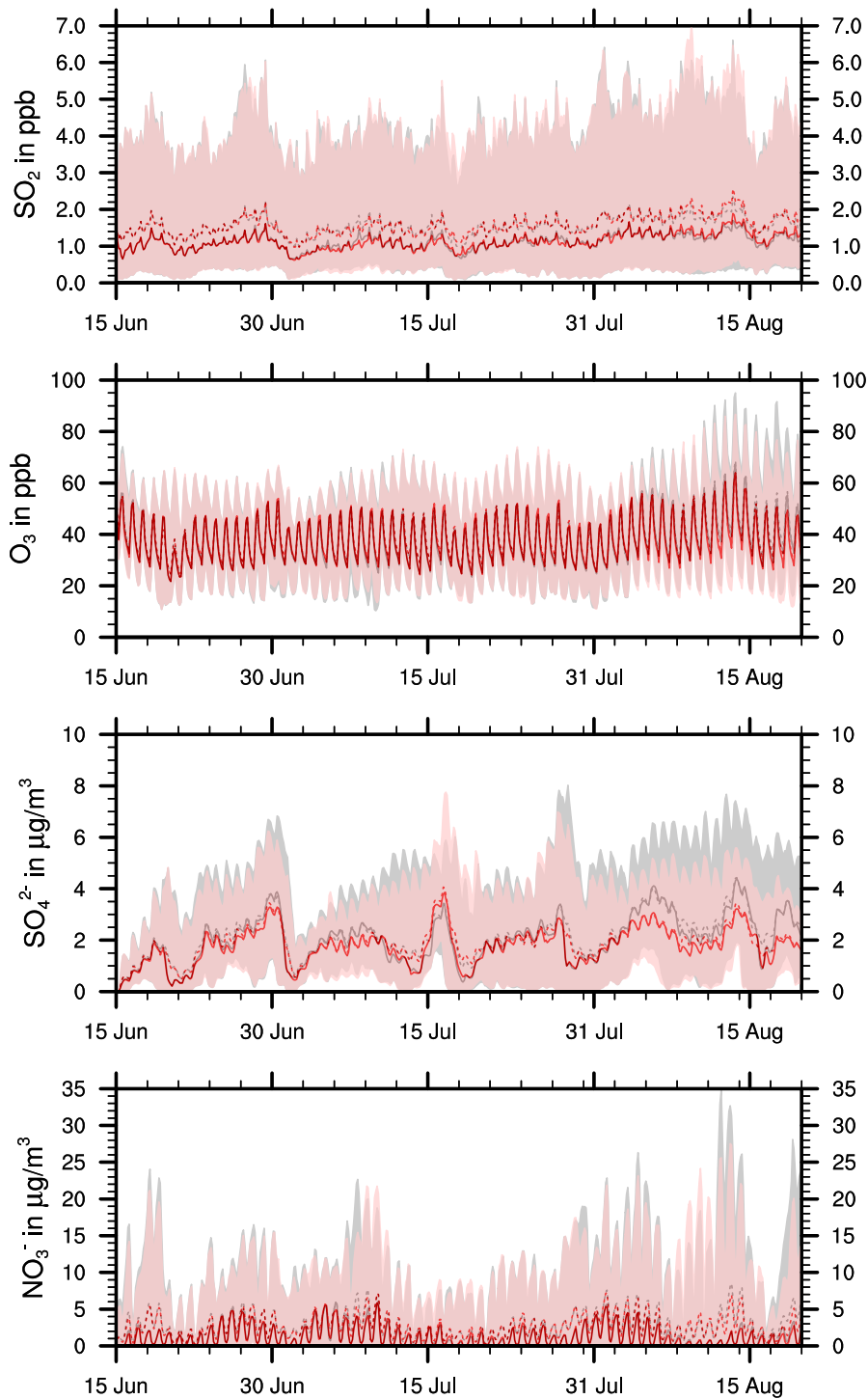


Abb. 4.5: Verlauf der simulierten Konzentrationen von Schwefeldioxid (SO_2), Ozon (O_3), Sulfat (SO_4^{2-}) und Nitrat (NO_3^-) vom 15. Juni bis 20. August 2003 auf der untersten Modellschicht. In grau sind die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW und in rot die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW dargestellt. Die durchgezogene Linie stellt jeweils den Medianwert und die gestrichelte Linie jeweils den Mittelwert dar. Die jeweilige Fläche zeigt den Bereich zwischen dem 5. und dem 95. Perzentil der Konzentrationen im Untersuchungsgebiet.

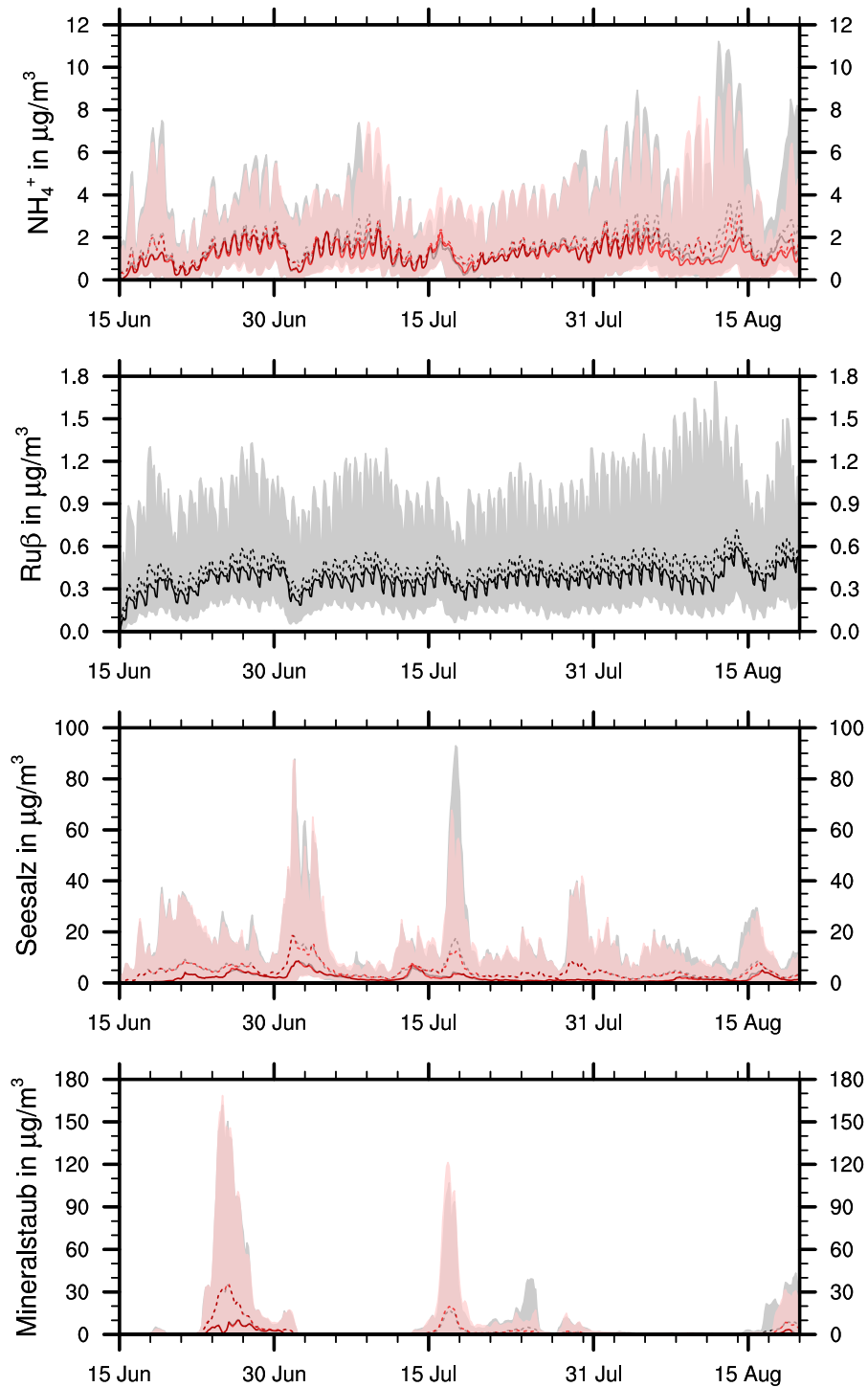


Abb. 4.6: Wie Abbildung 4.5 für Ammonium (NH_4^+), Ruß, Seesalz und Mineralstaub.

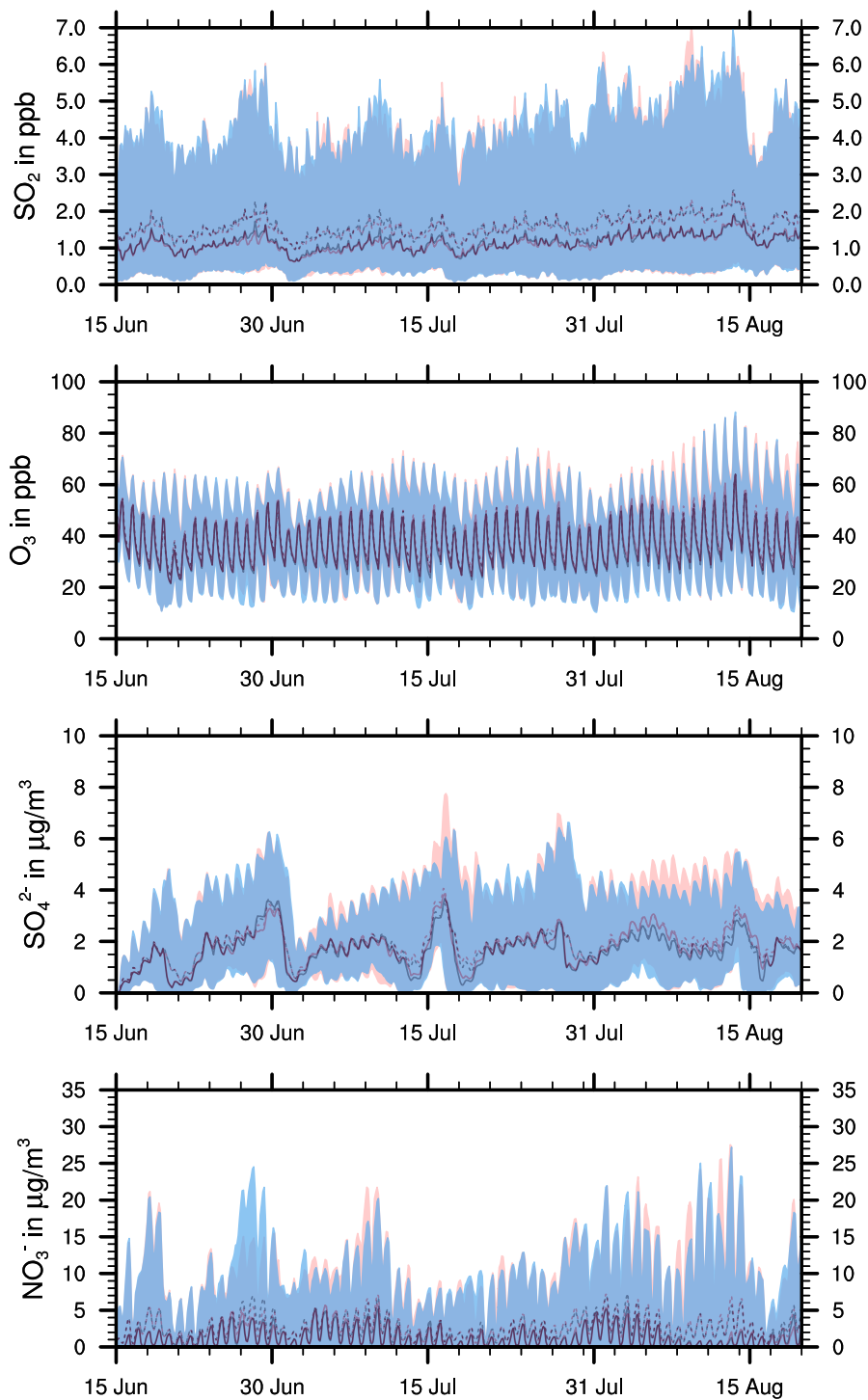


Abb. 4.7: Verlauf der simulierten Konzentrationen von Schwefeldioxid (SO_2), Ozon (O_3), Sulfat (SO_4^{2-}) und Nitrat (NO_3^-) vom 15. Juni bis 20. August 2003 auf der untersten Modellschicht. In rot sind die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW und in blau die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW dargestellt. Die durchgezogene Linie stellt jeweils den Medianwert und die gestrichelte Linie jeweils den Mittelwert dar. Die jeweilige Fläche zeigt den Bereich zwischen dem 5. und dem 95. Perzentil der Konzentrationen im Untersuchungsgebiet.

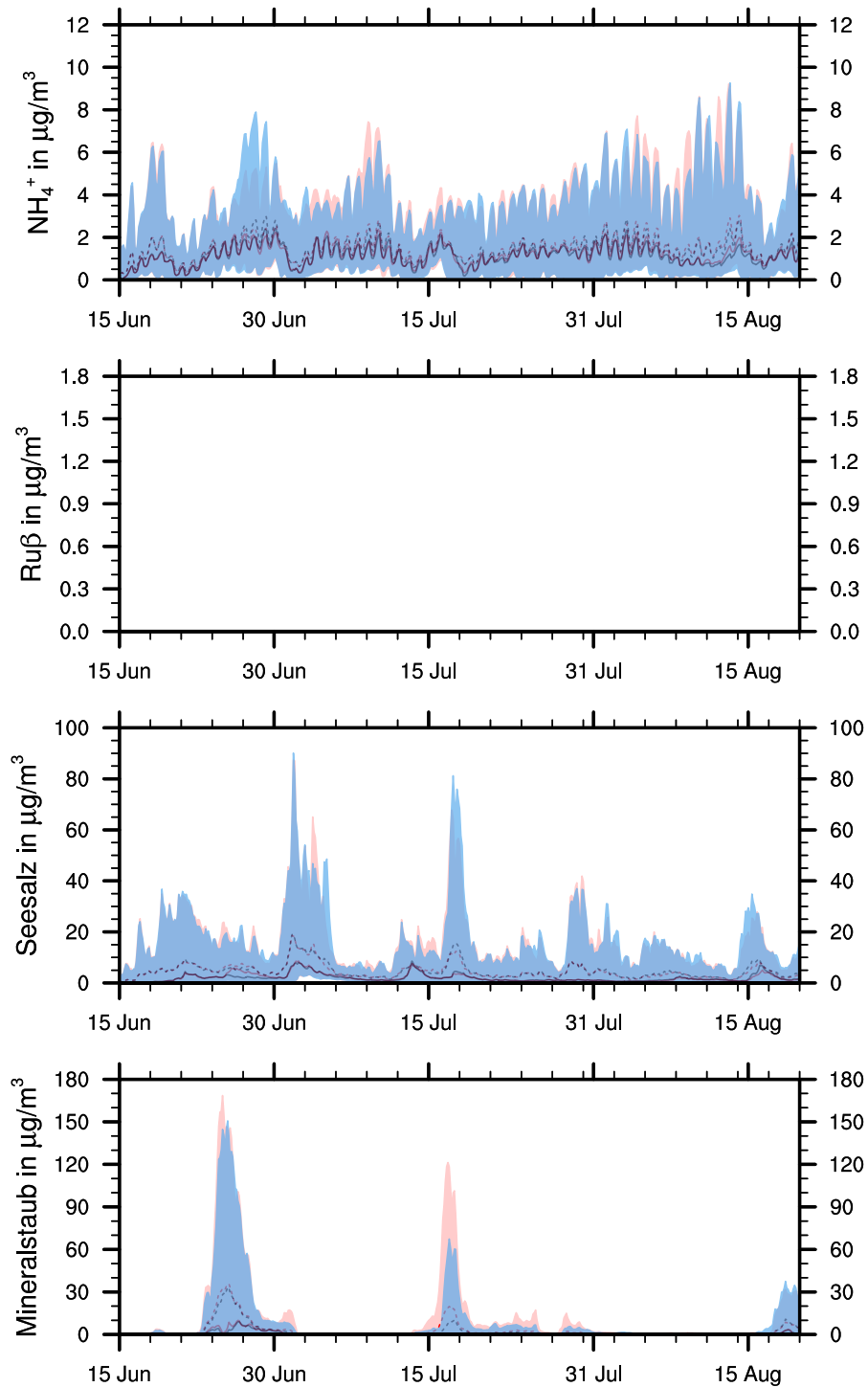


Abb. 4.8: Wie Abbildung 4.7 für Ammonium (NH_4^+), Ruß, Seesalz und Mineralstaub.

tion COSMO-ART_oRuß_WW. Dies lässt darauf schließen, dass die hervorgerufenen Änderungen in den meteorologischen Bedingungen durch die Aerosole nicht der entscheidende Grund für den Unterschied in der Sulfatkonzentrationen in Abbildung 4.5 ist. Der Unterschied rührt wahrscheinlich aus der Wechselwirkung zwischen den einzelnen Aerosolen. Ein weiterer Grund kann aber auch die Veränderung der Partikeldurchmesser durch das Fehlen der Rußpartikel sein. In der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW sind die Durchmesser der Sulfatpartikel kleiner, die Masse jedoch höher. Somit steigt auch die Konzentration. Mehr dazu in Kapitel 5.

Die Mediane der Nitratkonzentrationen sind beinahe identisch. Beide reichen von 0 bis $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Auch hier ist am Ende der Hitzeperiode die Konzentration in der Simulation mit Ruß minimal höher. Die Konzentrationen von Ammonium zeigen ebenfalls eine große Übereinstimmung in den zwei Simulationen. Nur am Ende der Hitzeperiode ist die Konzentration der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW bis zu $0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher. Ruß ist natürlich nur in der Simulation mit Ruß (grau) vorhanden. Hier liegt der Median der Konzentration zwischen $0,2$ und $0,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Die Mediane der Konzentrationen der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW sind denen der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW sehr ähnlich (Abb.4.7 und 4.8). Neben der oben schon erwähnten minimalen Differenz in der Sulfatkonzentration, ist zudem in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW der Median in der Nitratkonzentration am Anfang August minimal um $0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher. Die restlichen Konzentrationen sind beinahe identisch.

Der synoptische Einfluss auf die Konzentrationen ist vor allem in den Konzentrationen von Seesalz und Mineralstaub zu erkennen. In der Nacht vom 1. auf 2. Juli durchzog ein atlantischer Tiefausläufer das Untersuchungsgebiet. Da die Luftmasse relativ sauber war, nehmen zu diesem Zeitpunkt die Konzentrationen der Spurenstoffe sichtbar ab. Die Luftmasse konnte sich jedoch mit Seesalz anreichern und dieses in das Gebiet transportieren. Um dem 17. Juli nimmt die Seesalzkonzentration in allen drei Läufen ebenfalls stark zu.

Im Mineralstaub gibt es auch zwei Perioden mit hohen Konzentrationen. Hier wurde Staub im westlichen Teil von Nordafrika aufgewirbelt und über Spanien von Westen her ins Auswertungsgebiet transportiert.

4.3 Zeitlicher Verlauf der Konzentrationen von Feinstaub

Wie in Kapitel 2.5 beschrieben haben Spurenstoffe einen erheblichen Einfluss auf die Luftqualität und somit auf die menschliche Gesundheit. Um dies näher zu betrachten sind in den Abbildungen 4.9 und 4.10 die zeitlichen Verläufe der Konzentrationen von PM_{10} , $\text{PM}_{2,5}$ und der Gesamtpartikelmasse im Untersuchungsgebiet auf der untersten Modellschicht zu sehen. In grau sind wieder die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW, in rot die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW und in blau die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW dargestellt. Da alle Aerosolgrößen bei der Initialisierung des Modellsystems auf null gesetzt wur-

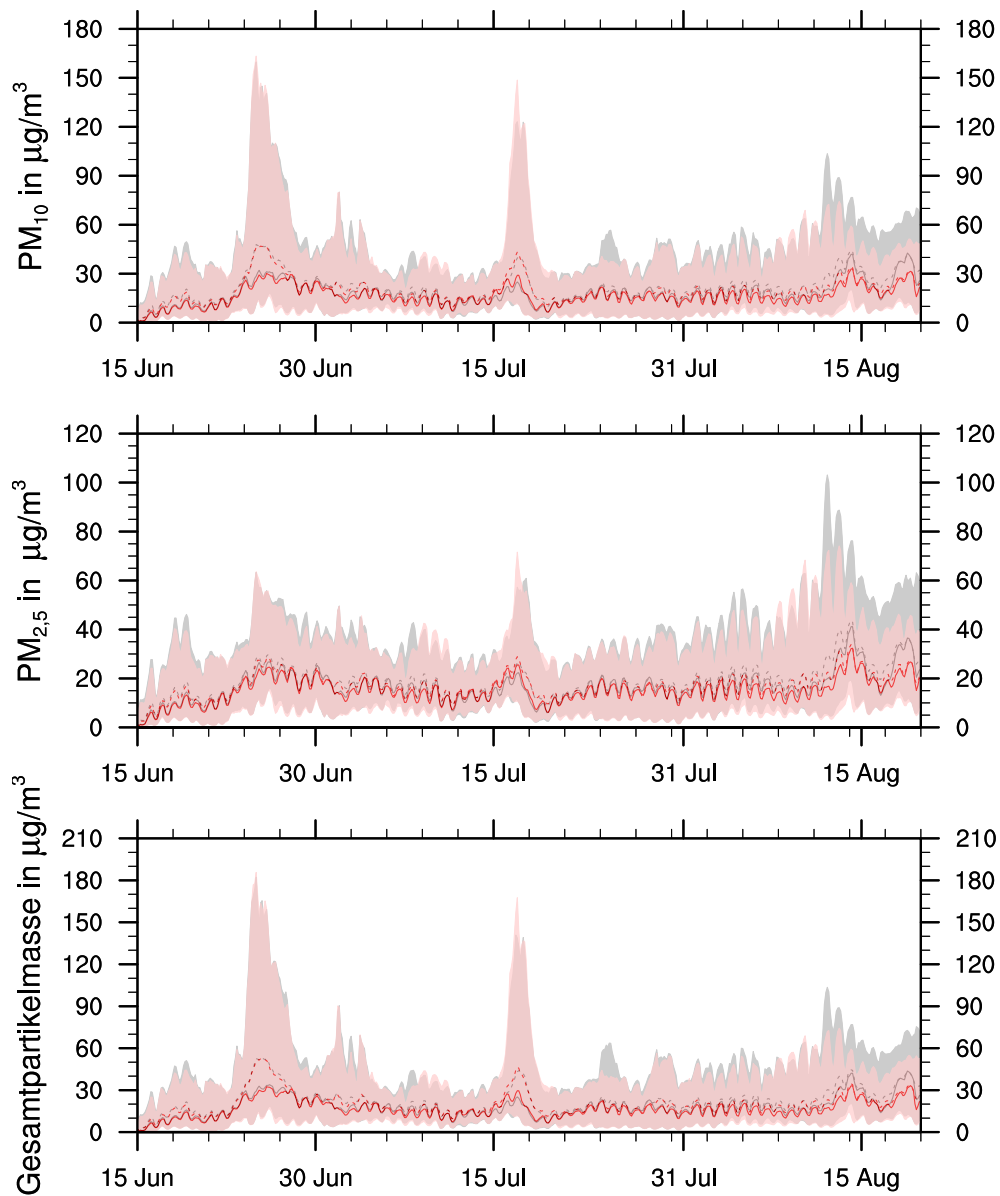


Abb. 4.9: Verlauf der simulierten bodennahen Konzentrationen von PM_{10} , $PM_{2,5}$ und der Gesamtpartikelmasse vom 15. Juni bis 20. August 2003 im Untersuchungsgebiet. In grau sind die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW und in rot die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW dargestellt. Die durchgezogene Linie stellt jeweils den Medianwert und die gestrichelte Linie jeweils den Mittelwert dar. Die jeweilige Fläche zeigt den Bereich zwischen dem 5. und dem 95. Perzentil der Konzentrationen.

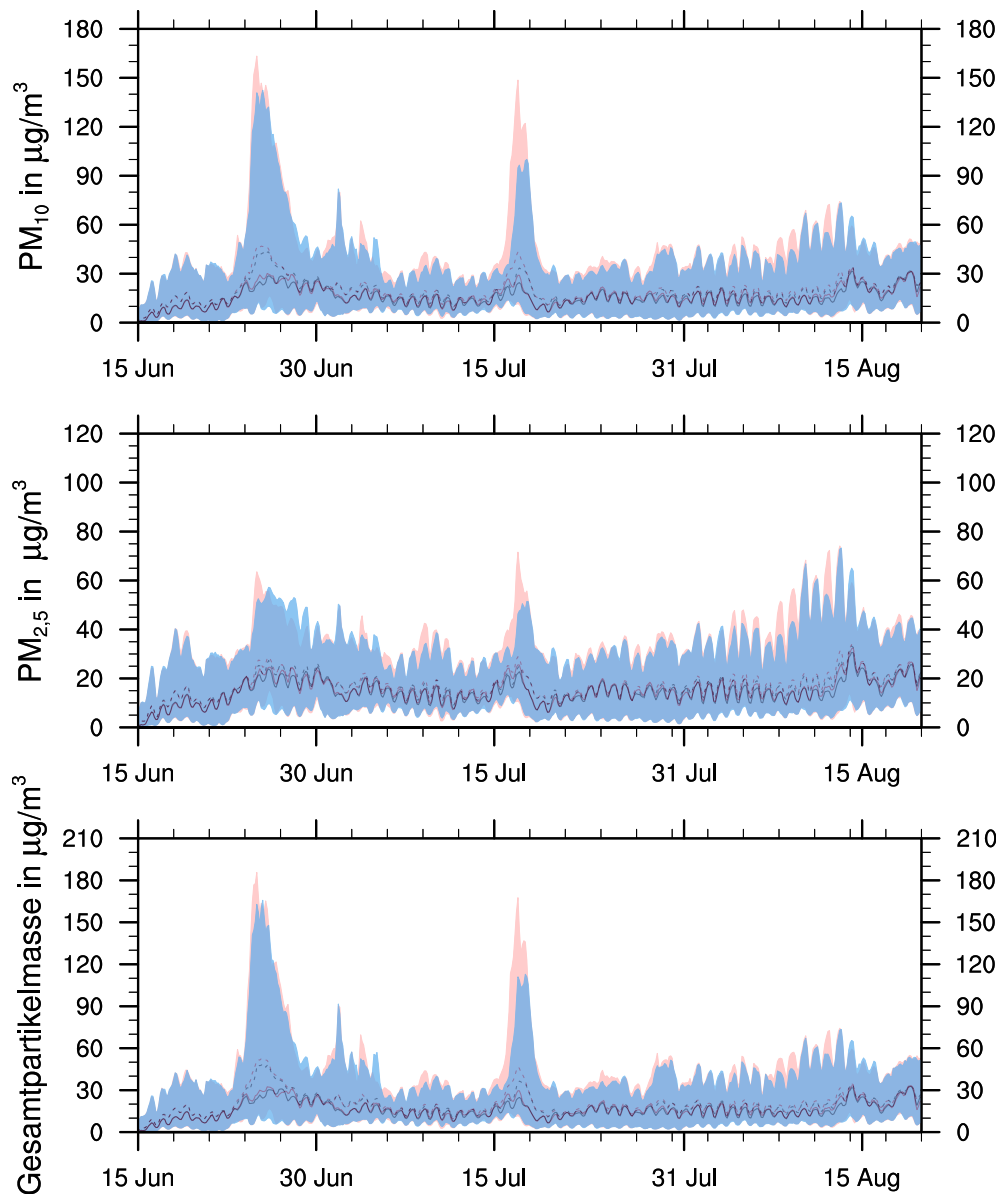


Abb. 4.10: Verlauf der simulierten bodennahen Konzentrationen von PM_{10} , $PM_{2,5}$ und der Gesamtpartikelmasse vom 15. Juni bis 20. August 2003 im Untersuchungsgebiet. In rot sind die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW und in blau die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW dargestellt. Die durchgezogene Linie stellt jeweils den Medianwert und die gestrichelte Linie jeweils den Mittelwert dar. Die jeweilige Fläche zeigt den Bereich zwischen dem 5. und dem 95. Perzentil der Konzentrationen.

den, dauert es einige Tage bis die Konzentrationen ihren eigentlichen Wert erreicht haben.

In allen drei Konzentrationen ist eine Korrelation mit dem zeitlichen Verlauf der Temperatur auf 2 m Höhe zu sehen (Abb. 3.4, 6.1). In den Konzentrationen von PM_{10} und der Gesamtpartikelmasse sind jedoch die in Kapitel 4.2 erwähnten Seesalz- und Mineralstaub-Erhöhungen zwischen dem 24. Juni und 27. Juni 2003 und um dem 17. Juli zu sehen. Da aufgrund des geringen Durchmessers der Partikel nur die kleinen Moden von Seesalz und Mineralstaub Einfluss auf die $PM_{2,5}$ Konzentrationen haben, sind hier die zwei Ereignisse weniger ausgeprägt.

Die Mediane der Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW (Abb. 4.9) sind sich sehr ähnlich. Nur am Ende der Hitzewelle, Anfang August, sind größere Unterschiede zu erkennen. In allen drei Feinstaubkonzentrationen sind zu diesem Zeitpunkt die Mediane der Konzentrationen der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW bis zu über $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher als in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW. Da die Rußmasse im Median nur eine Konzentration zwischen $0,2$ und $0,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ besitzt (Abb. 4.6), können die Unterschiede in den Feinstaub Konzentrationen nicht nur durch den Rußanteil zustande kommen.

Der Median der PM_{10} Konzentrationen reicht in der Simulation mit Ruß von 5 bis $43 \mu\text{g}/\text{m}^3$, während der Median in der Simulation ohne Ruß Werte von 5 bis $33 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht. Zum Zeitpunkt der Seesalz- und Mineralstaub-Erhöhung um den 17. Juli ist kurzzeitig die Konzentration der Simulation ohne Ruß bis zu $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher, als die Konzentration mit Ruß. Dies ist auch in den anderen zwei Feinstaubkonzentrationen zu sehen. Die Konzentrationen des $PM_{2,5}$ erreichen in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW im Median Werte bis $41 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW Werte bis $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Der Median der Gesamtpartikelmassenkonzentration reicht in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW von 5 bis $45 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW von 5 bis $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Der in Europa gesetzlich vorgeschriebene PM_{10} Grenzwert von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wird während des Sommers 2003 an einigen Tagen im Modell überschritten. Zwar nicht im Median oder im Mittelwert, jedoch im Bereich zwischen dem 5. und 95. Perzentil. Dabei muss beachtet werden, dass es sich bei dem betrachteten Untersuchungsgebiet um ein relativ großes Gebiet handelt und somit die Konzentrationen in einigen kleineren Gebieten zum Teil noch höher sind. Dies zeigt wie hoch die Feinstaubbelastung während diesem Zeitraum war. So waren nicht nur die hohen Temperaturen eine Belastung für die Gesundheit, auch die hohe Konzentration von Feinstaub setzte der Gesundheit zu.

Der Vergleich der zwei Simulationen ohne Ruß (Abb. 4.10) zeigt nur minimale Unterschiede. Die größten Differenzen sind während der zwei Seesalz- und Mineralstaub- Ereignisse mit bis zu $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Unterschied zu sehen. Die Konzentrationen der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW sind beinahe immer höher als die Konzentrationen der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW. Aufgrund der geringen Unterschiede zwischen den Simulationen COSMO-ART_oRuß_WW und COSMO-ART_oRuß_oWW wird im weiteren Verlauf der Auswertung nur noch auf die zwei Si-

mulationen mit Wechselwirkung der Aerosole mit der Strahlung eingegangen und die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW wird dem Anhang beigefügt.

Kapitel 5

Einfluss von Ruß auf die Größenverteilungen der Aerosole

Da durch das Entfernen des Rußes der Kern fehlt, an denen sich andere Substanzen anlagern können, erwartet man, dass sich die Durchmesserverteilungen der einzelnen Aerosole und somit auch der verschiedenen Moden des Modells verändern. In diesem Kapitel wird diskutiert wie stark sich die Größenverteilung durch das Fehlen von Rußpartikel im Modell verändert. Da in Kapitel 4 festgestellt wurde, dass die beiden Simulationen mit Ruß, einmal mit Wechselwirkungen zwischen den Aerosolen und der Strahlung und einmal ohne, keine signifikanten Unterschiede haben, werden hier nur die Ergebnisse der Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW betrachtet. Die Ergebnisse der Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW sind im Anhang B zu finden.

5.1 Chemische Zusammensetzung der Massendichteverteilung der Aerosole

Die Abbildungen 5.1a und 5.1b zeigen die Massendichteverteilungen von Mineralstaub, Seesalz, sekundären organischen Aerosolen, primären organischen Aerosolen, Sulfat, Nitrat, Ammonium, Ruß und den unspezifischen anthropogenen Aerosolen⁵ für die zwei Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW. Dargestellt ist der Median über den Zeitraum vom 15. Juni 2003 bis 20. August 2003 im Untersuchungsgebiet. Die Durchmesser sind logarithmisch aufgetragen.

Bei allgemeiner Betrachtung der Abbildungen erkennt man, dass es zwei Maxima in der Durchmesserverteilung gibt. Bei den größeren Partikeln dominieren Mineralstaub- und Seesalzpartikel. Bei den kleineren Partikeln besitzen vor allem die sekundären organischen Aerosole einen hohen Beitrag. Eine hohe Massenverteilung haben außerdem vor allem Nitrat und Sulfat. Außer Ammonium, den nicht spezifischen anthropogenen Aerosolen und Ruß sind alle Partikel hier ungefähr

⁵Die genaue chemische Zusammensetzung dieser Emissionen ist nicht bekannt. Nur der Emissionsfluss und der mediane Partikeldurchmesser sind in den MACC Daten vorgegeben.

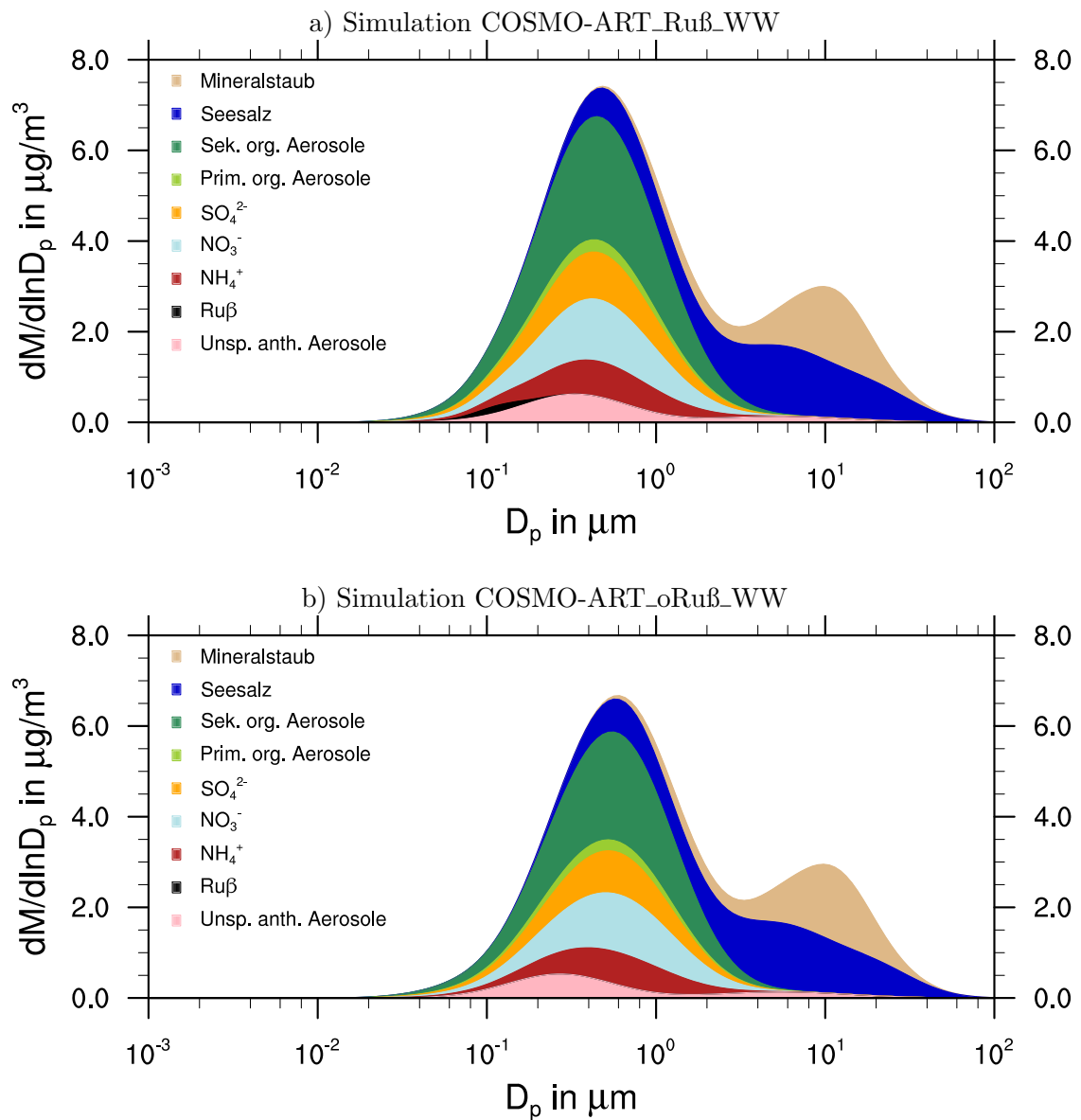


Abb. 5.1: Chemische Zusammensetzung der Massendichteverteilung der Aerosole im Modell. Dargestellt ist der Median über den Zeitraum vom 15.6.2003 bis 20.8.2003 im Untersuchungsgebiet. Oben für die Simulation COSMO-ART_Ruß_WW und unten für COSMO-ART_oRuß_WW.

im gleichen Durchmesserbereich. Rußpartikel besitzen den kleinsten Durchmesser und liegen in einem Durchmesserbereich um die $0,1 \mu\text{m}$. Auch ihre Massenverteilung ist sehr niedrig. Trotzdem ist nicht zu vergessen, dass sie einen signifikanten Einfluss auf das Klima besitzen (Abschnitt 2.2).

Durch das Entfernen von Ruß verändert sich auch die chemische Zusammensetzung der Massendichteverteilung der Aerosole. Das erste Maximum der Massendichteverteilung liegt in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW (Abb. 5.1a) bei einem Durchmesser von etwas über $0,4 \mu\text{m}$ und in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW (Abb. 5.1b) bei einem Durchmesser von etwa $0,6 \mu\text{m}$. Das Maximum der Massendichteverteilung verschiebt sich also in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW zu einem größeren Durchmesser. Der Maximalwert verringert sich jedoch in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW. Es gibt aber auch Aerosole, bei denen der Durchmesser kleiner wird, wie Ammonium und die nicht spezifischen anthropogenen Aerosolen. Die Unterschiede in der Massenverteilung entstehen durch das Fehlen der Rußmasse, was wiederum zu einer Verringerung der anderen Aerosolmassenverteilung führt. Hauptsächlich verringert sich der Maximalwert der Massenverteilung des sekundären organischen Aerosols und der Sulfatpartikel.

Das zweite Maximum der Massendichteverteilung, welcher von Mineralstaub und Seesalz dominiert wird, liegt in beiden Simulationen bei einem Durchmesser von $1 \mu\text{m}$ bei gleichem Maximalwert. Wie in Abschnitt 4.2 schon herausgefunden und daher erwartet, verändert sich die Massendichteverteilung der größeren Partikel fast gar nicht, da sie nicht mit der Chemie wechselwirken.

5.2 Beitrag der Moden zu Größenverteilungen in COSMO-ART

Um die in Abschnitt 5.1 beschriebene Änderung der Massendichteverteilungen der zwei Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW besser im Modell zu verstehen, werden zusätzlich die Größenverteilungen der Moden in COSMO-ART, wie in Abschnitt 3.2 beschrieben, grafisch dargestellt.

In den Abbildungen 5.2a und 5.2b sind die Massendichteverteilungen für die Rußmode, die Grobpartikelmode, die Nukleationsmoden, die Akkumulationsmoden, sowie für die drei Moden für Mineralstaub und Seesalz der zwei Simulationen aufgezeigt. Dabei wird in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW für die Nukleations- und Akkumulationsmoden jeweils die rußfreie und die rußenthaltene Mode dargestellt und für die Simulation COSMO-ART_oRuß_WW nur die rußfreie Mode, da die rußenthaltene nicht vorhanden ist. Die Verteilungen zeigen den Median über den Zeitraum vom 15. Juli bis 20. August 2003 im Untersuchungsgebiet. Die Durchmesser sind logarithmisch aufgetragen.

Zu sehen ist die gleiche Darstellung wie in Abbildung 5.1, jedoch jetzt für die einzelnen Moden. Daher sind wieder zwei Maxima in der Durchmesserverteilung erkennbar. Bei den größeren Durchmesser dominieren die mittlere Seesalzmode und die größte Mineralstaubmode. Bei den

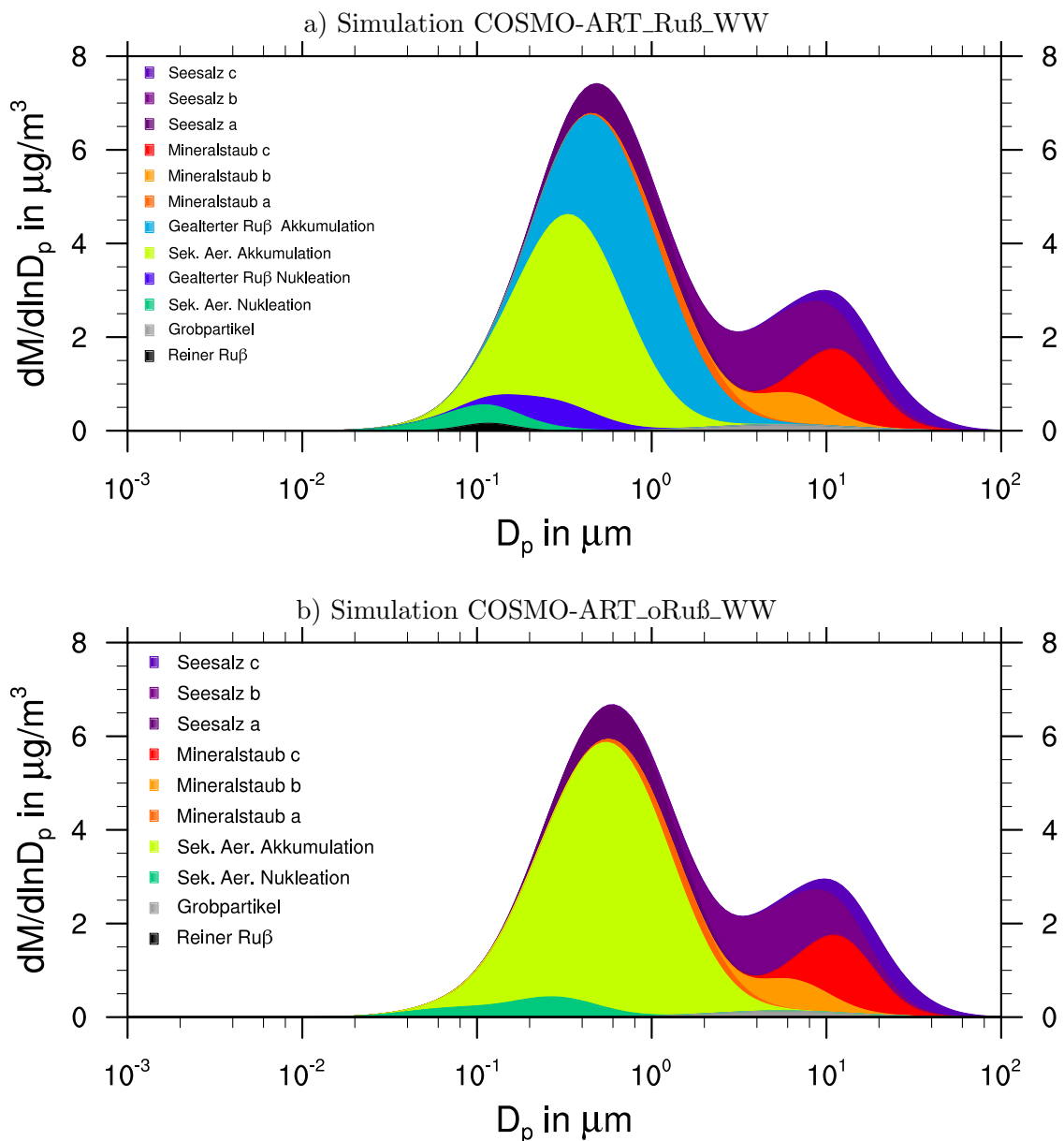


Abb. 5.2: Massendichteverteilung der verschiedenen Moden in COSMO-ART. Dargestellt über den Zeitraum vom 15.6.2003 bis 20.8.2003 im Untersuchungsgebiet. Oben für die Simulation COSMO-ART_Ruß_WW und unten für COSMO-ART_oRuß_WW.

kleineren Durchmessern dominiert die rußfreie Akkumulationsmode, aber auch die rußenthaltene Akkumulationsmode hat einen großen Beitrag. Während die Moden für Seesalz a, Mineralstaub a und die rußenthaltene Akkumulationsmode im selben Durchmesserbereich liegen, etwa bei $0,6\ \mu\text{m}$, liegen die rußfreie Akkumulationsmode, die beiden Nukleationsmoden und die Mode des reinen Rußes darunter. Im kleinsten Durchmesserbereich um die $0,1\ \mu\text{m}$ liegen die reine Rußmode und die rußfreie Nukleationsmode. Auch hier ist der niedrige Massenanteil der reinen Rußmode zu sehen.

Wie in Abbildung 5.1 verschiebt sich auch hier in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW das erste Maximum zu einem größeren Durchmesser und der Maximalwert der Massendichteverteilung verringert sich. Am stärksten verändern sich die rußfreien Moden. Die Massenverteilung der rußfreien Akkumulationsmode nimmt zu. Nicht zu erwarten war, dass die Massenverteilung der rußfreien Nukleationsmode abnimmt und sich über einen größeren Durchmesserbereich erstreckt. Das zweite Maximum liegt ebenfalls wie in Abbildung 5.1 bei beiden Simulationen im gleichen Durchmesserbereich bei gleicher Massenverteilung.

Neben den Massendichteverteilungen sind in den Abbildungen 5.3a und 5.3b die Anzahldichteverteilungen der Moden für die Simulation COSMO-ART_Ruß_WW und die Simulation COSMO-ART_oRuß_WW dargestellt.

Außer der reinen Rußmode in Abbildung 5.3a sind in beiden Abbildungen nur die Nukleationsmoden und Akkumulationsmoden erkennbar. Die anderen Moden besitzen in dem betrachteten Untersuchungsgebiet, während der Hitzeperiode 2003, einen zu geringen Anteil, sodass sie in dieser Darstellung nicht zu sehen sind. Dabei liegen die Akkumulationsmoden in einem größeren Durchmesserbereich als die Nukleationsmoden. Den größten Anteil auf die Anzahlverteilung besitzen jeweils die rußfreien Moden. Wie erwartet, hat die reine Rußmode eine niedrige Anzahlverteilung. Ihr Maximum liegt jedoch in einem größeren Durchmesserbereich als das Maximum der Akkumulationsmoden.

Neben der Massendichteverteilung verändert sich auch die Anzahldichteverteilung der beiden betrachteten Simulationen. Das Maximum der Anzahldichteverteilung liegt in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW bei einem Durchmesser von etwa $0,7\ \mu\text{m}$ und in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW bei einem Durchmesser von $0,6\ \mu\text{m}$. Im Gegensatz zur Massendichteverteilung verschiebt sich hier also das Maximum der Anzahldichteverteilung in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW zu einem kleineren Durchmesser. Auch die Maximalwerte verringern sich in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW. Hauptsächlich verringert sich der Maximalwert der Anzahlverteilung in der Akkumulationsmode. In der Nukleationsmode verringert sich der Maximalwert der Anzahlverteilung nur minimal, aber reicht dafür in einen größeren Durchmesserbereich.

Zusammenfassend kann man sagen, dass wie in Abschnitt 4.3 schon herausgefunden und hier bestätigt, die Masse der Partikel in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW zunehmen. Dabei ist eine Tendenz zu kleineren Partikeln zu sehen. Auch die Anzahl der Partikel nimmt in der Simula-

tion COSMO-ART_Ruß_WW zu, jedoch bei tendenziell größeren Partikeln. Für dieses Verhalten konnte im Rahmen dieser Arbeit keine zufriedenstellende Antwort gefunden werden.

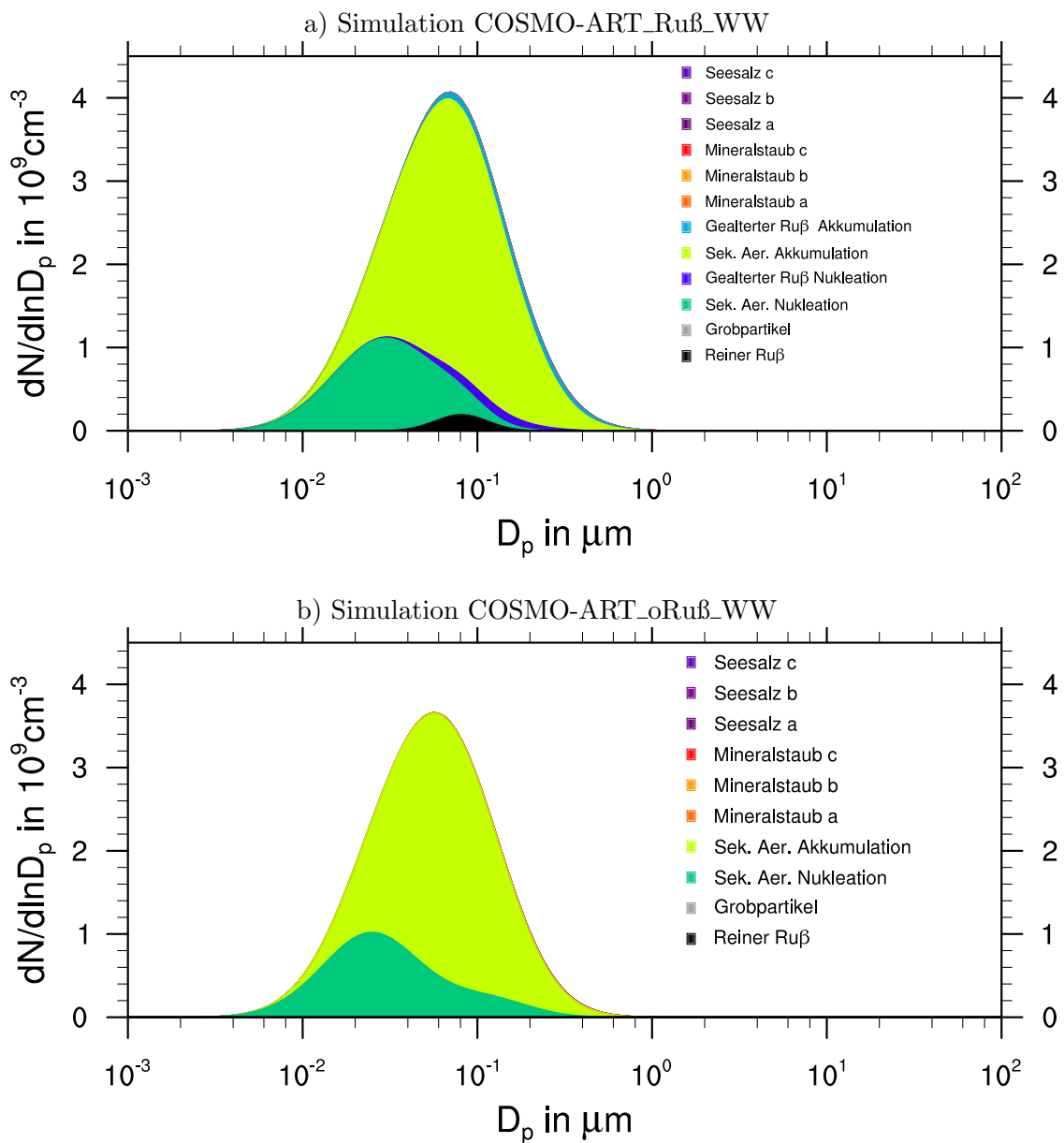


Abb. 5.3: Anzahldichteverteilung der verschiedenen Moden in COSMO-ART. Dargestellt über den Zeitraum vom 15.6.2003 bis 20.8.2003 im Untersuchungsgebiet. Oben für die Simulation COSMO-ART_Ruß_WW und unten für COSMO-ART_oRuß_WW.

Kapitel 6

Einfluss von Ruß auf die Temperatur

Das Hauptziel dieser Arbeit ist, den Einfluss von Ruß auf die bodennahen Temperaturen zu quantifizieren. Dafür wird zunächst der zeitliche Verlauf der Tagesmitteltemperatur zwischen der Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW verglichen. Danach wird untersucht, welche Unterschiede der Tagesmitteltemperatur auf die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen zurückgeführt werden können. Um den Einfluss von Ruß genauer quantifizieren zu können, wird ein statistischer Student t-test durchgeführt und die horizontale Verteilung der Temperaturdifferenz betrachtet. Zum Schluss wird die vertikale Verteilung der Temperaturdifferenz analysiert.

6.1 Bodennahe Temperaturänderung

In der Abbildung 6.1 sind die Verläufe der Tagesmitteltemperaturen in 2 m Höhe, während der Hitzewelle 2003, über dem Untersuchungsgebiet aufgezeichnet. Die Beobachtungsdaten (grau gestrichelte Linie) stammen aus dem EOBS Datensatz (Haylock et al., 2008). Um vergleichen zu können wurden die Tagesmittelwerte von COSMO-ART_oRuß_WW (schwarze durchgezogene Linie) und COSMO-ART_Ruß_WW (schwarz gestrichelte Linie) auf das $0,25^\circ \times 0,25^\circ$ Gitter der Beobachtungsdaten interpoliert, wobei Gitterzellen über dem Meer nicht berücksichtigt wurden.

Durch den Vergleich mit den Beobachtungsdaten sieht man, dass der Verlauf der Temperatur in 2 m Höhe zufriedenstellend wiedergegeben wird. Eine eindeutige Übereinstimmung war nicht zu erwarten, da die Meteorologie des Modells ab dem 1. Januar 2002 im Modellgebiet frei läuft und nur von den Rändern angetrieben wird. Anfang August wird die Temperatur im Modell stark unterschätzt.

Am Anfang der Hitzeperiode schwanken die gemittelten Tagesmitteltemperaturen im Untersuchungsgebiet zwischen $18,8$ und 22°C . Nach dem atlantischen Tiefausläufer in der Nacht vom 1. auf 2. Juli sinken die Temperaturen zuerst bis auf fast 17°C , bevor sie dann kontinuierlich

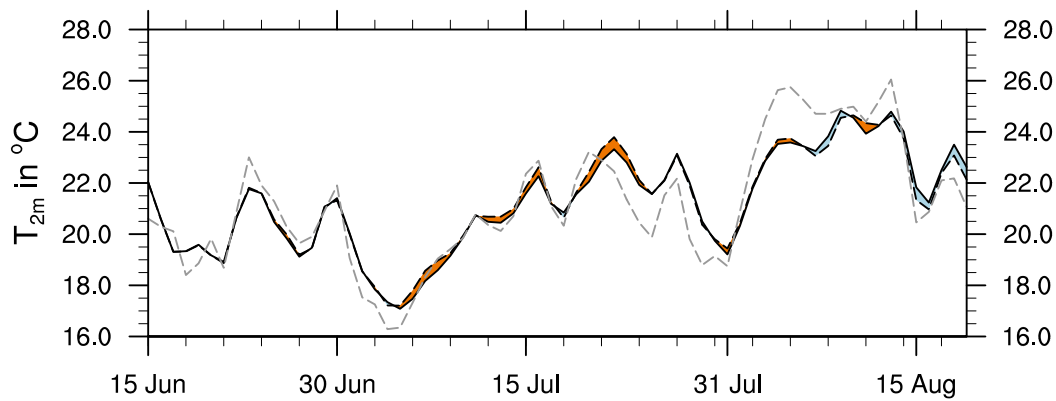


Abb. 6.1: Zeitlicher Verlauf der Tagesmitteltemperatur ($^{\circ}\text{C}$) in 2 m Höhe gemittelt über das Untersuchungsgebiet. Die grau gestrichelte Linie zeigt die Beobachtungen (aus dem EOBS Datensatz), die schwarze durchgezogene Linie die Temperatur aus der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW und die schwarz gestrichelte Linie die Temperatur für die Simulation COSMO-ART_Ruß_WW. Ist die Temperatur in COSMO-ART_Ruß_WW tiefer als in COSMO-ART_oRuß_WW ist die Fläche blau, ist sie höher ist sie orange.

ansteigen. Die Hitzeperiode erreicht ihren Höhepunkt zwischen dem 8. und 14. August mit Tagesmitteltemperaturen bis zu 25°C , gemittelt über das Untersuchungsgebiet.

Über einen längeren Zeitraum ist der Verlauf der Tagesmitteltemperatur in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW höher als in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW. Das war zu erwarten, da Ruß die Strahlung absorbiert und dabei die Atmosphärensicht, in welcher der Ruß enthalten ist, erwärmt. Durch das Fehlen von Ruß sind beinahe nur Aerosole in der Atmosphäre vorhanden, die die Strahlung streuen und somit für eine Abkühlung sorgen.

Am Anfang der Hitzeperiode ist der Unterschied zwischen den zwei Simulationen sehr gering. Erst ab Juli sind größere Unterschiede erkennbar. Vor allem in der Periode zwischen dem 5. und 25. Juli ist die Temperatur in 2 m Höhe in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW höher. Hier werden Unterschiede bis zu $0,5^{\circ}\text{C}$ erreicht. Es gibt jedoch auch Perioden an denen die Temperaturen der Simulation mit Ruß niedriger sind als die Temperaturen der Simulation ohne Ruß. Insbesondere am Ende der Hitzeperiode treten Unterschiede bis zu $-0,5^{\circ}\text{C}$ auf. Es kann zwei mögliche Ursachen dafür geben. Ein Grund dafür können Sulfataerosole sein, welche besonders in diesem Zeitraum eine höhere Konzentration in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW aufweisen als in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW (Abb. 4.5). Nach Forster et al. (2007) haben diese Partikel das größte Streuvermögen und tragen zu etwa $2/3$ zum direkten Aerosoleffekt bei. Somit führen sie zu einer Abkühlung in der Atmosphäre.

Aber auch die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen zwischen den zwei Simulationen können Gründe für die Temperaturdifferenzen sein. Um diese besser zu verstehen sind in den Abbildungen 6.2 und 6.3 neben der Temperatur in 2 m Höhe, der Wolkenbedeckungsgrad, die Windgeschwindigkeit (WG) in 10 m Höhe, die Grenzschichthöhe und die jeweilige Differenz

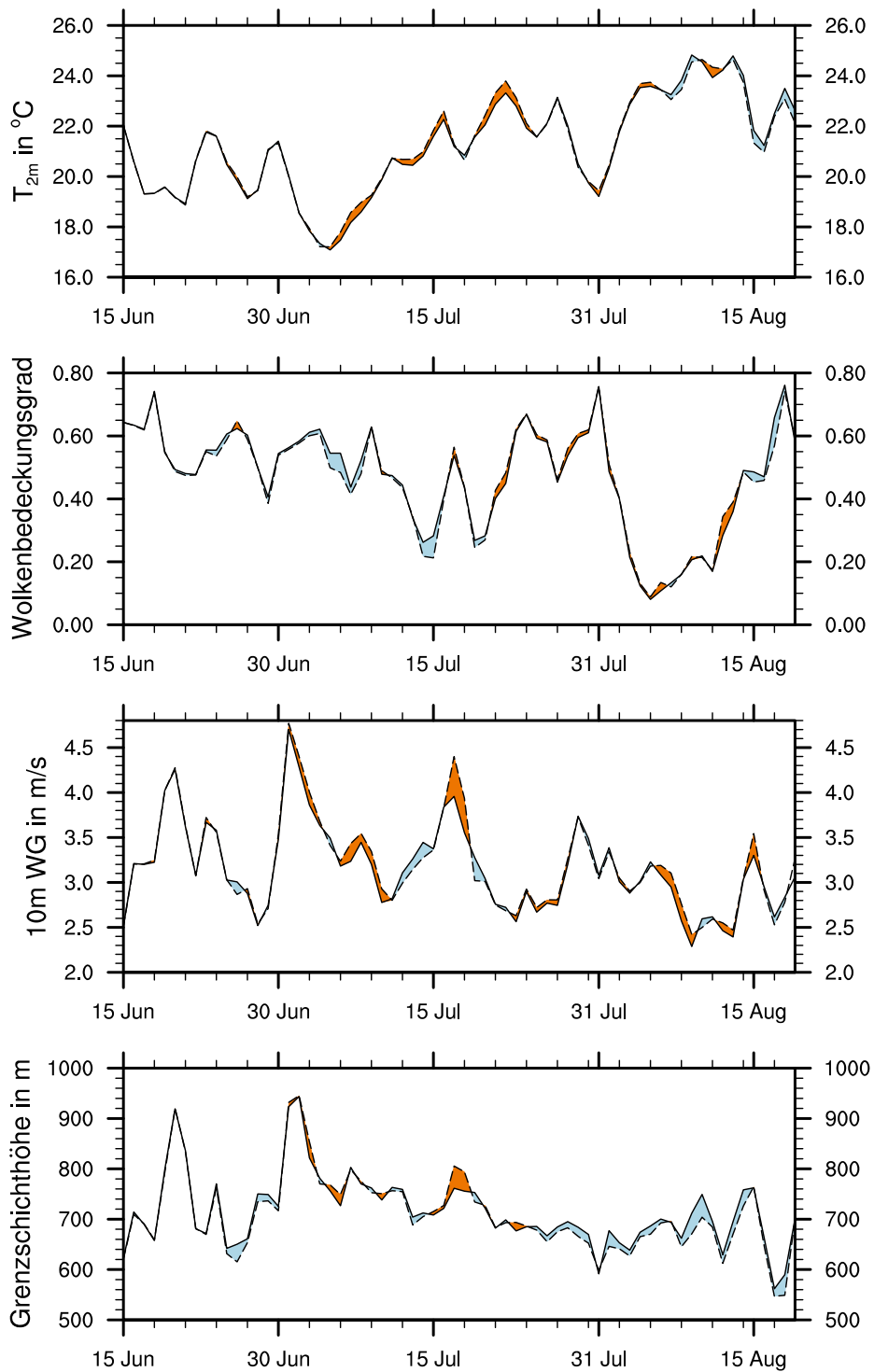


Abb. 6.2: Zeitlicher Verlauf der Temperatur in 2m Höhe, der Wolkenbedeckungsgrad, der Windgeschwindigkeit (WG) in 10m Höhe und der Grenzschichthöhe gemittelt über das Untersuchungsgebiet. Die durchgezogenen Linien sind die Ergebnisse von COSMO-ART_oRuß_WW, die gestrichelten Linien von COSMO-ART_Ruß_WW. Sind die Werte in COSMO-ART_Ruß_WW tiefer als in COSMO-ART_oRuß_WW ist die Fläche blau, sind sie höher ist sie orange.

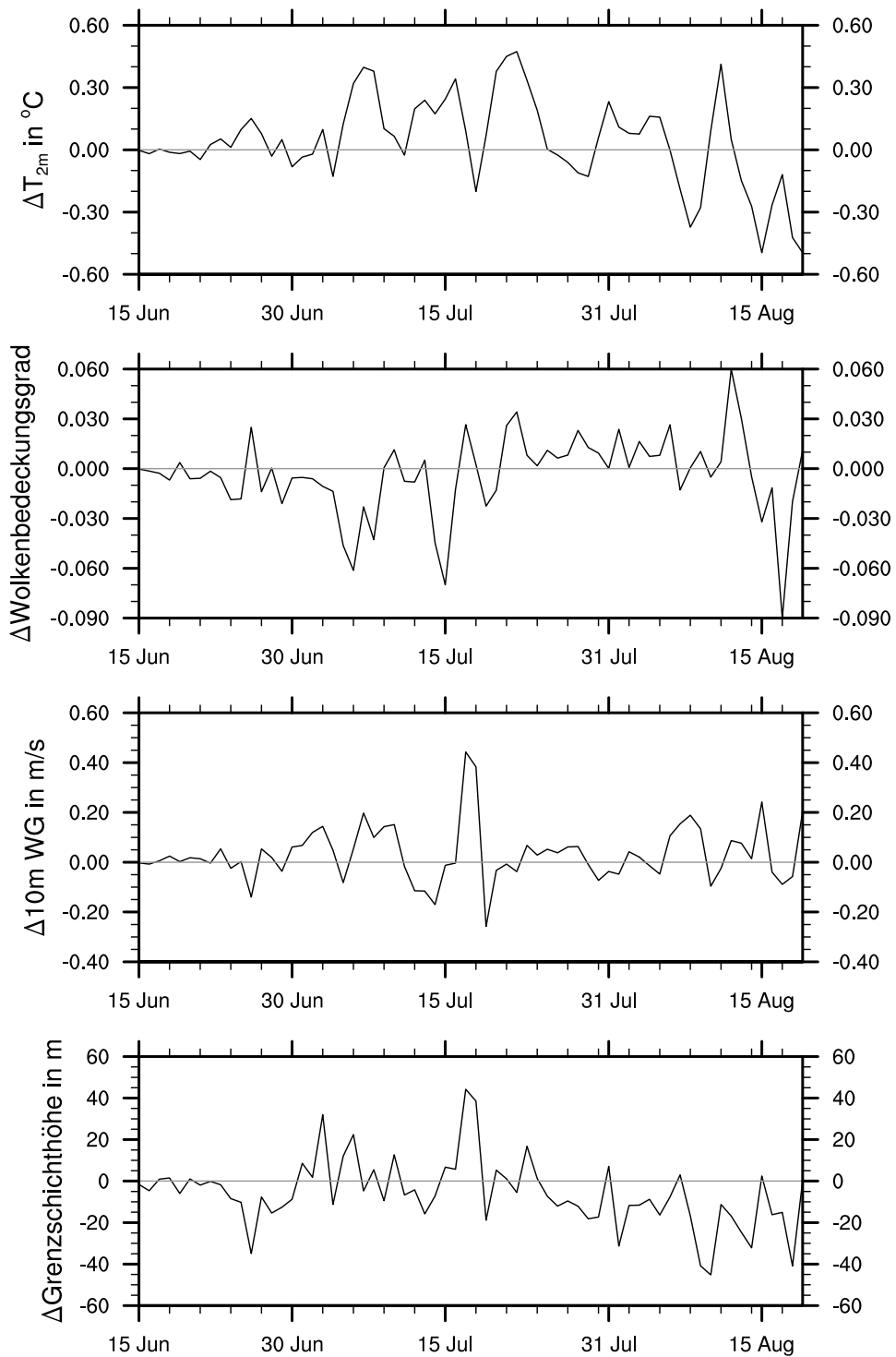


Abb. 6.3: Zeitlicher Verlauf der Differenzen von Temperatur in 2 m Höhe, Wolkenbedeckungsgrad, Windgeschwindigkeit (WG) in 10 m Höhe und Grenzschichthöhe zwischen den Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW, gemittelt über das Untersuchungsgebiet.

der beiden COSMO-ART Simulationen mit Wechselwirkung aufgezeigt. Sind die Werte in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW tiefer als in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW ist die Fläche zwischen den Kurven blau eingefärbt, sind die Werte höher ist die Fläche orange eingefärbt.

Bei der Wolkenbedeckung sticht sofort die Periode am Augustanfang hervor. Hier ist der Wolkenbedeckungsgrad sehr niedrig, was zu einer höheren Temperatur in diesem Zeitraum führt. Auch ist in dieser Periode die Windgeschwindigkeit in 10 m Höhe relativ niedrig, was die höheren Temperaturen begünstigt. In der kurzen Periode vom 21. bis 28. Juli ist die Windgeschwindigkeit ebenfalls sehr niedrig, was auch hier die Temperaturerhöhung erklären kann. Mit den Höchstwerten von 4,8 m/s in der Windgeschwindigkeit während des betrachteten Zeitraums und einer Grenzschichthöhe von 950 m, ist der atlantische Tiefausläufer in der Nacht vom 1. zum 2. Juli erkennbar.

Durch den Vergleich der Differenzen der zwei Simulationen wird deutlich, dass einige Temperaturerhöhungen in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW durch die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen erklärbar sind. In dem Zeitraum vom 24. bis 27. Juni ist die Tagesmitteltemperatur der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW minimal um 0,15 °C höher. Der Grund dafür könnte die niedrigere Windgeschwindigkeit sein. In den Perioden vom 4. bis 9. Juni und 12. bis 17. Juli können die höheren Temperaturen wahrscheinlich auf die niedrigere Wolkenbedeckung und ebenfalls auf die niedrigeren Windgeschwindigkeiten in diesem Zeitraum zurückgeführt werden.

Aber es gibt auch Perioden in denen die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen der zwei Simulationen nicht eindeutig mit den Temperaturdifferenzen in Verbindung gebracht werden können. So zum Beispiel die Perioden vom 18. bis 25. Juli, vom 29. Juli bis 6. August und vom 9. bis 12. August. Hier können die höheren Temperaturen in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW sehr wahrscheinlich durch das hohe Absorptionsvermögen der Rußpartikel erklärt werden.

In der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW ist die Grenzschichthöhe meist etwas niedriger, da diese sich bei höheren Temperaturen verringert. Am Ende der Hitzewelle ist sie sogar bis zu 45 m geringer. Zwischen dem 15. und 18. Juli ist die Grenzschicht in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW bis zu 45 m höher als in der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW. Der Grund dafür kann die höhere Windgeschwindigkeit der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW in diesem Zeitraum sein.

6.2 Räumliche Verteilung der Temperaturänderung

In Abbildung 6.4 ist die räumliche Verteilung der Temperaturdifferenzen in 2 m Höhe zwischen den Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW in ganz Europa zu sehen. Farblich dargestellt sind die Gitterpunkte an denen der Temperaturunterschied signifikant auf dem wahrscheinlichen Niveau (>66%; IPCC, 2007a) ist. Die statistische Signifikanz wird mit

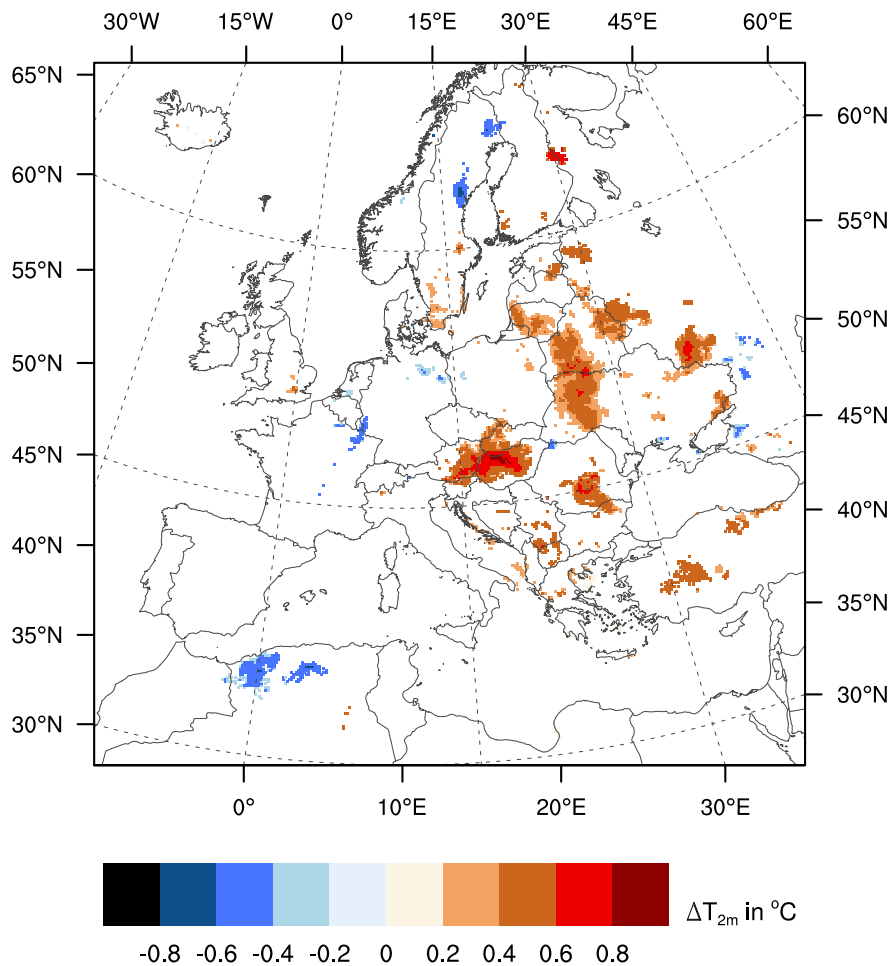


Abb. 6.4: Verteilung der durchschnittlichen Temperaturdifferenz zwischen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW in 2 m Höhe gemittelt über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003. Die Gitterpunkte an denen der Unterschied zwischen beiden Simulationen signifikant auf dem wahrscheinlichen Niveau ist, sind eingefärbt.

einem statistischen Student t-test mit äquivalenten Freiheitsgraden (Zwiers et al., 1995) berechnet.

Bis auf ein paar kleinere Gebiete ist die Temperatur in 2 m Höhe in der Simulation mit Ruß höher. Die signifikante Erwärmung ist hauptsächlich im Osten Europas großflächig zu sehen. Hier erwärmt sich die Atmosphäre in 2 m Höhe bis zu $0,6\text{ }^{\circ}\text{C}$, an manchen Stellen bis $0,8\text{ }^{\circ}\text{C}$. Östlich der Po-Ebene, über Österreich und Ungarn, ist eine leicht signifikante Erwärmung bis zu $0,9\text{ }^{\circ}\text{C}$. Über Finnland, an der Grenze zu Russland, wird die Atmosphäre signifikant bis zu $0,8\text{ }^{\circ}\text{C}$ erwärmt. Auch London ist mit einer signifikanten Erwärmung von $0,6\text{ }^{\circ}\text{C}$ zu erkennen. Über Nordafrika, Deutschland, Schweden und Ost-Russland ist die signifikante Abkühlung bis zu $-0,6\text{ }^{\circ}\text{C}$ zu sehen. Teilweise wird über Schweden und Nordafrika eine signifikante Abkühlung bis zu bis zu $-0,8\text{ }^{\circ}\text{C}$ erreicht. Wie in Abschnitt 6.1 erklärt, kann es dafür zwei Gründe haben. Zum einen die höhere Sulfatkonzentration in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW und zum anderen die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen der Simulationen.

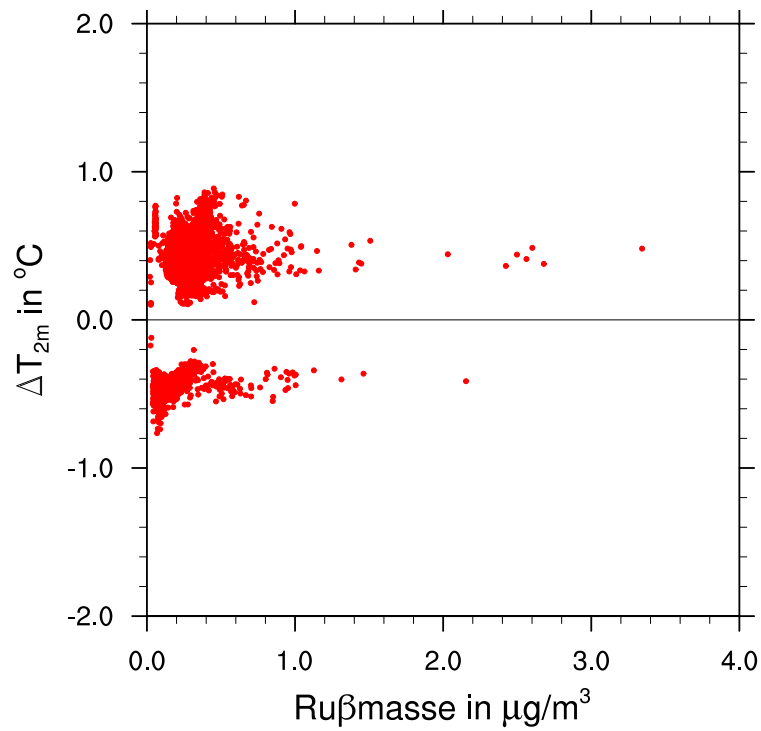


Abb. 6.5: Temperaturdifferenz zwischen der Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW in 2 m Höhe gemittelt über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003 in Abhängigkeit von der Rußmasse.

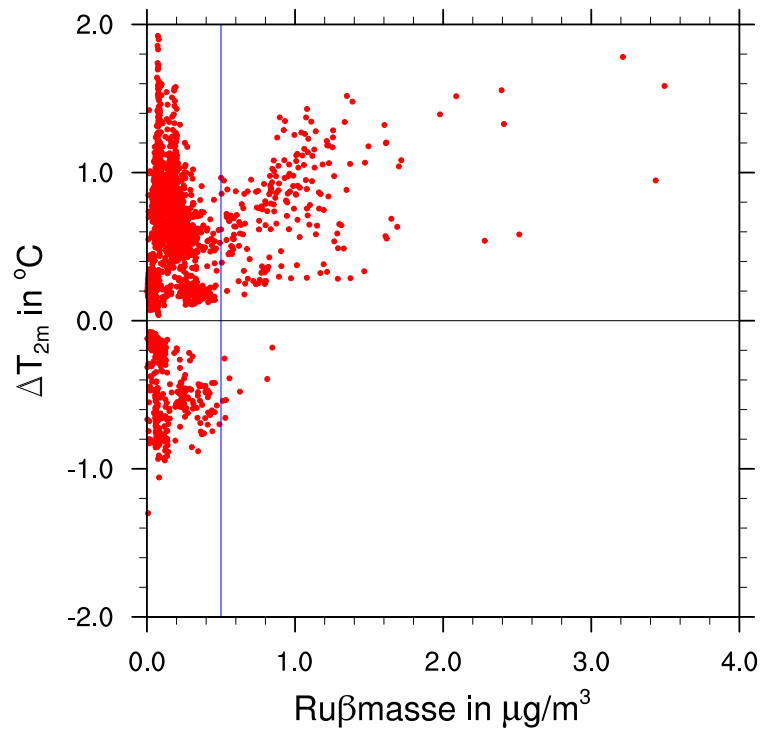


Abb. 6.6: Temperaturdifferenz zwischen der Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW in 2 m Höhe gemittelt über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003 in Abhängigkeit von der Rußmasse, wenn keine Wolkenbedeckung vorhanden ist.

Da die Temperaturen der Meeresoberflächen vom globalen Modell vorgegeben werden und somit jede Änderung, die durch den hohen Seesalzgehalt der Atmosphäre hervorgerufen werden könnte, nicht signifikant ist, gibt es über den Ozeanen keine signifikanten Änderungen (Ferrone et al., 2012).

Wie in Abschnitt 6.1 gezeigt, können die Temperaturunterschiede in 2 m Höhe zwischen den Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW nicht nur auf die Rußpartikel zurückgeführt werden. Auch die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen der zwei Simulationen können die Temperatur verändern. Um die Temperaturerhöhungen zu finden, welche durch das Absorbieren der Rußpartikel zustande kommen, ist in der Abbildung 6.5 die Temperaturdifferenz in 2 m Höhe der zwei Simulationen über die Rußmasse der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW aufgetragen. Es wird ganz Europa über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003 betrachtet. Wie in Abbildung 6.4 sind nur die Gitterpunkte dargestellt an denen der Temperaturunterschied signifikant auf dem wahrscheinlichen Niveau ($>66\%$; IPCC, 2007a) ist.

Eine Korrelation zwischen der Rußmasse und der Temperaturdifferenz ist hier jedoch nicht zu sehen. Da die Simulationen über einen längeren Zeitraum laufen, könnte die Ursache hierfür das Rauschen im Modell sein. Zu sehen ist, dass trotz einiger negativer Temperaturdifferenzen an manchen Gitterpunkten die positiven Temperaturdifferenzen überwiegen.

Um ein eindeutigeres Ergebnis zu bekommen wird dieselbe Betrachtung für Gebiete ohne Bewölkung gemacht. Abbildung 6.6 zeigt die Gitterpunkte und Zeitpunkte an denen während des Untersuchungszeitraums keine Wolkenbedeckung vorlag. Die Punkte auf der linken Seite der blauen Linie zeigen die Gitterpunkte, an denen die Rußmasse kleiner $0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sind. Diese können aufgrund des Rauschens vernachlässigt werden. Auf der rechten Seite der blauen Linie ist eine Korrelation zwischen der Rußmasse und der Temperaturdifferenz erkennbar. Je höher die Rußmasse, um so höher wird die Temperaturdifferenz.

Äquivalent zur Abbildung 6.6 ist in Abbildung 6.7 die räumliche Verteilung der Temperaturdifferenz dargestellt. Dargestellt sind die Gitterpunkte an denen die Rußmasse größer als $0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ist und keine Wolkenbedeckung vorhanden ist. Die signifikante Erwärmung bis zu $0,9^\circ\text{C}$ ist hauptsächlich über England und dem Ärmelkanal zu sehen. In diesem Gebiet sind auch flächendeckend hohe Rußemissionen zu finden (Abb. 4.1). Dies zeigt, dass lokale Erhöhungen der Rußemissionen, wie es zum Beispiel in Paris und Moskau der Fall ist, keinen signifikanten Einfluss auf die Temperaturerhöhung haben.

6.3 Vertikale Temperaturunterschiede

Wie in Abschnitt 2.4 erläutert, verändert der Ruß die Temperatur in allen Höhenlagen der Troposphäre. Abbildung 6.8 zeigt die vertikale Verteilung der Temperaturdifferenz zwischen den Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW. Dargestellt im Zeitraum

vom 15. Juni bis 20. August über das Untersuchungsgebiet (rot umrandetes Gebiet in Abb. 3.3). Die rote Linie stellt die mittlere Grenzschichthöhe, mit 709 m über der Erdoberfläche, über den oben genannten Zeitraum dar.

Fast über die gesamte Atmosphäre ist eine Erwärmung in der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW zu erkennen. Bis 1,5 km Höhe gibt es einen Temperaturunterschied von 0,05 °C bis zu 0,145 °C, was zu einer Stabilisierung der Atmosphäre führt. Oberhalb von 1,5 km wird die Temperaturdifferenz wieder kleiner und die Stabilisierung der Atmosphäre geht zurück. Ab einer Höhe von 10 km verändert sich die Temperaturdifferenz kaum, da am oberen Rand des Modells COSMO-ART, wie an den Seitenrändern die ERA-40 Daten vorgeschrieben werden (Abschnitt 3.4).

In Abbildung 6.9 ist die vertikale Verteilung der Rußkonzentration der Simulationen COSMO-ART_Ruß_WW zu sehen. Sie hat ihr Maximum in Bodennähe mit 0,44 µg/m³. Danach sinkt die Konzentration mit der Höhe immer weiter ab. An der Obergrenze der Grenzschicht ist eine Rußkonzentration von 0,22 µg/m³. In 4 km Höhe geht die Rußkonzentration auf 0,02 µg/m³ zurück. In dieser Höhenlage befinden sich nur noch aufgrund von vertikalen Transportvorgängen Rußpartikel. Ab 12 km Höhe ist im Modell keine Rußkonzentration mehr vorhanden.

Eine Korrelation zwischen der vertikalen Verteilung der Rußkonzentration und der vertikalen Verteilung der Temperaturdifferenz ist hier nicht erkennbar.

Deshalb werden zusätzlich zur Rußkonzentration die optischen Dicken im Modell betrachtet. Diese werden aus den Rußkonzentrationen im Modell wie in Vogel et al. (2009) berechnet und fließen in die Berechnung der Strahlungsflüsse mit ein. In Abbildung 6.10 ist die vertikale Verteilung der Differenz der optischen Dicke aller Aerosole im Modell bei einer Wellenlänge von 550 nm zwischen der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW und der Simulation COSMO-ART_oRuß_WW dargestellt. Die Aerosol optische Dicke ist ein Maß für die exponentielle Abschwächung der Sonnenstrahlung beim Durchlaufen der Atmosphäre, die durch die Partikel verursacht wird. Berechnet wird diese gemäß dem Lambert-Beer'schen Gesetz. Dabei entspricht die Aerosol optische Dicke dem Integral des Extinktionskoeffizienten b_k über das entsprechenden Höhenintervall (z_1 bis z_2):

$$k^{550nm}(z) = \int_{z_1}^{z_2} b_k^{550nm} dz. \quad (6.1)$$

Innerhalb der Grenzschicht gibt es eine Erhöhung der Aerosol optischen Dicke (Abb. 6.10). Das Maximum der vertikalen Verteilung der Differenz der optischen Dicke wird am Oberrand der Grenzschicht mit 0,0046 erreicht. Die Differenz sinkt bis zu einer Höhe von 1,5 km auf 0,0017 ab und steigt innerhalb 500 m bis 0,0027 an. Darüber geht der Wert gegen null.

Unterhalb der Grenzschicht steigt, wie in der Temperaturdifferenz, die Differenz der optischen Dicke an. Das Maximum der Temperaturdifferenz in der vertikalen Verteilung kann durch die Zunahme der optischen Dicke erklärt werden. Hier spielt das Absorptionsvermögen von Ruß eine dominante Rolle, aber die unterschiedlichen Streu- und Absorptionsvermögen der anderen Ae-

rosole dürfen nicht außer acht gelassen werden. Durch die Differenz der beiden Simulationen fließen die Streu- und Absorptionsvermögen der anderen Aerosole in diese Betrachtung mit ein. Dies verdeutlicht wie komplex es ist den Effekt des Rußes darzustellen und wie bedeutsam hier die online gekoppelten Modelle sind.

Um dabei den Effekt des Rußes genauer zu Verstehen, ist in Abbildung 6.11 die optische Dicke von trockenem Ruß, bei einer Wellenlänge von 550 nm, der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW aufgetragen. Dafür wurde die jeweilige Rußmode (s , i_c , j_c) mit dem passenden Parameter aus der Strahlungsroutine (Tabelle 3.3) wie folgt multipliziert:

$$b_k^{550nm}(\text{trockener Ruß}) = 9 \cdot 10^{-6} \cdot s + 5 \cdot 10^{-6} \cdot i_c + 4 \cdot 10^{-6} \cdot j_c. \quad (6.2)$$

Die optische Dicke von trockenem Ruß beträgt am Boden etwa $0,3 \cdot 10^{-7}$ und nimmt bis zu einer Höhe von 1,5 km bis auf etwa $9,2 \cdot 10^{-7}$ zu. Darüber hinaus nimmt die optische Dicke des trockenen Rußes wieder ab.

Hier ist eine gute Korrelation mit der vertikalen Verteilung der Temperaturdifferenz zu sehen (Abb. 6.8). Beide erreichen ihr Maximum in einer Höhe von 1,5 km. Somit kann die Änderung der Temperatur und die damit verbundene Stabilisierung sehr wahrscheinlich auf den Ruß zurückgeführt werden.

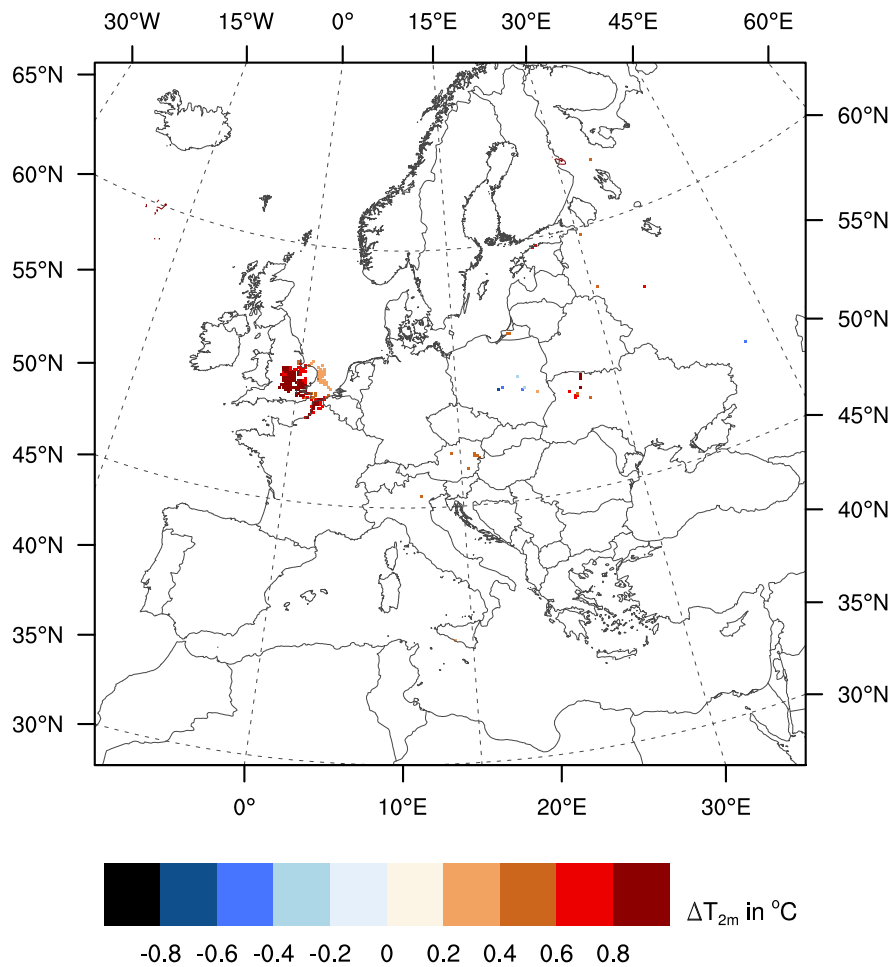


Abb. 6.7: Verteilung der durchschnittlichen Temperaturdifferenz zwischen COSMO-ART-Ruß-WW und COSMO-ART_oRuß-WW in 2m Höhe gemittelt über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003 für einen Wolkenbedeckungsgrad von 0%. Die Gitterpunkte an denen der Unterschied zwischen beiden Simulationen signifikant auf dem wahrscheinlichen Niveau ist, sind eingefärbt.

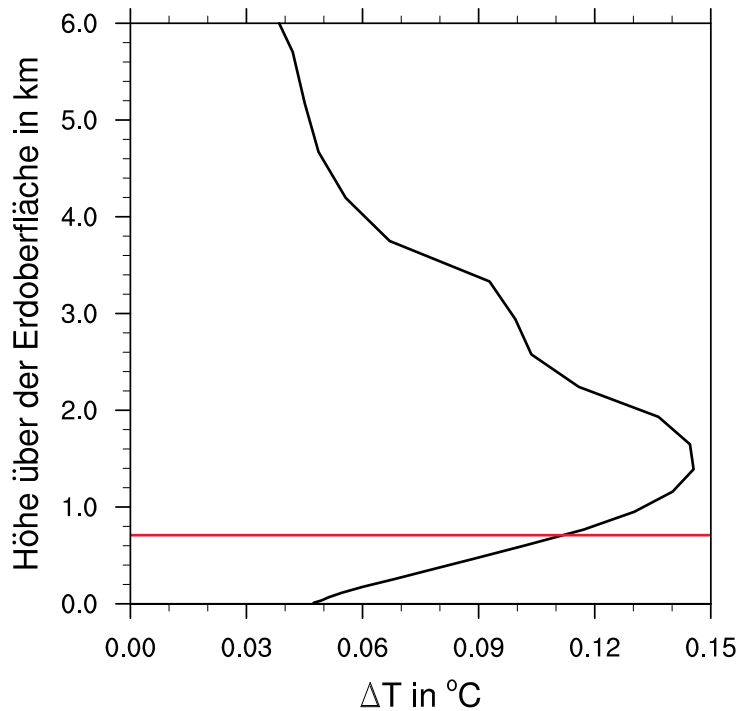


Abb. 6.8: Vertikale Verteilung der Temperaturdifferenz zwischen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW gemittelt über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003 im Untersuchungsgebiet. Die rote Linie zeigt die gemittelte Grenzschichthöhe.

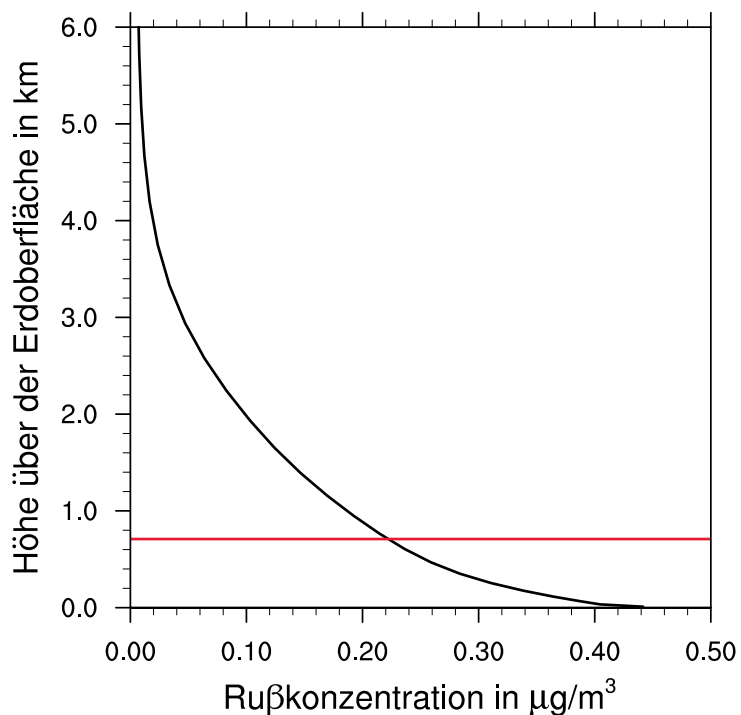


Abb. 6.9: Vertikale Verteilung der Rußkonzentration der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW gemittelt über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003 im Untersuchungsgebiet. Die rote Linie zeigt die gemittelte Grenzschichthöhe.

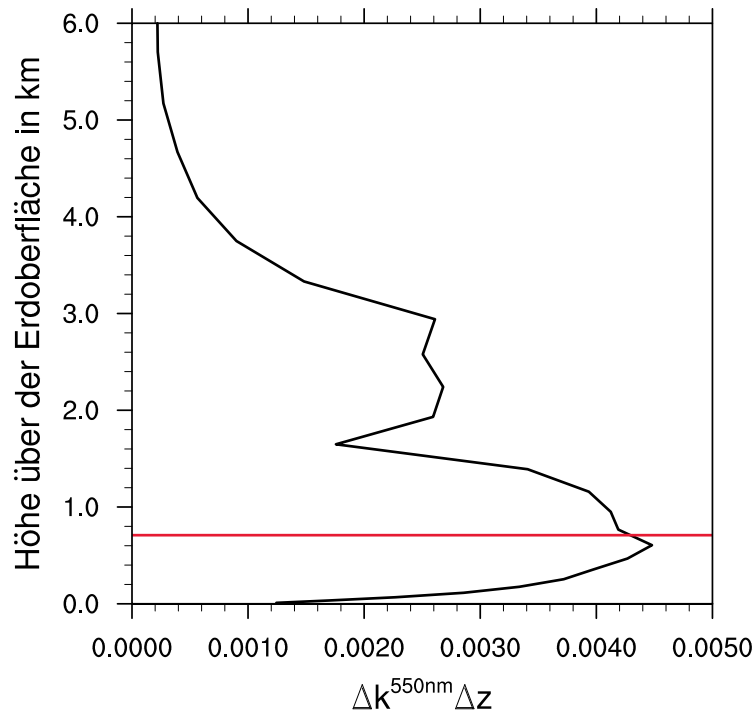


Abb. 6.10: Vertikale Verteilung der Differenz der Aerosol optischen Dicke im Modell zwischen COSMO-ART_Ruß_WW und COSMO-ART_oRuß_WW gemittelt über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003 im Untersuchungsgebiet. Die rote Linie zeigt die gemittelte Grenzschichthöhe.

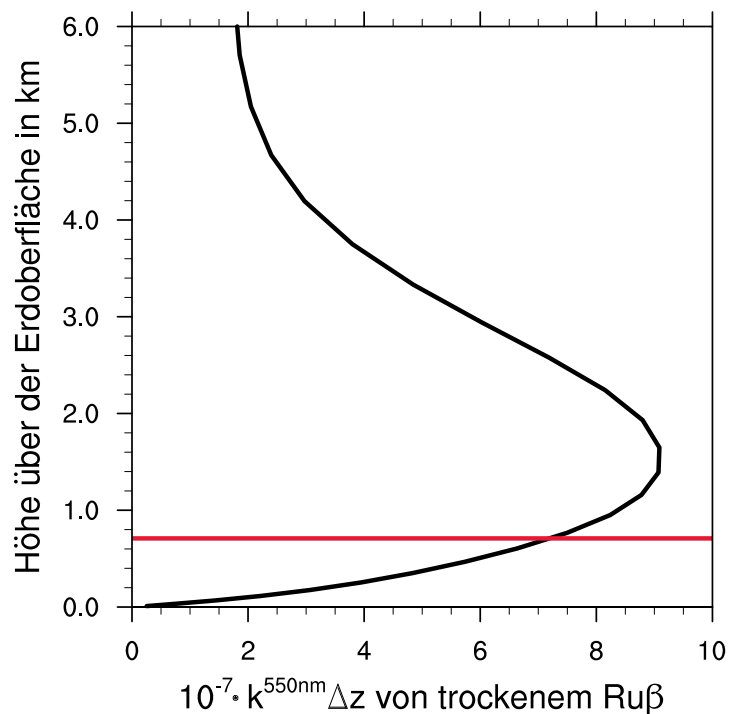


Abb. 6.11: Vertikale Verteilung der Aerosol optischen Dicke von trockenem Ruß der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW gemittelt über den Zeitraum vom 15. Juni bis 20. August 2003 im Untersuchungsgebiet. Die rote Linie zeigt die gemittelte Grenzschichthöhe.

Kapitel 7

Zusammenfassung

Trotz ihrer geringen Masse und Größe führen die Rußpartikel zu einer Erwärmung des Klimasystems und haben einen potentiellen Einfluss auf die menschliche Gesundheit. Das atmosphärische Aerosol wirkt sich auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre aus. Dabei ist die Rolle des Rußes auch heute noch mit hohen Unsicherheiten verbunden (IPCC, 2007a). Im Gegensatz zum Großteil der Aerosole, die das Sonnenlicht hauptsächlich streuen, absorbiert Ruß die solare Strahlung und führt zu einer Erwärmung in der jeweiligen Atmosphärenschicht.

In dieser Arbeit wurde der Einfluss von Ruß auf den Atmosphärenzustand quantifiziert. Dieser Einfluss wurde zum ersten Mal über einen Zeitraum von zwei Monaten, während der Hitzewelle 2003, über ganz Europa mit dem Modellsystem COSMO-ART (Vogel et al., 2009) betrachtet. Aufgrund des vollständig online gekoppelten Modellsystems ist eine Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Aerosolen und der Atmosphäre über die Strahlungseigenschaften möglich. Eine Besonderheit in COSMO-ART gegenüber anderen Modellen ist die explizite Behandlung der Rußalterung.

Für die Quantifizierung des Einflusses von Ruß wurden verschiedene Simulationen mit COSMO-ART durchgeführt. Zum einen eine Simulation mit Betrachtung von Ruß und zum anderen eine Simulation ohne die Rußemissionen mit einer Anpassung des Strahlungsantriebs der gealterten Rußmoden. Um herauszufinden ob einige Unterschiede in der simulierten Luftqualität durch die Meteorologie oder durch die Wechselwirkung zwischen den Aerosolen und der Chemie hervorgerufen wurden, wurde eine weitere Simulation ohne Rußemissionen und ohne Wechselwirkungen zwischen Aerosolen und der Strahlung durchgeführt. Da die Meteorologie für diese Änderungen nicht von Bedeutung war, wurde diese Simulation nicht weiter betrachtet. Die Auswertung bezieht sich hauptsächlich auf das Untersuchungsgebiet in Europa, welches sich dadurch auszeichnet, dass die Hitzeperiode in diesem Gebiet am ausgeprägtesten war.

Zunächst erfolgte eine Quantifizierung des Einflusses von Ruß auf die Luftqualität im Sommer 2003. Besonders Rußemissionen des Straßenverkehrs und der Industrie führen zu hohen Konzentrationen. Die Ballungsgebiete sind hauptsächlich in Polen, um die Po-Ebene in Italien und flächendeckend über Südengland bis Frankreich und Deutschland zu finden. Aufgrund des Ru-

ßes in der Atmosphäre verändern sich die Konzentrationen der Spurenstoffe und Aerosole. Dies macht sich vor allem in der Sulfatkonzentration bemerkbar. Der Ruß im Modell führte besonders am Ende der Hitzeperiode zu einer im Median bis zu $1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höheren Sulfatkonzentration. Es konnte festgestellt werden, dass die Änderungen in den meteorologischen Bedingungen durch Aerosole nicht der entscheidende Grund für diese Unterschiede in der Sulfatkonzentration ist. Die Unterschiede können durch die Wechselwirkung zwischen den Aerosolen und der Gasphase verursacht werden, aber auch das Verschieben der Partikeldurchmesser durch das Entfernen von Ruß kann ein Grund sein. Mit Ruß ist das Maximum der Durchmesser der Sulfatpartikel im Modell bei höherer Masse kleiner als ohne Ruß.

Daraufhin wurde der Einfluss von Ruß auf die Größenverteilungen weiter untersucht. Allgemein stellte sich heraus, dass aufgrund des Rußes eine höhere Partikelmasse vorhanden ist mit tendenziell kleineren Partikeln. Die Rußmasse macht hier aber nur einen kleinen Anteil der höheren Masse aus. Zudem führt der Ruß zu einer höheren Partikelanzahl, bei tendenziell größeren Partikeln. Auch nicht zu erwarten war eine Verkleinerung der Massendichteverteilung der rußfreien Nukleationsmode mit einer Vergrößerung des Partikeldurchmessers, als der Ruß entnommen wurde. Eine weitere Untersuchung der Beeinflussung der Rußpartikel auf die Größenverteilungen wäre im Rahmen einer weiteren Studie interessant.

Das Hauptziel dieser Arbeit war die Quantifizierung des Einflusses von Ruß auf die bodennahe Temperatur. Durch den Vergleich mit der Wolkenbedeckung und der Windgeschwindigkeit in 10 m Höhe stellte sich heraus, dass einige Temperaturdifferenzen auf die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen zurück zu führen waren. Um den Einfluss von Ruß näher zu quantifizieren, wurden die Gitterpunkte an denen der Temperaturunterschied signifikant auf dem wahrscheinlichen Niveau ($>66\%$) ist betrachtet. Dabei wurde östlich der Po-Ebene (Italien), über Ungarn, eine signifikante Erwärmung bis zu $0,9^\circ\text{C}$ festgestellt. Es konnte jedoch keine Korrelation zwischen der Rußmasse und der Temperaturdifferenz festgestellt werden. Eine Ursache hierfür kann das interne Rauschen im Modell sein. Deshalb wurde dieselbe Betrachtung ohne Bewölkung durchgeführt. Hier ist eine eindeutige Korrelation zwischen der Rußmasse und der Temperaturdifferenz zu erkennen. Ohne Bewölkung ist hauptsächlich über England und dem Ärmelkanal eine signifikante Erwärmung von $0,9^\circ\text{C}$ zu sehen. In diesem Gebiet wurden auch hohe Rußemissionen gefunden. Für einen signifikanten Temperaturunterschied genügen somit nicht nur lokale Erhöhungen der Rußemissionen, wie zum Beispiel über Ballungsgebieten.

Neben dem Einflusses von Ruß auf die bodennahe Temperatur wurden die vertikalen Temperaturunterschiede betrachtet. Der Ruß führte zu einer Stabilisierung im Mittel über den gesamten Zeitraum. Bei der Betrachtung der vertikalen Verteilung der optischen Dicke von trockenem Ruß ist eine gute Korrelation mit der vertikalen Temperaturdifferenz zu erkennen. Das Maximum der Temperaturdifferenz in 1,5 km Höhe kann durch die Zunahme der optischen Dicke von trockenem Ruß erklärt werden. Dies verdeutlicht, dass online gekoppelte Modelle nötig sind, um den Effekt des Rußes darzustellen.

Literaturverzeichnis

- Ackerman, A., O. Toon, D. Stevens, A. Heymsfield, V. Ramanathan, und E. Welton, 2000: Reduction of tropical cloudiness by soot. *Science*, **288** (5468), 1042–1047.
- Ackermann, I., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F. Binkowski, und U. Shankar, 1998: Modal aerosol dynamics model for Europe: development and first applications. *Atmos. Environ.*, **32** (17), 2981–2999.
- Albrecht, B., 1989: Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science (New York, NY)*, **245** (4923), 1227.
- Athanasopoulou, E., H. Vogel, B. Vogel, A. Tsimpidi, S. Pandis, C. Knöbe, und C. Fountoukis, 2012: Modeling meteorological and chemical effects of secondary organic aerosol during an EUCAARI campaign. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **12**, 21 815–21 865.
- Baldauf, M., A. Seifert, J. Förstner, D. Majewski, M. Raschendorfer, und T. Reinhardt, 2011: Operational convective-scale numerical weather prediction with the COSMO model: description and sensitivities. *Mon. Wea. Rev.*, **139**, 3887–3905.
- Bangert, M., 2006: Eine Parameterisierung für die Berechnung von Photolysefrequenzen in Chemie-Transport-Modellen. Seminararbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Bäumer, D., B. Vogel, H. Vogel, R. Rinke, und C. Kottmeier, 2008: Klimawirksamkeit von Rußpartikeln in Baden-Württemberg. *Abschlussbericht. Forschungsvorhaben ZO3K25001 im Auftrag der Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz in Baden-Württemberg*, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Black, E., M. Blackburn, G. Harrison, B. Hoskins, und J. Methven, 2004: Factors contributing to the summer 2003 European heatwave. *Weather*, **59** (8), 217–223.
- Bockhorn, H., 1994: *Soot formation in combustion:(mechanisms and models)*, Vol. 59. Springer Series Chemical Physics, 3ff S.
- Bohren, C. und D. Huffman, 1998: *Absorption and scattering of light by small particles*, Vol. 1. Wiley-Vch, New York, 544 S.

- Bond, T. und R. Bergstrom, 2006: Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review. *Aerosol Sci. Technol.*, **40** (1), 27–67.
- Burtscher, H., 1992: Measurement and characteristics of combustion aerosols with special consideration of photoelectric charging and charging by flame ions. *J. Aerosol Sci.*, **23** (6), 549–595.
- Colbeck, I., L. Appleby, E. Hardman, und R. Harrison, 1990: The optical properties and morphology of cloud-processed carbonaceous smoke. *J. Aerosol Sci.*, **21** (4), 527–538.
- Cooke, W. und J. Wilson, 1996: A global black carbon aerosol model. *J. Geophys. Res.*, **101** (D14), 19 395–19.
- Cubison, M., et al., 2008: The influence of chemical composition and mixing state of Los Angeles urban aerosol on CCN number and cloud properties. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 5649–5667.
- Davies, H., 1976: A lateral boundary formulation for multi-level prediction models. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **102** (432), 405–418.
- Dee, D., et al., 2011: The ERA-Interim reanalysis: Configuration and performance of the data assimilation system. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **137** (656), 553–597.
- Denier van der Gon, H., A. Visschedijk, H. van der Brugh, und R. Dröge, 2010: A high resolution European emission data base for the year . *A contribution to UBA-Projekt PAREST: Particle Reduction Strategies, TNO-report TNO-034-UT-2010-01895 RPTML*.
- Emmons, L., et al., 2010: Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4), *Geosci. Model Dev.*, 3, 43–67, doi: 10.5194. gmd-3-43-2010.
- Ferrone, A., C. Kottmeier, und B. Vogel, 2012: Klimawandel und Luftqualität (KLIMO-LUFT) Eine Vorstudie für Baden-Württemberg. *Abschlussbericht. Projektnummer 397 im Auftrag der Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz in Baden-Württemberg*, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Filleul, L., et al., 2006: The relation between temperature, ozone, and mortality in nine French cities during the heat wave of 2003. *Environ. Health Perspect.*, **114** (9), 1344.
- Forster, P., et al., 2007: Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.)]. *Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA*.
- Geiger, H., I. Barnes, I. Bejan, T. Benter, und M. Spittler, 2003: The tropospheric degradation of isoprene: an updated module for the regional atmospheric chemistry mechanism. *Atmos. Environ.*, **37** (11), 1503–1519.

- Giglio, L., G. Van Der Werf, J. Randerson, G. Collatz, P. Kasibhatla, et al., 2006: Global estimation of burned area using MODIS active fire observations. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 957–974.
- Grassl, H., 1999: Global climate change. *Interdisciplinary Science Reviews*, **24 (3)**, 185–194.
- Hansen, A., B. Bodhaine, E. Dutton, and R. Schnell, 1988: Aerosol black carbon measurements at the South Pole: Initial results, 1986-1987. *Geophys. Res. Lett.*, **15 (11)**, 1193–1196.
- Hansen, J., et al., 2005: Efficacy of climate forcings. *J. Geophys. Res.*, **110 (D18)**, D18 104.
- Haylock, M., N. Hofstra, A. Tank, E. Klok, P. Jones, and M. New, 2008: A European daily high-resolution gridded data set of surface temperature and precipitation for 1950–2006. *J. Geophys. Res.*, **113 (D20)**, D20 119.
- Hitzenberger, R. und H. Puxbaum, 1993: Comparisons of the measured and calculated specific absorption coefficients for urban aerosol samples in Vienna. *Aerosol Sci. Technol.*, **18 (4)**, 323–345.
- Hodzic, A., et al., 2006: Evolution of aerosol optical thickness over Europe during the August 2003 heat wave as seen from CHIMERE model simulations and POLDER data. *Atmos. Chem. Phys.*, **6 (7)**, 1864.
- Horvath, H., 1993: Atmospheric light absorption-a review. *Atmos. Environ. Part A. General Topics*, **27 (3)**, 293–317.
- IPCC, 2007a: Summary for Policymakers. In: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M.Tignor and H.L. Miller (eds.)]. *Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA*.
- IPCC, 2007b: Zusammenfassung für politische Entscheidungsträger. In: Klimaänderung 2007: Wissenschaftliche Grundlagen. Beitrag der Arbeitsgruppe I zum Vierten Sachstandsbericht des Zwischenstaatlichen Ausschusses für Klimaänderung (IPCC), Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M.Tignor und H.L. Miller, Eds., Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom und New York, NY, USA. *Deutsche Übersetzung durch ProClim-, österreichisches Umweltbundesamt, deutsche IPCC-Koordinationsstelle, Bern/Wien/Berlin*.
- Jacobson, M., 2002: Control of fossil-fuel particulate black carbon and organic matter, possibly the most effective method of slowing global warming. *J. Geophys. Res.*, **107 (D19)**, 4410.
- Johnson, B., K. Shine, and P. Forster, 2004: The semi-direct aerosol effect: Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, **130 (599)**, 1407–1422.

- Jones, G., A. Jones, D. Roberts, P. Stott, und K. Williams, 2005: Sensitivity of global-scale climate change attribution results to inclusion of fossil fuel black carbon aerosol. *Geophys. Res. Lett.*, **32** (14), L14 701.
- Junge, C., 1952: Gesetzmäßigkeiten in der Größenverteilung atmosphärischer Aerosole über dem Kontinent. *Ber d. Deirsch Wetterdienst US-Zone*, **35**, 261–277.
- Kirchstetter, T., J. Aguiar, S. Tonse, D. Fairley, und T. Novakov, 2008: Black carbon concentrations and diesel vehicle emission factors derived from coefficient of haze measurements in California: 1967-2003. *Atmos. Environ.*, **42** (3), 480–491.
- Kleefeld, S., A. Hoffer, Z. Krivacsy, und S. Jennings, 2002: Importance of organic and black carbon in atmospheric aerosols at Mace Head, on the West Coast of Ireland (53° 19'N, 9° 54'W). *Atmos. Environ.*, **36** (28), 4479–4490.
- Koren, I., Y. Kaufman, L. Remer, und J. Martins, 2004: Measurement of the effect of Amazon smoke on inhibition of cloud formation. *Science*, **303** (5662), 1342–1345.
- Kraus, H., 2004: *Die Atmosphäre der Erde: Eine Einführung in die Meteorologie*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 112–114 S.
- Kuenen, J., H. van der Gon, A. Visschedijk, H. van der Brugh, und R. van Gijlswijk, 2011: MACC European emission inventory for the years 2003–2007. *TNO-report TNO-060-UT-2011-00588*.
- Liu, L., M. Mishchenko, S. Menon, A. Macke, und A. Lacis, 2002: The effect of black carbon on scattering and absorption of solar radiation by cloud droplets. *J. Quant. Spec. Rad. Trans.*, **74** (2), 195–204.
- Lohmann, U., J. Feichter, et al., 2005: Global indirect aerosol effects: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5** (3), 715–737.
- Lundgren, K., 2006: Numerical Simulation of the Spatial and Temporal Distribution of Sea Salt Particles on the Regional Scale. Diplomarbeit, Universität Stockholm.
- Luterbacher, J., D. Dietrich, E. Xoplaki, M. Grosjean, und H. Wanner, 2004: European seasonal and annual temperature variability, trends, and extremes since 1500. *Science*, **303** (5663), 1499–1503.
- Madhavi Latha, K. und K. Badarinath, 2003: Black carbon aerosols over tropical urban environment—a case study. *Atmos. Res.*, **69** (1-2), 125–133.
- McFiggans, G., et al., 2006: The effect of physical and chemical aerosol properties on warm cloud droplet activation. *Atmos. Chem. Phys.*, **6** (9), 2593–2649.
- McMurry, P. und M. Stolzenburg, 1989: On the sensitivity of particle size to relative humidity for Los Angeles aerosols. *Atmos. Environ.*, **23** (2), 497–507.

- Moffet, R., X. Qin, T. Rebotier, H. Furutani, und K. Prather, 2008: Chemically segregated optical and microphysical properties of ambient aerosols measured in a single-particle mass spectrometer. *J. Geophys. Res.*, **113**, D12 213.
- Müller, G., B. Mühr, und C. Kottmeier, 2003: Der Rekordsommer 2003. <http://www.imk-tro.kit.edu/5293.php>, Internetseite; Stand 07-2012.
- Neu, U. und E. Thalmann, 2005: Hitzesommer 2003 Synthesebericht, Bern, ProClim-Forum for Climate and Global Change. *Plattform of the Swiss Academy of Science*.
- Ogren, J., P. Groblicki, und R. Charlson, 1984: Measurement of the removal rate of elemental carbon from the atmosphere. *Sci. Total Environ.*, **36**, 329–338.
- Penner, J., S. Zhang, und C. Chuang, 2003: Soot and smoke aerosol may not warm climate. *J. Geophys. Res.*, **108 (D21)**, 4657.
- Pichler, H., 1997: *Dynamik der Atmosphäre. 3. aktualisierte Auflage*. Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, 173–177 S.
- Raes, F., R. Dingenen, E. Vignati, J. Wilson, J. Putaud, J. Seinfeld, und P. Adams, 2000: Formation and cycling of aerosols in the global troposphere. *Atmos. Environ.*, **34 (25)**, 4215–4240.
- Ramachandran, G. und P. Reist, 1995: Characterization of morphological changes in agglomerates subject to condensation and evaporation using multiple fractal dimensions. *Aerosol Sci. Technol.*, **23 (3)**, 431–442.
- Rieger, D., 2010: COSMO-ART: Simulation von Waldbrandemissionen. Seminararbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Riemer, N., 2002: Numerische Simulationen zur Wirkung des Aerosols auf die troposphärische Chemie und die Sichtweite. Dissertation, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Riemer, N., H. Vogel, B. Vogel, B. Schell, I. Ackermann, C. Kessler, und H. Hass, 2003: Impact of the heterogeneous hydrolysis of N₂O₅ on chemistry and nitrate aerosol formation in the lower troposphere under photosmog conditions. *J. Geophys. Res.*, **108 (D4)**, 4144.
- Rinke, R., 2008: Parametrisierung des Auswaschens von Aerosolpartikeln durch Niederschlag. Dissertation, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Ritter, B. und J. Geleyn, 1992: A comprehensive radiation scheme for numerical weather prediction models with potential applications in climate simulations. *Mon. Wea. Rev.*, **120 (2)**, 303–325.
- Rockel, B., A. Will, und A. Hense, 2008: The regional climate model COSMO-CLM (CCLM). *Meteor. Z.*, **17 (4)**, 347–348.

- Schär, C., P. Vidale, D. Lüthi, C. Frei, C. Häberli, M. Liniger, und C. Appenzeller, 2004: The role of increasing temperature variability in European summer heatwaves. *Nature*, **427 (6972)**, 332–336.
- Schell, B., I. Ackermann, H. Hass, F. Binkowski, und A. Ebel, 2001: Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system. *J. Geophys. Res.*, **106(D22)**, 28 275–28 293.
- Simmons, A. und J. Gibson, 2000: The ERA-40 project plan, ERA-40 project report series no. 1, ECMWF, Shinfield Park. *Reading, UK*, **63**.
- Stanelle, T., 2008: Wechselwirkungen von Mineralstaubpartikeln mit thermodynamischen und dynamischen Prozessen in der Atmosphäre über Westafrika. Dissertation, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Stedman, J., 2004: The predicted number of air pollution related deaths in the UK during the August 2003 heatwave. *Atmos. Environ.*, **38 (8)**, 1087–1090.
- StMUGV, 2005: Daten+Fakten+Ziele - Feinstaub - Diffuser Staub - Klares Handeln. *Bayerisches Staatsministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz (StMUGV), München, Deutschland*.
- Stockwell, W., P. Middleton, J. Chang, und X. Tang, 1990: The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. *J. Geophys. Res.*, **95 (D10)**, 16 343–16.
- Twomey, S., 1977: The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds. *J. Atmos. Sci.*, **34 (7)**, 1149–1152.
- Umweltbundesamt, 2009: Feinstaubbelastung in Deutschland. *Umweltbundesamt für Mensch und Umwelt*.
- Vogel, B., H. Vogel, D. Bäumer, M. Bangert, K. Lundgren, R. Rinke, und T. Stanelle, 2009: The comprehensive model system COSMO-ART- Radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale. *Atmos. Chem. Phys.*, **9 (22)**, 8661–8680.
- Vogel, B., H. Vogel, J. Kleffmann, und R. Kurtenbach, 2003: Measured and simulated vertical profiles of nitrous acid–Part II. Model simulations and indications for a photolytic source. *Atmos. Environ.*, **37 (21)**, 2957–2966.
- Wang, C., 2004: A modeling study on the climate impacts of black carbon aerosols. *J. Geophys. Res.*, **109 (D3)**, D03 106.
- Weingartner, E., H. Burtscher, und U. Baltensperger, 1997: Hygroscopic properties of carbon and diesel soot particles. *Atmos. Environ.*, **31 (15)**, 2311–2327.

Whitby, K., 1978: The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmos. Environ.*, **12** (1), 135–159.

Zwiers, F., H. von Storch, und M.-P.-I. für Meteorologie, 1995: Taking serial correlation into account in tests of the mean. *J. Climate*, **8**, 336–351.

Anhang A

Rußkonzentrationen

Weitere ausgewählte Gebiete mit hohen Rußemissionen aus Abschnitt 4.1.

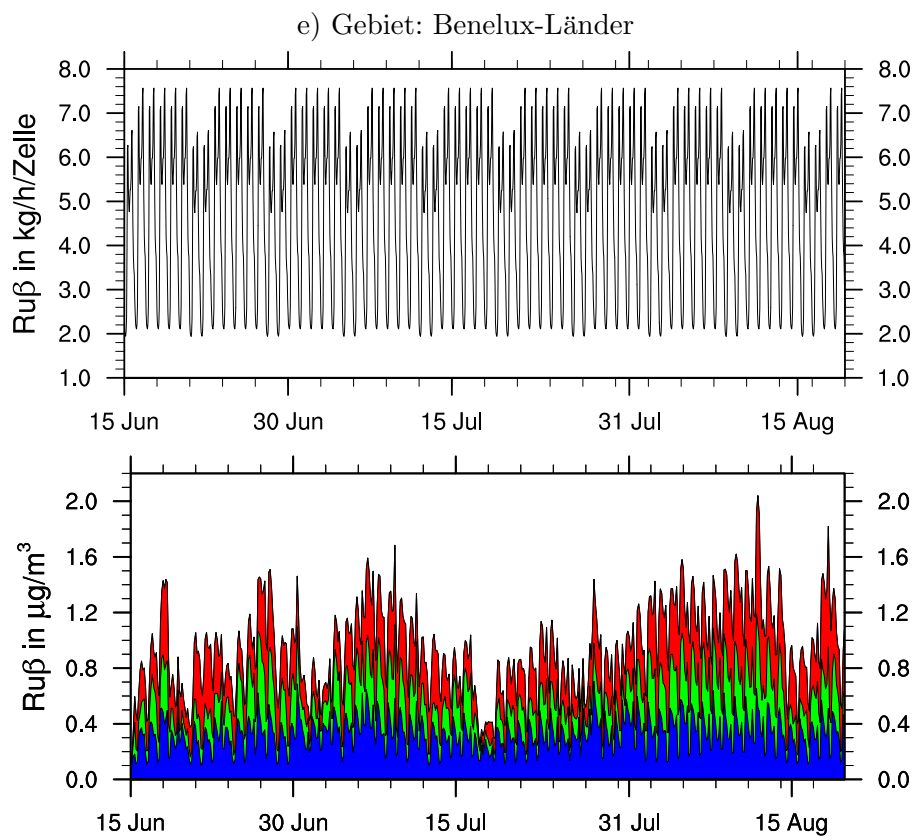


Abb. A.1: Zeitlicher Verlauf der Emissionen von Ruß in kg/h/Zelle (oben) und der Rußkonzentrationen der Simulation COSMO-ART_Ruß_WW in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (unten) gemittelt über das jeweilige Gebiet (Abb. 3.3) auf der untersten Modellschicht. In blau ist der Anteil der Mode s, in grün der Mode i und in rot der Mode j dargestellt.

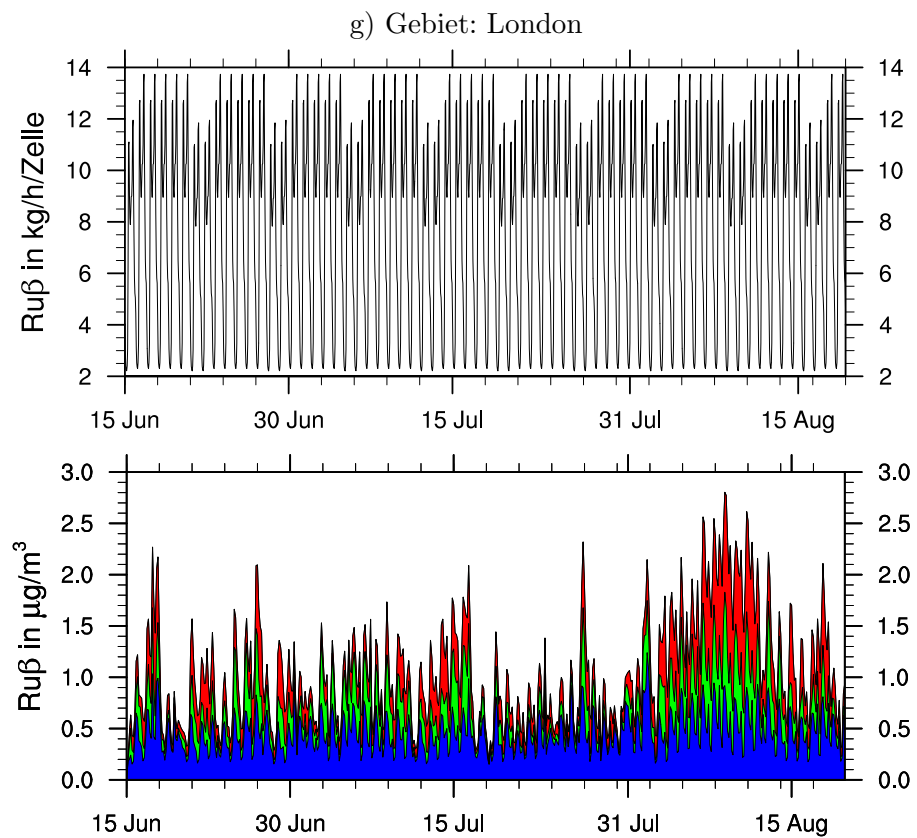
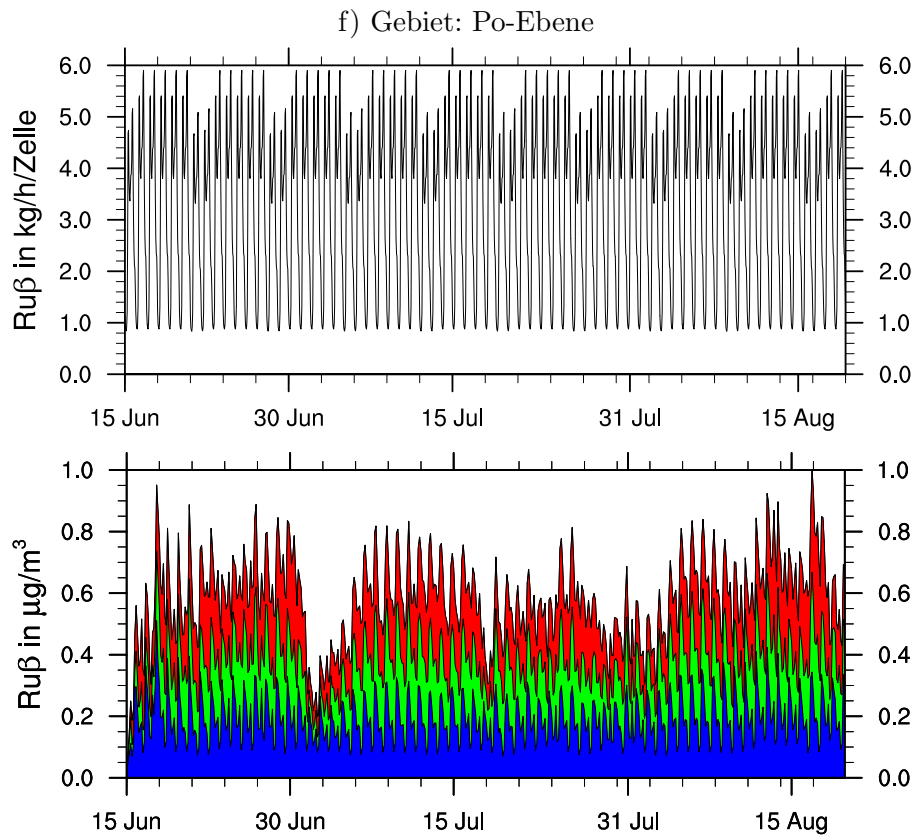


Abb. A.2: Wie Abbildung A.1 für weitere Gebiete.

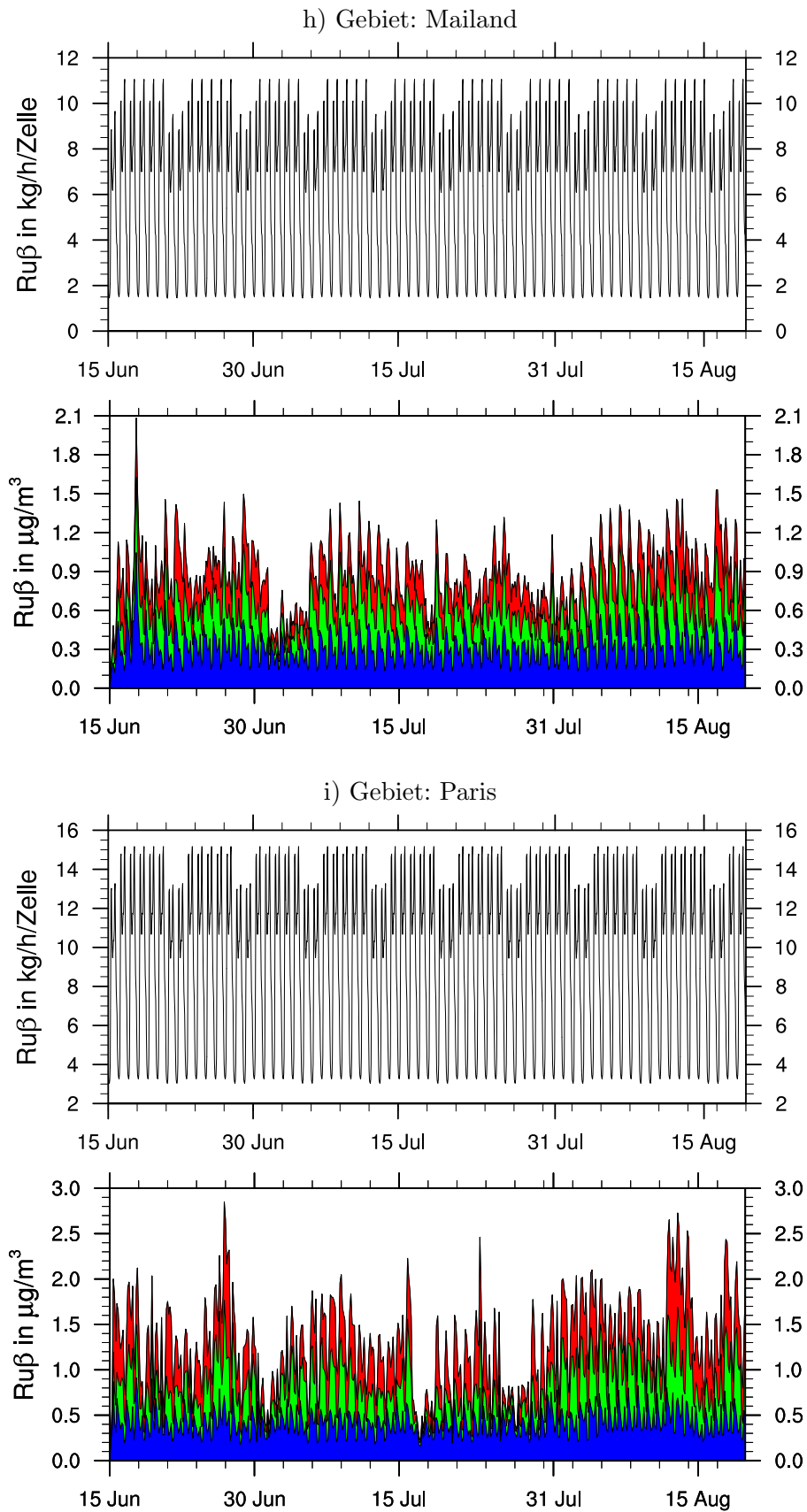
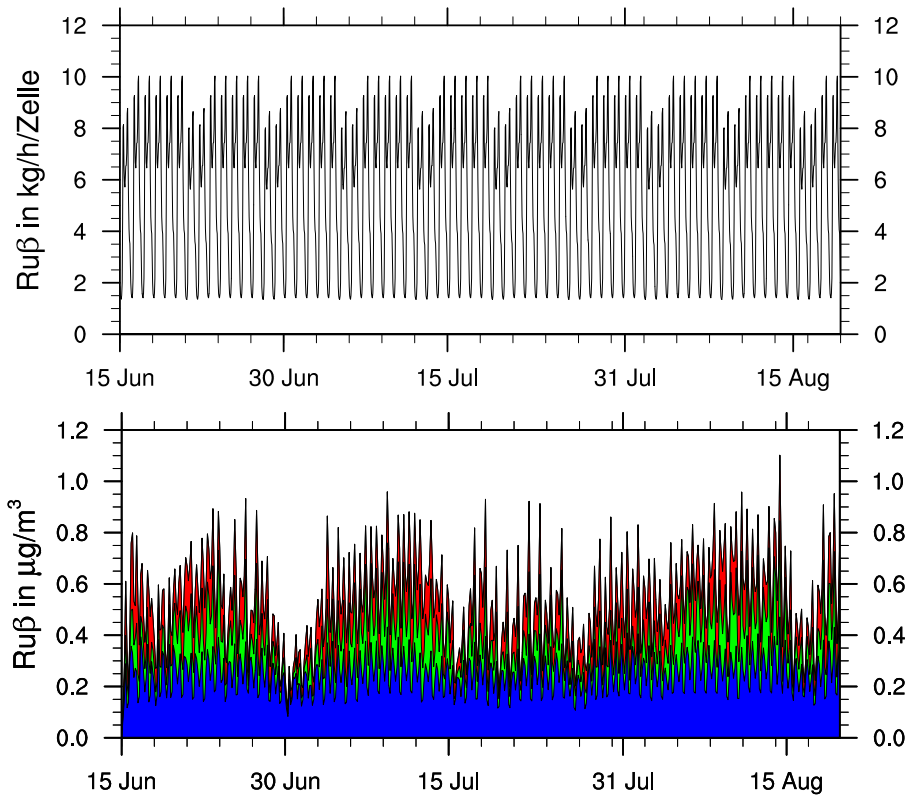


Abb. A.3: Wie Abbildung A.1 für weitere Gebiete.

j) Gebiet: Madrid



k) Gebiet: Köln

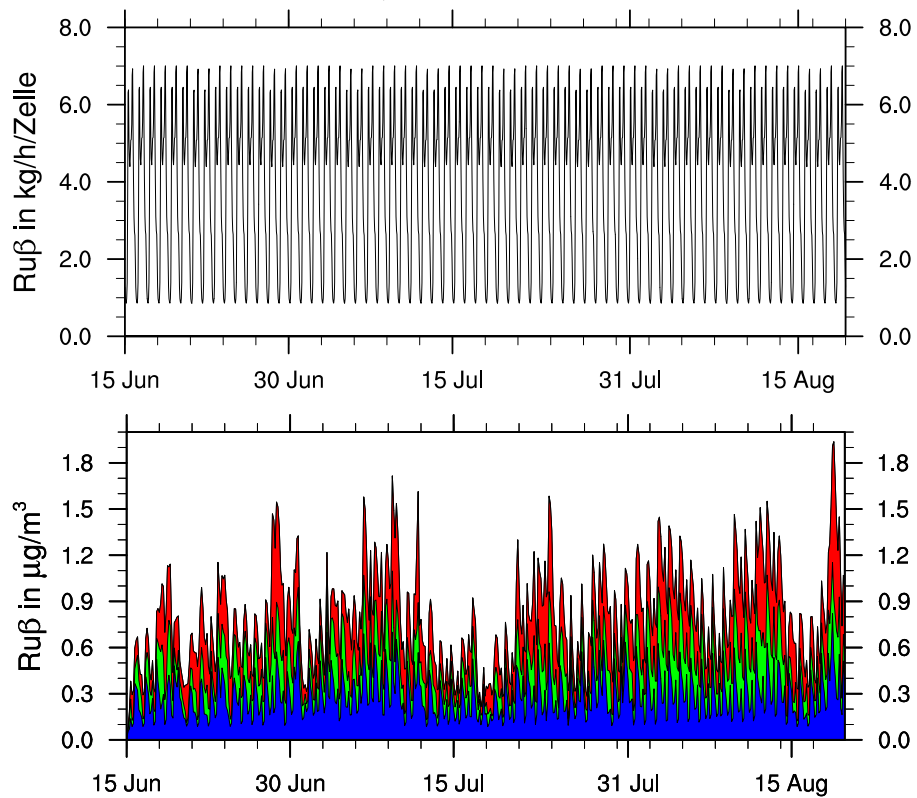


Abb. A.4: Wie Abbildung A.1 für weitere Gebiete.

Anhang B

Durchmesser

Massendichteverteilung und Anzahldichteverteilung wie in Kapitel 5 für die Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW.

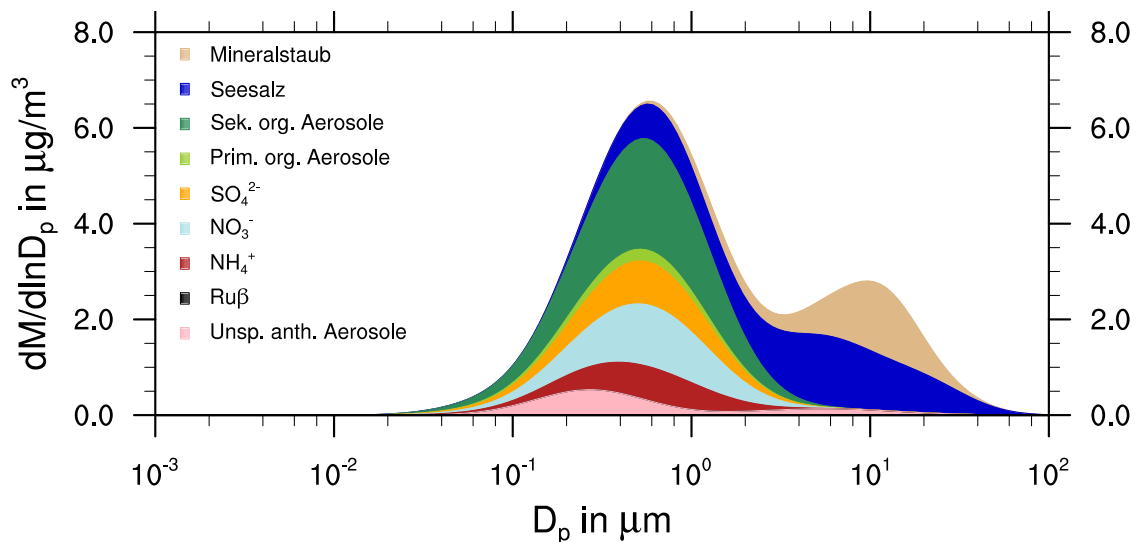


Abb. B.1: Chemische Zusammensetzung der Massendichteverteilung der Aerosole im Modell im Untersuchungsgebiet für die Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW. Dargestellt sind die Mediane über den Zeitraum vom 15.6.2003 bis 20.8.2003 im Untersuchungsgebiet.

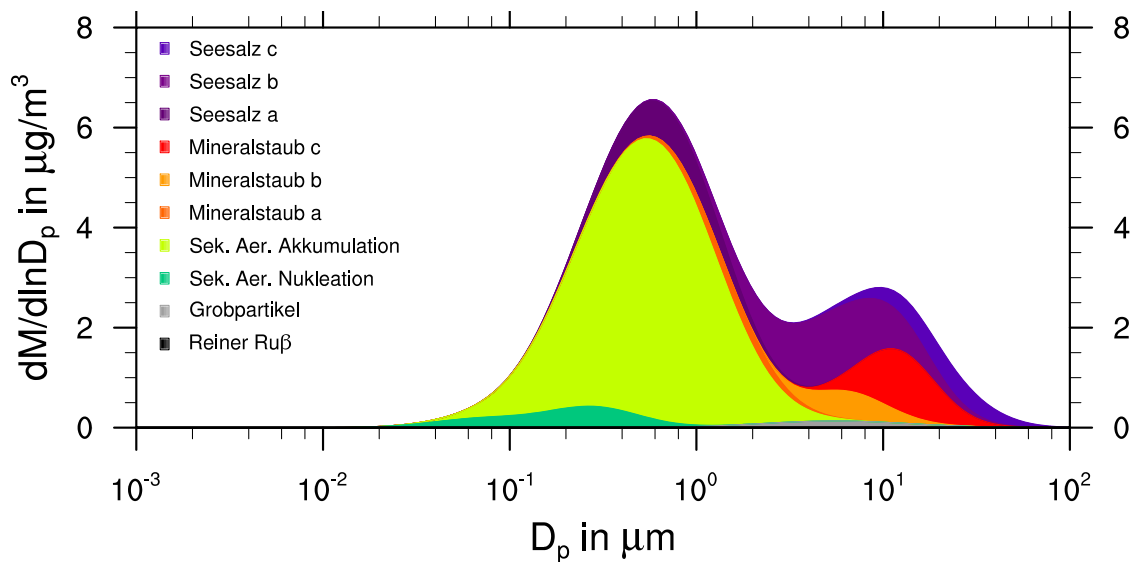


Abb. B.2: Massendichteverteilung der verschiedenen Moden im Modell für die Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW. Dargestellt über den Zeitraum vom 15.6.2003 bis 20.8.2003 im Untersuchungsgebiet.

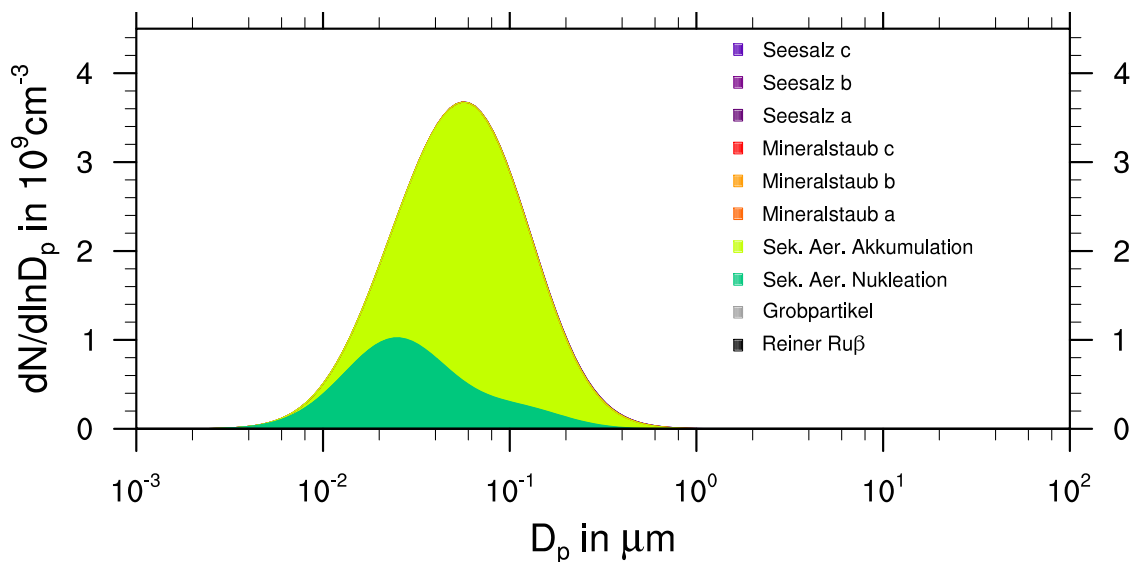


Abb. B.3: Anzahldichteverteilung der verschiedenen Moden im Modell im Untersuchungsgebiet für die Simulation COSMO-ART_oRuß_oWW. Dargestellt über den Zeitraum vom 15.6.2003 bis 20.8.2003 im Untersuchungsgebiet.

